



HAL
open science

Effets de la nature des particules sédimentaires (granulométrie et matière organique) sur la concentration des contaminants

Hugo Lepage, Matthieu Masson, Alexandra Gruat, Loïc Richard

► **To cite this version:**

Hugo Lepage, Matthieu Masson, Alexandra Gruat, Loïc Richard. Effets de la nature des particules sédimentaires (granulométrie et matière organique) sur la concentration des contaminants. [Rapport de recherche] IRSN; INRAE. 2024. hal-04228632v1

HAL Id: hal-04228632

<https://hal.science/hal-04228632v1>

Submitted on 4 Oct 2023 (v1), last revised 26 Aug 2024 (v2)

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

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



Observatoire
des Sédiments
du Rhône

Effets de la nature des particules sédimentaires (granulométrie et matière organique) sur la concentration des contaminants

Effets de la nature des particules sédimentaires (granulométrie et matière organique) sur la concentration des contaminants

Rapport scientifique intermédiaire
Version du 31 mars 2023

Observatoire des Sédiments du Rhône – 6^{ème} programme d'action

Axe B – Comprendre les sources et la dynamique des MES et des contaminants particulaires dans le bassin du Rhône

Action B4 – Etude du comportement des contaminants pour déterminer leur persistance dans le système

Sous-Action B4.2 – Effets de la nature des particules, granulométrie et matière organique, sur la concentration des contaminants

Personnes impliquées

Hugo Lepage (IRSN, LRTA) ; Matthieu Masson (INRAE, UR RiverLy, LAMA) ; Alexandra Gruat (INRAE, UR RiverLy, LAMA) ; Loïc Richard (INRAE, UR RiverLy, LAMA)

Pour citer ce rapport

Lepage, H, Masson, M, Gruat, A, Richard, L (2023). *Effets de la nature des particules sédimentaires (granulométrie et matière organique) sur la concentration des contaminants*. Rapport scientifique intermédiaire. Observatoire des Sédiments du Rhône – 6^{ème} programme d'action. 28 p.

L'OSR est un programme animé par le Graie. Pour toute information vous pouvez contacter Bertrand Morandi (bertrand.morandi@graie.org)

Résumé

Avec son réseau de suivi implanté le long du Rhône, l'OSR mesure la taille des particules et la quantité (et qualité) de matière organique (MO) qui composent les matières en suspension (MES) du fleuve. Si les données entre les stations sont très hétérogènes, les résultats montrent que la taille des particules ne diffère pas systématiquement le long du Rhône, avec une forte proportion de limons et une augmentation de la proportion des sables lors des crues. Pour la MO, les MES sont parfois enrichies (Gier, Bourbre, Ardèche, Guiers) ou appauvries (Arve, Durance, Isère Rhône à Arles et Jons) en carbone organique particulaire (COP). Le rapport entre les concentrations en COP et celles en azote (C/N) sont variables et renseignent sur l'origine de la MO entre apports terrigènes (principalement durant les crues) et apports autochtones.

Si une tendance est observée entre l'augmentation de la granulométrie et la diminution des concentrations en métaux pour de nombreuses stations, il ne semble pas y avoir une relation universelle entre la taille des particules ou la qualité de la MO et la concentration des polluants ciblés (métaux, PCB, radionucléides...). Des liens entre granulométrie et teneurs en COP rendent encore plus complexes l'établissement de relations claires entre contaminants et nature des particules. Il apparaît donc compliqué de proposer une solution de normalisation des concentrations en contaminants sur ce bassin versant où la variation des concentrations de polluants est plus liée à l'origine de la pollution qu'à la nature des MES. Finalement, nous proposons pour la première fois une estimation des flux d'argile/limon/sable aux stations de l'OSR.

Mots-clés

OSR ; Rhône ; Observatoire ; Sédiments ; Granulométrie ; Matière organique ; Argile ; Limon ; Sable ; Flux ; PCB ; métaux ; mercure ; radionucléide

Table des matières

1. Introduction.....	5
2. Méthodologie	5
2.1 Description des données.....	5
2.2 Paramètres retenus pour l'étude.....	7
3. Granulométrie des MES du Rhône et de ses affluents	8
3.1 Intercomparaison des méthodes à Jons	8
3.2 Variation du d50 entre les stations.....	10
3.3 Variation des classes granulométriques entre les stations	13
3.4 Flux granulométrique.....	14
4. Matière organique dans les MES du Rhône et de ses affluents	16
4.1 Intercomparaison des méthodes à Jons	16
4.2 Variations des teneurs en COP entre les stations.....	17
4.3 Variations de la nature de matière organique entre les stations.....	19
5. Relation entre la granulométrie et la matière organique.....	20
6. Relations avec les contaminants.....	20
6.1 Cas du mercure et des métaux	21
6.2 Cas des PCB	24
6.2.1 Cas des radionucléides.....	24
7. Conclusion et perspectives	25
8. Bibliographie	27

1. Introduction

La nature des sédiments et des matières en suspension (MES), et en particulier la granulométrie et la composition en matière organique (MO), peut influencer les concentrations en contaminants. En effet, il est communément admis que les contaminants ont une forte affinité pour les particules les plus fines due à une augmentation de leur surfaces spécifiques (Duinker, 1986; Olsen et al., 1982; Pierard et al., 1996) ou pour les particules riches en matière organique (Karickhoff et al., 1979; Olsen et al., 1982). Lors d'étude des tendances temporelles et des distributions spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments et les MES, il est essentiel d'évaluer les effets de la variation de ses deux paramètres (e.g. variations de granulométrie et de teneur en MO dans différentes conditions hydrologiques) sur les concentrations en contaminants. Dans cette action, nous proposons de documenter les relations entre contaminants, granulométrie et composition en MO dans les MES du Rhône et de ses affluents. Ces relations pourraient permettre d'améliorer les comparaisons des concentrations en contaminants dans le temps et l'espace grâce à la mise en place d'une méthodologie de normalisation des concentrations en contaminants pour s'affranchir des effets de la variabilité de granulométrie et de composition en MO dans les MES et les sédiments.

Pour cela, nous proposons d'étudier les relations entre les concentrations en contaminants (métaux, radionucléides, PCBi, HAP), la distribution granulométrique (au travers du grain médian d50, des volumes d'argile, limon et sable et du degré d'agrégation), et la concentration (via les analyses de carbone organique particulaire, COP) et la nature (via le rapport C/N entre carbone et azote dans les particules) de la MO présente dans les MES le long du Rhône (Jons, Andancette, Arles) et de chacun des principaux affluents (affluents du Haut-Rhône, Gier, Isère, Ardèche, Durance). Cette étude se basera majoritairement sur les données bancarisées sur BDOH mais aussi sur des données non bancarisées comme l'azote particulaire analysé avec le COP. Avant de présenter les résultats sur les contaminants, la première partie du livrable traite (i) des effets des méthodes de prélèvement (pièges à particules, centrifugeuses fixe et mobile, et prélèvement manuel) sur la granulométrie et la composition en MO, et (ii) de la comparaison de granulométrie et de composition en MO entre les différentes stations du réseau OSR.

2. Méthodologie

2.1 Description des données

Depuis le début de l'OSR, des mesures granulométriques ont été réalisées sur les échantillons de MES prélevés dans les stations du réseau de suivi avec différentes méthodes de prélèvement : piège à particules (PAP), centrifugeuses fixe (CFI) et mobile (CMO), prélèvement manuel (MAN). Deux diffractomètres laser ont été utilisés pour caractériser les distributions en taille de particules : un Beckman Coulter LS 13320 pour les échantillons d'Arles collectés par prélèvement manuel et un Cilas 1190L pour les autres échantillons. Une intercomparaison des granulomètres utilisés dans l'OSR a eu lieu (OSR4 -<https://hal.ird.fr/OSR/hal-03414575v1>) et conduit à une publication scientifique (Lepage et al., 2019). Les résultats ont montré qu'il

pouvait être difficile de comparer les mesures de deux appareils différents. Ainsi, depuis 2018, l'ensemble des analyses sont réalisées sur le Cilas et une partie des données de granulométrie est actuellement bancarisée dans BDOH.

En plus des mesures granulométriques, des analyses de carbone organique particulaire (COP) ont été réalisées sur les MES de l'OSR. Les données disponibles sont moins nombreuses que pour la granulométrie. Jusqu'en 2016, ces analyses ont été réalisées à INRA d'Arras. Depuis 2016 jusqu'à aujourd'hui, les analyses sont réalisées INRAE de Lyon où des analyses complémentaires d'azote total particulaire (NT) sont effectuées.

Le tableau 1 synthétise les données disponibles. On note une forte hétérogénéité entre les stations et les méthodes de prélèvements, sur les paramètres mesurés (granulométrie, COP, NT) et sur l'application des ultrasons pour les mesures de granulométrie, liée à l'évolution des pratiques. Pour faciliter l'interprétation des résultats, les données vont être découpées en deux sous-jeux :

1. Les prélèvements à Jons seront utilisés pour comparer les méthodes de prélèvement entre elles et l'usage des ultrasons.
2. Les données sur les échantillons de PAP seront utilisées pour comparer les stations entre elles.

Tableau 1. Nombre total de données granulométriques, de COP et de NT par station et par méthode (CFI : centrifugeuse fixe ; CMO : centrifugeuse mobile ; MAN : manuel ; PAP : piège à particule). Le nombre entre parenthèse indique le nombre de données obtenues après utilisation des ultrasons pour la granulométrie.

Station	Granulométrie sans US (avec US)					COP / NT			
	CFI	CMO	MAN	PAP	Total	CFI	CMO	PAP	Total
Ain	0	7 (7)	10 (6)	6 (6)	23 (19)	0 / 0	7 / 0	6 / 0	13 / 0
Andancette	0	0	1 (1)	48 (25)	49 (26)	0 / 0	0 / 0	25 / 24	25 / 24
Ardèche	0	2 (1)	4 (2)	51 (34)	57 (37)	0 / 0	0 / 0	34 / 32	34 / 32
Arles	0	1 (1)	181 (1)	43 (28)	225 (30)	0 / 0	0 / 0	28 / 28	28 / 28
Arve	0	3 (3)	23 (12)	8 (8)	34 (23)	0 / 0	3 / 0	8 / 0	11 / 0
Bourbre	0	11 (10)	12 (7)	11 (9)	34 (26)	0 / 0	6 / 0	7 / 0	13 / 0
Drome	0	0	0	41 (24)	41 (24)	0 / 0	0 / 0	24 / 24	24 / 24
Durance	0	0	10 (6)	32 (21)	42 (27)	0 / 0	0 / 0	21 / 20	21 / 20
Fier	0	1 (1)	0	133 (79)	134 (80)	0 / 0	1 / 0	79 / 72	80 / 72
Gardon	0	0	4 (2)	18 (12)	22 (14)	0 / 0	0 / 0	12 / 12	12 / 12
Gier	0	0	2 (2)	148 (94)	150 (96)	0 / 0	0 / 0	92 / 75	92 / 75
Guiers	0	8 (4)	8 (4)	0	16 (8)	0 / 0	4 / 4	0 / 0	4 / 4
Isère	0	0	0	94 (54)	94 (54)	0 / 0	0 / 0	54 / 54	54 / 54
Jons	234 (156)	82 (72)	157 (104)	245 (178)	718 (510)	144 / 96	62 / 1	173 / 113	379 / 210
Saône	0	16 (14)	30 (17)	183 (123)	229 (154)	0 / 0	14 / 0	123 / 81	137 / 81

Parmi ces données, certaines sont associées à un état hydrologique de base ou de crue (voir livrable OSR 6 sur le fonctionnement du réseau pour le choix de l'état hydrologique <https://hal.science/OSR/hal-03750716v1>). Ci-dessous, les tableaux 2 et 3 recensent le nombre de données conservées pour l'étude en indiquant la proportion en crue de celles-ci. De manière générale, il y a plus de mesures sur les échantillons en hydrologie de base plutôt qu'en crue (due à la moindre fréquence de ces événements). Sur la Durance il n'y a ainsi aucune mesure sur des échantillons de crues pour des raisons logistiques et des efforts devront être portés pour compléter la base de données.

Tableau 2. Nombre d'échantillons à Jons mesurés pour la granulométrie, le COP et NT en fonction des différentes méthodes de prélèvement et selon les conditions hydrologiques. Le nombre entre parenthèse indique le nombre de données obtenues après utilisation des ultrasons.

Jons	Granulométrie sans US (avec US)				COP / NT		
	CFI	CMO	MAN	PAP	CFI	CMO	PAP
Base	175 (116)	53 (45)	41 (32)	138 (97)	110 / 75	39 / 1	95 / 70
Crue	49 (35)	29 (27)	54 (39)	97 (76)	34 / 21	23 / 0	78 / 43

Tableau 3. Nombre total d'échantillons de piège à particules (PAP) pour l'ensemble des stations. Le nombre entre parenthèse indique le nombre de données obtenues après utilisation des ultrasons. * Pour le Guiers, en l'absence de données par PAP, la granulométrie, le COP et le NT seront brièvement présentés en utilisant les prélèvements par centrifugeuse mobile.

Station	Granulométrie sans US (avec US)		COP / NT	
	PAP Base	PAP Crue	PAP Base	PAP Crue
Ain	4 (4)	2 (2)	4 / 0	2 / 0
Andancette	28 (14)	12 (6)	16 / 16	7 / 7
Ardèche	41 (27)	8 (6)	28 / 26	6 / 6
Arles	31 (21)	6 (4)	24 / 24	4 / 4
Arve	6 (6)	2 (2)	6 / 0	2 / 0
Bourbre	4 (4)	7 (5)	4 / 0	3 / 0
Drome	37 (21)	4 (3)	21 / 21	3 / 3
Durance	30 (20)	0 (0)	20 / 19	0 / 0
Fier	104 (61)	23 (15)	63 / 57	16 / 16
Gardon	15 (10)	1 (1)	11 / 11	1 / 1
Gier	141 (88)	7 (6)	87 / 73	5 / 2
Guiers (CMO)*	4 (2)	2 (1)	2 / 2	1 / 1
Isère	74 (43)	15 (8)	45 / 45	9 / 9
Jons	138 (97)	97 (76)	95 / 70	78 / 43
Saône	117 (80)	57 (39)	82 / 54	52 / 26

2.2 Paramètres retenus pour l'étude

Pour interpréter les résultats des distributions granulométriques, nous avons regardé le diamètre médian d50 (exprimé en μm) ainsi que le volume (exprimé en %) d'argile ($< 1,95 \mu\text{m}$), de limon ($1,95 - 62,5 \mu\text{m}$) et de sable ($62,5 - 2000 \mu\text{m}$). Ces paramètres sont communément utilisés pour les études traitant de la granulométrie.

Pour aller plus loin dans l'interprétation et pour évaluer l'impact des ultrasons, nous avons également calculé le degré d'agrégation qui correspond au pourcentage de réduction du d50 entre la distribution effective et absolue de la taille des particules (Phillips and Walling 2005, Grangeon et al. 2012). On considère dans cette étude que la distribution effective correspond à la mesure réalisée sans ultrasons, et la distribution absolue comme la mesure réalisée après application des ultrasons (i.e. destruction des agrégats).

$$\text{Degré d'agrégation } DofA = (D50_{\text{effective}} - D50_{\text{absolue}}) / D50_{\text{effective}}$$

Le paramètre principal pour quantifier la matière organique dans les MES est la concentration en carbone organique particulaire (COP). Il est possible d'avoir une information sur la qualité de la matière organique au travers du rapport entre le COP et l'azote total particulaire (principalement de l'azote organique, NT). Ce rapport C/N permet de différencier la MO en

fonction de son origine et de son degré de décomposition. En effet, la MO terrigène est riche en substances humiques et appauvrie en acides aminés et protéines ce qui conduit à un rapport C/N élevé (rapport entre 20 et 100) comparé à la MO d'origine autochtone (rapport entre 5 et 20) (e.g. Kelso, 2018). Dans ce document, les échantillons de MES seront caractérisés par leurs concentrations en COP mais aussi par leur rapport C/N.

3. Granulométrie des MES du Rhône et de ses affluents

3.1 Intercomparaison des méthodes à Jons

Pour rappel, en raison de l'hétérogénéité des données, seules les données obtenues à la station de Jons ont été utilisées pour comparer les différentes méthodes de prélèvements et l'impact des ultrasons. A cette station, le d50 moyen est respectivement pour les prélèvements par CFI, CMO, MAN et PAP de $14.8 \pm 7.7 \mu\text{m}$, $25.6 \pm 12.5 \mu\text{m}$, $20.7 \pm 10.4 \mu\text{m}$ et $32.1 \pm 11.5 \mu\text{m}$ sans ultrasons et de $15.7 \pm 76.3 \mu\text{m}$, $22.8 \pm 112.2 \mu\text{m}$, $11.8 \pm 12.9 \mu\text{m}$, $36.7 \pm 147.4 \mu\text{m}$ après ultrasons. L'ensemble des données est synthétisé dans la **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**

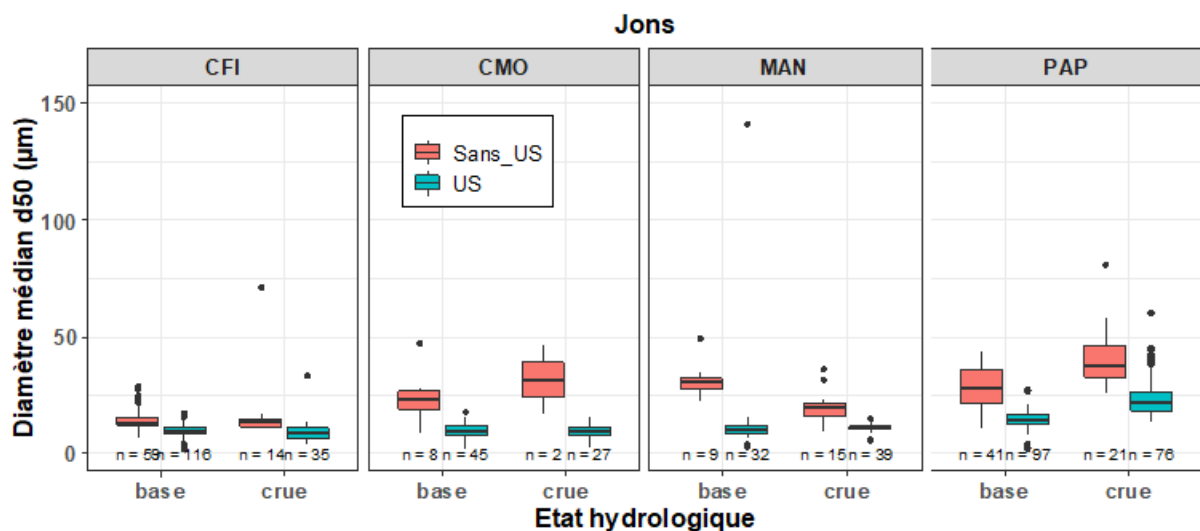


Figure 1. Boxplot des d50 mesurés à Jons selon les différentes méthodes de prélèvement, de l'état hydrologique et de l'utilisation des ultrasons. CFI = centrifugeuse fixe, CMO = centrifugeuse mobile, MAN = prélèvement manuel et PAP = piège à particules. Les valeurs supérieures à 800 µm (5 sur 718 résultats) ne sont pas affichées sur ce graphique mais ont été prises en compte dans l'interprétation.

L'évolution du d50 entre les états hydrologiques et selon l'utilisation des ultrasons est contrastée. Ainsi, en l'absence d'utilisation des ultrasons, le d50 est plus élevé lors des crues pour les prélèvements par CMO et PAP, plus faible pour les prélèvements manuels (MAN) et constant par CFI. Avec ultrasons, les d50 sont similaires pour l'ensemble des méthodes à l'exception des prélèvements par PAP où le d50 est plus grossier.

Si on compare les différentes méthodes, on remarque que la taille des particules des prélèvements par CMO, MAN et PAP sans ultrasons est plus grossière que par CFI quel que

soit l'hydrologie. Après application des ultrasons, les d50 sont similaires quel que soit la méthode de prélèvement et l'hydrologie à l'exception des prélèvements par PAP. Cette différence a été mise en avant lors d'une opération d'intercomparaison à la station de Jons (Masson *et al.* 2018) avec des particules plus grossières prélevées par les PAP. Toutefois, cette étude mettait en évidence que cette différence de granulométrie n'avait pas d'effet sur les concentrations de deux types de contaminants, le mercure et les polychlorobiphényles (PCB). A noter qu'une nouvelle opération d'intercomparaison a eu lieu dans le cadre de l'OSR à la station SORA d'Arles et les résultats seront présentés courant 2023.

Au regard de l'utilisation des ultrasons, les résultats observés sont conformes à la littérature avec des d50 plus faibles après application des ultrasons qui viennent casser les agrégats. Pour aller plus loin dans l'interprétation de ces résultats, les taux d'agrégation ont été calculés et comparés (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**). Ce taux d'agrégation est d'environ 50% à Jons à l'exception des prélèvements par CFI où le taux est plus faible (autour de 25 %). Le taux d'agrégation semble constant selon l'hydrologie (légère diminution pour les prélèvements MAN). Les résultats semblent indiquer que les prélèvements par CFI peuvent casser des agrégats mais difficile de l'affirmer avec certitude car les prélèvements par CMO ne le montrent pas. La différence pourrait s'expliquer par le faible nombre d'échantillons prélevés par CMO par rapport à ceux par CFI. Pour les prélèvements par PAP, les résultats montrent que les agrégats sont plus grossiers.

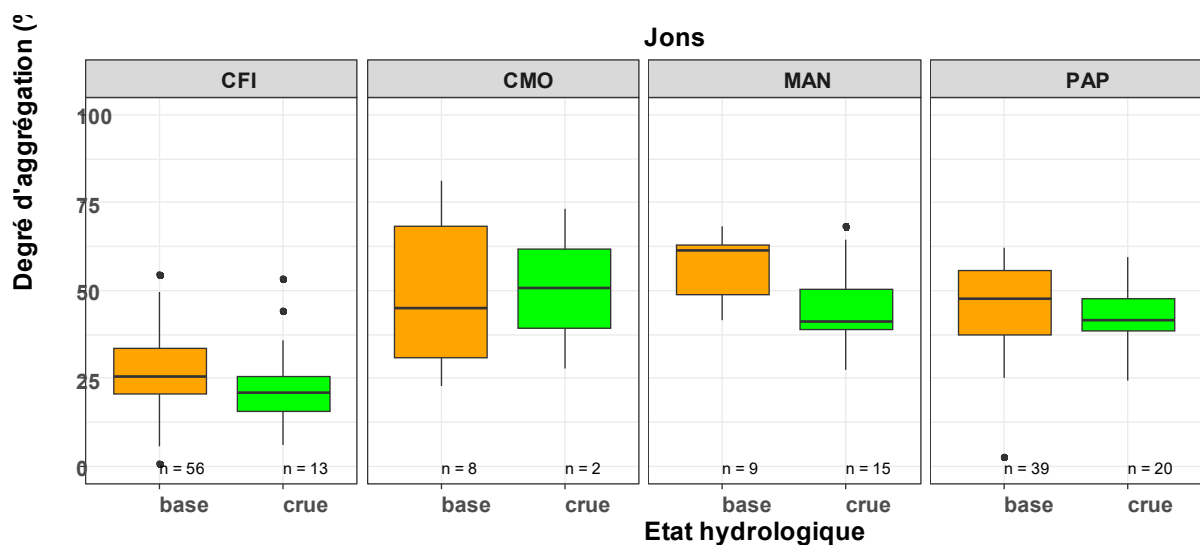


Figure 2. Boxplot des degrés d'agrégation calculés à Jons selon les différentes méthodes de prélèvement et de l'état hydrologique. Le degré d'agrégation correspond au rapport entre la mesure sans ultrasons et avec ultrasons. CFI = centrifugeuse fixe, CMO = centrifugeuse mobile, MAN = prélèvement manuel et PAP = piège à particules.

La distribution des classes principales (argile, limon et sable) montre que les limons prédominent quel que soient les méthodes et conditions hydrologiques (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**). Les résultats confirment les observations précédentes avec :

- Diminution des particules grossières (sables) et augmentation des particules fines (limons et argiles) après application des ultrasons.
- Particules plus grossières lors des crues.

- Particules (et agrégats) plus fines pour les prélèvements par CFI et plus grossières pour les prélèvements par PAP.

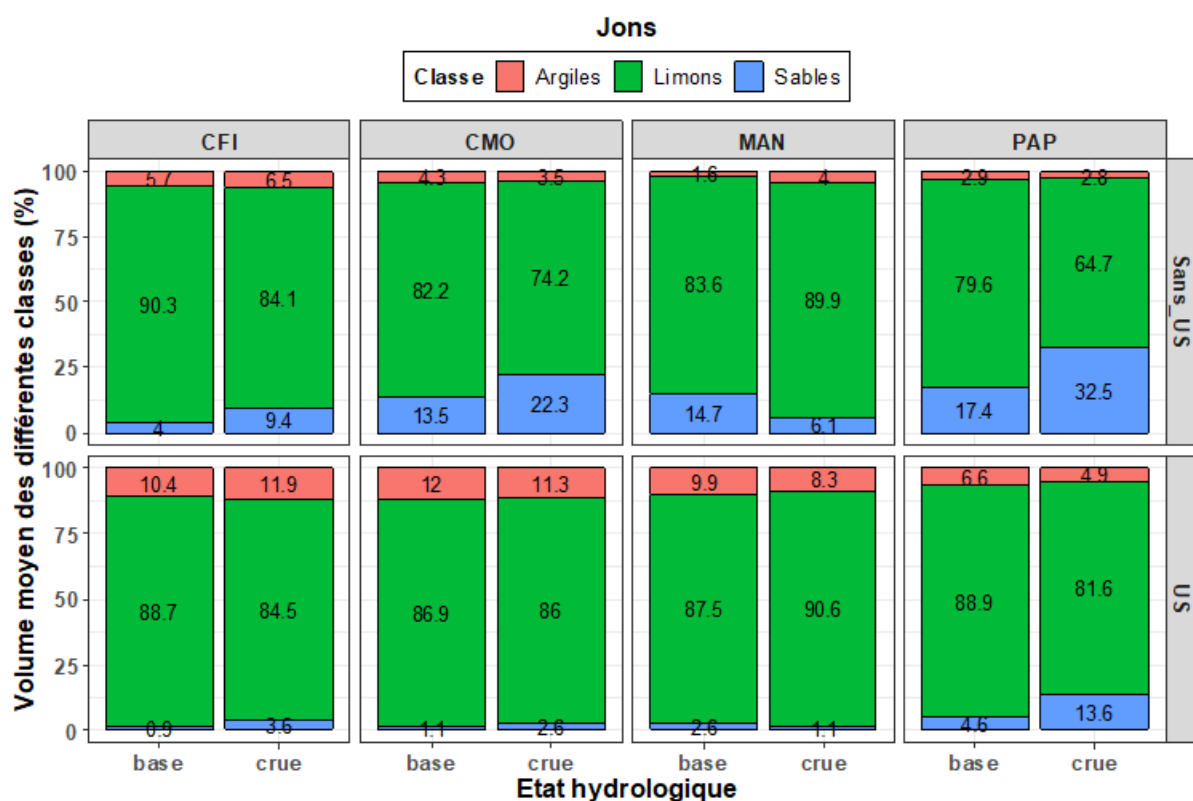


Figure 3. Volume moyen (%) des classes granulométriques mesurés à Jons selon les différentes méthodes de prélèvement, de l'état hydrologique et de l'utilisation des ultrasons. CFI = centrifugeuse fixe, CMO = centrifugeuse mobile, MAN = prélèvement manuel et PAP = piège à particules.

3.2 Variation du d50 entre les stations

Les d50 moyens pour les prélèvements par PAP dans chaque station sont présentés dans le Tableau 4. Pour la Bourbre et pour Jons, des d50 anormaux ont été mesurés ($d_{50} > 1000 \mu\text{m}$) et sont attribués à la formation de bulles dans la cuve du granulomètre lors de la mesure. Ces valeurs ont été retirées de l'étude. Dans l'ensemble, les d50 moyens sont similaires entre les stations lors des périodes de base avec des valeurs autour de $30 \mu\text{m}$ sans US et de $20 \mu\text{m}$ avec US. Quelques exceptions sont toutefois notées pour les mesures sans US pour l'Ardèche ($50 \mu\text{m}$), le Gier ($47 \mu\text{m}$) et la Saône ($22 \mu\text{m}$) et avec US pour l'Arve ($35 \mu\text{m}$). En crue hors Guiers (car prélèvement par CMO et non PAP), les d50 sont plus distribués avec des valeurs comprises entre 20 et $72 \mu\text{m}$ sans US et 12 et $45 \mu\text{m}$ avec US. Comme observé pour Jons dans le chapitre précédent, les d50 diminuent avec les US et augmentent lors des crues. Cette augmentation lors des crues est plus marquée sur certains affluents (Bourbre, Drome, Fier, Jons). On peut toutefois noter des exceptions avec la Saône (pas de différence base et crue) et Jons (augmentation avec les US). Cette augmentation à Jons peut s'expliquer par un nombre d'échantillon plus élevé (par exemple 76 données avec US contre 21 données sans US lors des crues) et une étendue des d50 plus grandes ($3 - 962 \mu\text{m}$ avec US contre $10 - 80 \mu\text{m}$ sans US).

Si le d50 augmente généralement lors des crues, il n’y a cependant pas systématiquement une relation significative entre le d50 et le flux de MES associé au même prélèvement (Figure 4).

Tableau 4. D50 moyen pour les prélèvements par pièges à particules dans l’ensemble des stations, par hydrologie et par utilisation des ultrasons. L’absence d’écart type indique qu’un seul prélèvement était disponible. * Les prélèvements sur le Guiers ont été réalisés par CMO en l’absence de prélèvements par PAP.

Station	Base		Crue	
	mean d50 sans US	mean d50 avec US	mean d50 sans US	mean d50 avec US
Ain		18.02 ± 1.17		22.95 ± 5.47
Andancette	30.07 ± 7.68	14.58 ± 3.13	29.63 ± 9.29	16.71 ± 4.14
Ardeche	49.95 ± 7.55	25.85 ± 5.58	54.92 ± 0.11	29.79 ± 3.04
Arles	29.14 ± 9.75	18.84 ± 5.56	38.93 ± 20.51	25.74 ± 7.42
Arve		34.7 ± 10.74		39.22 ± 15.17
Bourbre		13.69 ± 10.07	56.58 ± 2.71	24.42 ± 10.07
Drome	37.44 ± 13.68	20.28 ± 6.88	55.94	33.61 ± 4.13
Durance	35.03 ± 24.82	19.26 ± 10.97		
Fier	33.11 ± 10.3	18.19 ± 6.95	71.65 ± 29.49	43.68 ± 13.96
Gardon	34.98 ± 7.48	23.4 ± 2.86		25.34
Gier	46.67 ± 10.34	27.42 ± 8.93	53.97	29.99 ± 5.79
Guiers*	28.32 ± 3.47	19.16 ± 1.7	10.48	9.1
Isere	27.84 ± 20.91	19.1 ± 9.23	33.25 ± 17.74	25.08 ± 6.37
Jons	27.73 ± 8.43	30.85 ± 161.47	40.89 ± 12.58	45.14 ± 133.27
Saone	21.74 ± 5.83	11.98 ± 3.08	19.78 ± 3.8	12.42 ± 1.53

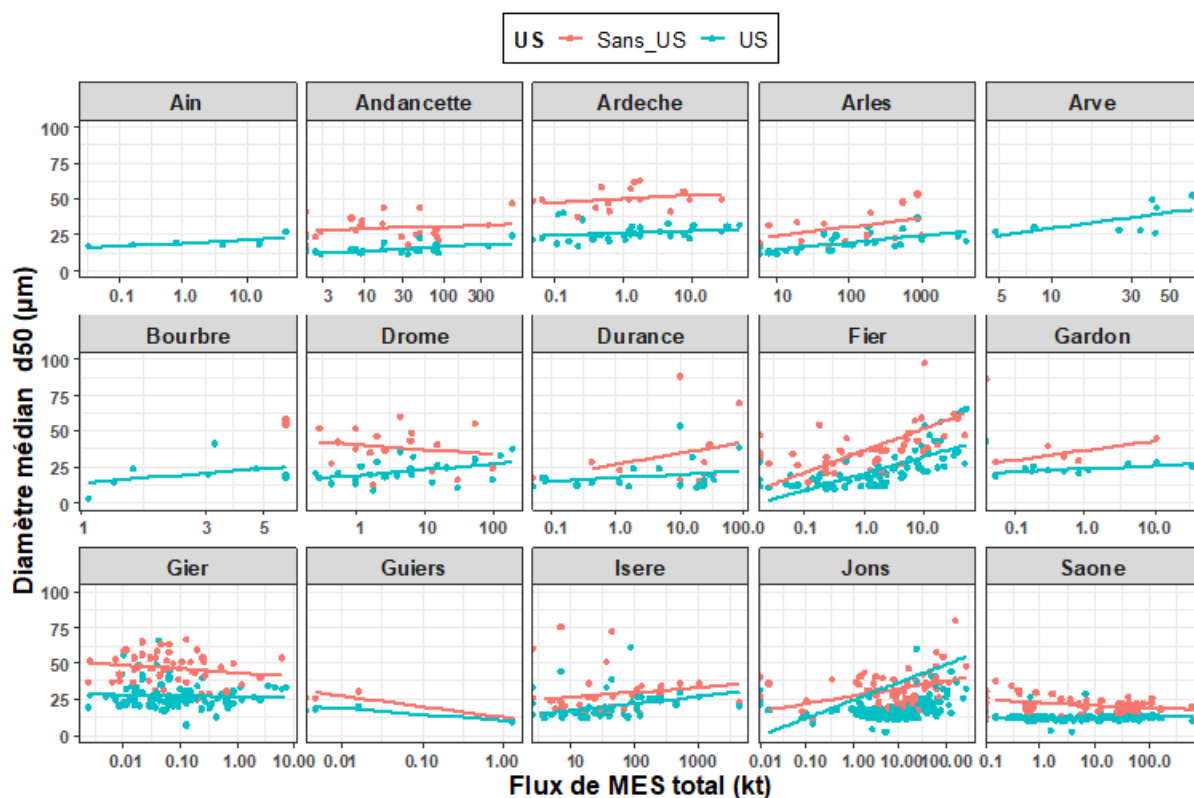


Figure 4. Variation du diamètre médian en fonction du flux de MES total pour les prélèvements par PAP des différentes stations en fonction de l'utilisation des ultrasons. L'axe des flux est en logarithme base 10.

Si on regarde les degrés d'agrégation (Figure 5), on remarque à nouveau qu'ils sont supérieurs en module par rapport aux crues, et à nouveau proche de 50% comme observé à Jons précédemment avec quelques stations plus faibles (Arles, Durance, Gardon et Isère). Pour la Bourbre, le degré d'agrégation semble élevé mais il faudrait plus d'échantillons pour le confirmer (n = 2). Pour aller plus loin, le degré d'agrégation augmente avec l'augmentation du d50 effectif (Figure 6), comme on le trouve dans la littérature (Phillips and Walling 2005, Grangeon *et al.* 2012), à l'exception du Fier.

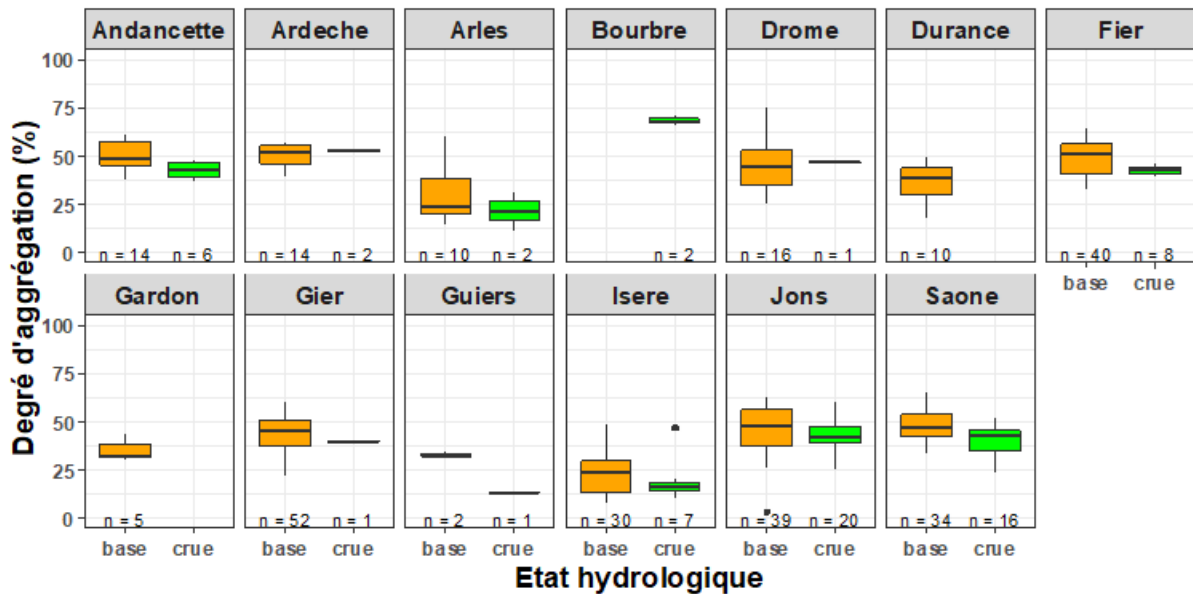


Figure 5. Boxplot des degrés d'agrégation calculés aux différentes stations pour les prélèvements par PAP selon l'état hydrologique. Pour le Guiers il s'agit des prélèvements par centrifugeuse mobile.

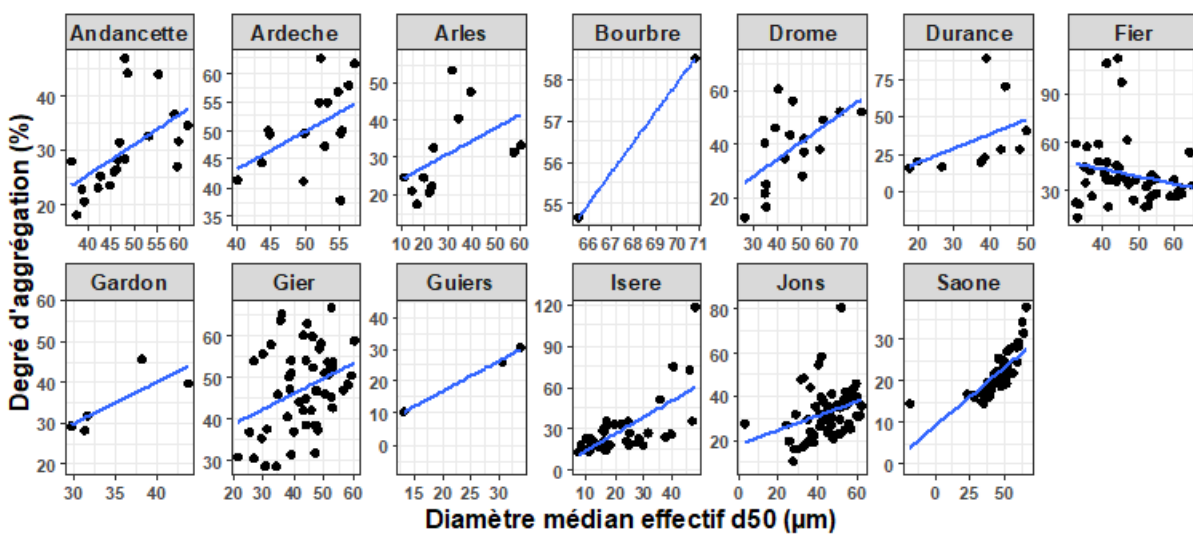


Figure 6. Relation entre le diamètre médian effectif (sans ultrason) et le degré d'agrégation des différentes stations pour les prélèvements par PAP. Pour le Guiers il s'agit des prélèvements par centrifugeuse mobile.

Pour les stations avec une chronique suffisamment longue, il est possible d'étudier l'évolution du d50 dans le temps. C'est le cas pour les stations Fier, Gier, Isere, Jons et Saône (PAP, avec US, hors crue) et la station d'Arles (MAN, sans US, hors crue) (Figure 7). Il ne semble pas y avoir de tendance sur le moyen terme, les d50 restent constant sur la période étudiée avec parfois des valeurs extrêmes (faibles ou fortes). Ces valeurs fortes pourraient être attribuées à un léger épisode de crue, insuffisant pour classer l'échantillon comme tel, mais suffisant pour remettre en suspension des sables.

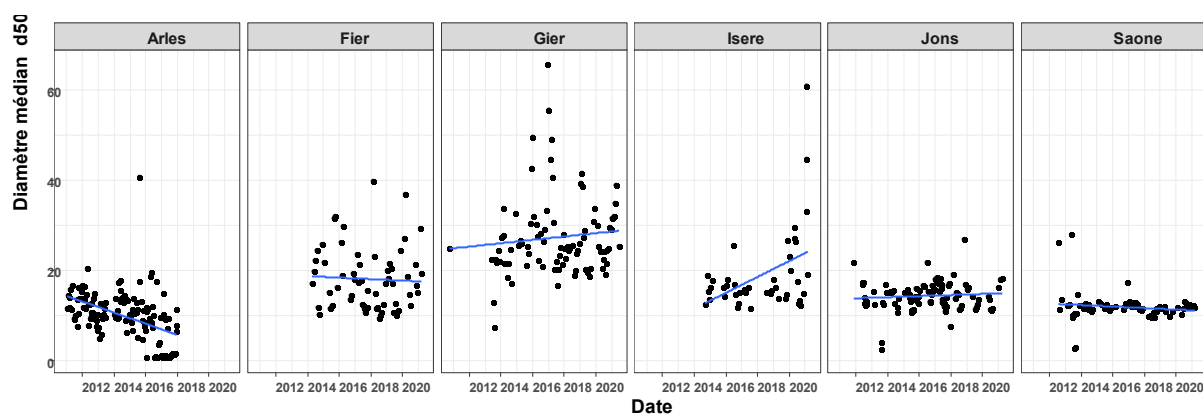


Figure 7. Variation au cours du temps du d50 mesuré aux différentes stations pour des prélèvements par pièges à particules hors crue et après ultrason. Pour Arles les prélèvements sont manuels et sans ultrasons.

3.3 Variation des classes granulométriques entre les stations

Les moyennes des classes granulométriques sont synthétisées dans le **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** et pour simplifier l'interprétation, un graphique a été réalisé pour les données avec utilisation des ultrasons (Figure 8). La répartition des classes est similaire à celle que nous avons vu pour Jons dans le chapitre précédent. Les limons prédominent (>50% avec et sans US), suivis des sables (10-40%) et des argiles (<10%). Certaines stations sont plus sableuses quel que soit l'état hydrologique (Ardèche, Arve, Drome, Gier) ou lors des crues (Fier). Quel que soit l'état hydrologique, la proportion d'argile reste constante, excepté pour la Bourbre (mais peu d'échantillons).

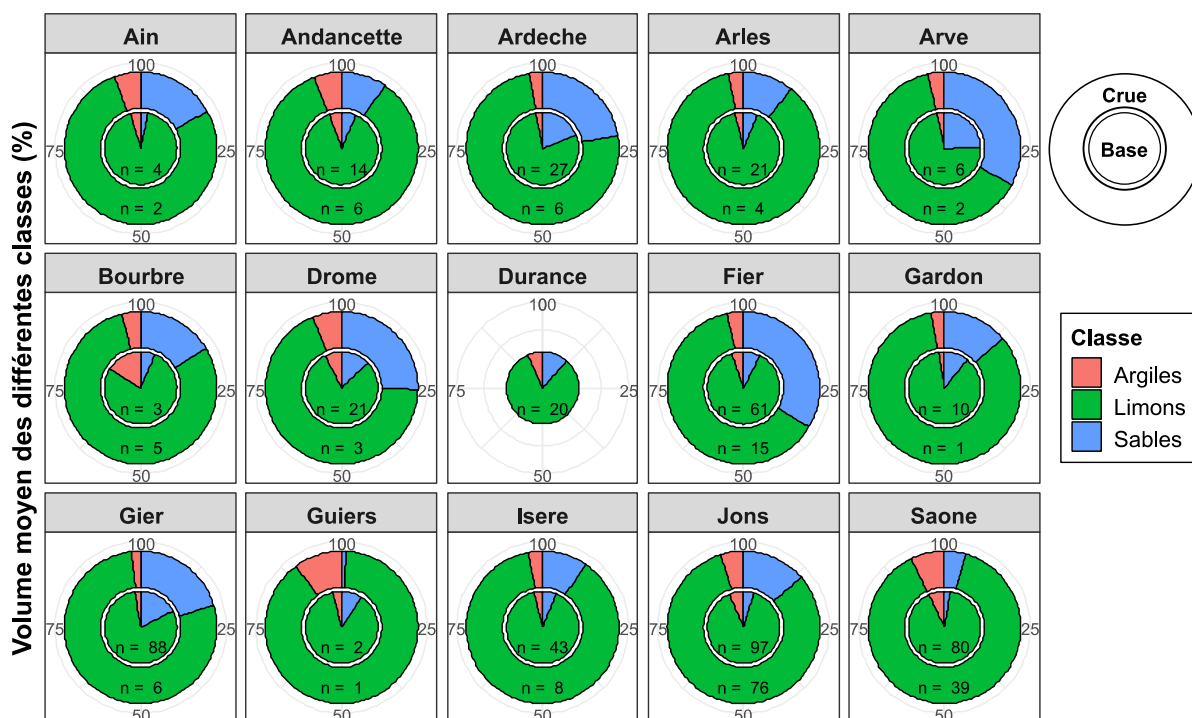


Figure 8. Volume moyen des classes granulométriques mesurés à toutes les stations en fonction de l'état hydrologique pour les prélèvements par piège à particules après utilisation des ultrasons. Pour le Guiers il s'agit des prélèvements par centrifugeuse mobile.

3.4 Flux granulométrique

Les quantités d'argile, limon et sable qui transitent dans les stations de l'OSR ont été calculées en multipliant leur volume par le flux de MES. Les lacunes ont été comblées en utilisant la moyenne par état hydrologique comme déjà fait pour combler les lacunes de contaminants (voir livrable OSR 6 sur le fonctionnement du réseau pour le calcul <https://hal.science/OSR/hal-03750716v1>). Pour simplifier l'interprétation et prendre en compte un maximum de données, seules les mesures après ultrasons ont été utilisées pour calculer les flux, et seules les années avec des mesures ont été conservées.

Tableau 5. Moyenne des flux annuels (Mt) d'argiles, limons et sables mesurés dans les pièges à particules après application des ultrasons.

Station	Argiles (Mt)	Limons (Mt)	Sables (Mt)
Ain	0.52	7.90	1.43
Andancette	5.49 ± 3.84	83.73 ± 61.1	6.84 ± 4.27
Ardeche	0.13 ± 0.06	3.51 ± 1.52	1.00 ± 0.44
Arlès	20.65 ± 21.01	439.35 ± 415.62	42.97 ± 33.46
Arve	2.38 ± 0.40	44.93 ± 8.30	21.04 ± 3.89
Bourbre	0.33 ± 0.14	2.62 ± 0.54	0.38 ± 0.18
Drome	2.10 ± 2.48	22.72 ± 27.05	6.86 ± 8.66
Durance	32.53 ± 36.6	386.07 ± 434.94	54.99 ± 62.43
Fier	0.55 ± 0.43	9.53 ± 6.87	2.67 ± 2.04
Gardon	0.17 ± 0.05	5.27 ± 1.93	0.79 ± 0.20
Gier	0.01 ± 0.01	0.45 ± 0.45	0.11 ± 0.11
Isere	5.63 ± 5.52	143.95 ± 127.88	10.78 ± 9.54
Jons	3.70 ± 1.37	57.06 ± 22.32	7.93 ± 5.32
Saone	2.43 ± 0.91	30.07 ± 10.55	1.24 ± 0.76

Comme vu précédemment, la granulométrie ne change pas significativement pour une même hydrologie (base ou crue). Le flux des argiles/limons/sables est donc conditionné par le flux de MES comme on peut le noter à Jons sur la figure ci-dessous.

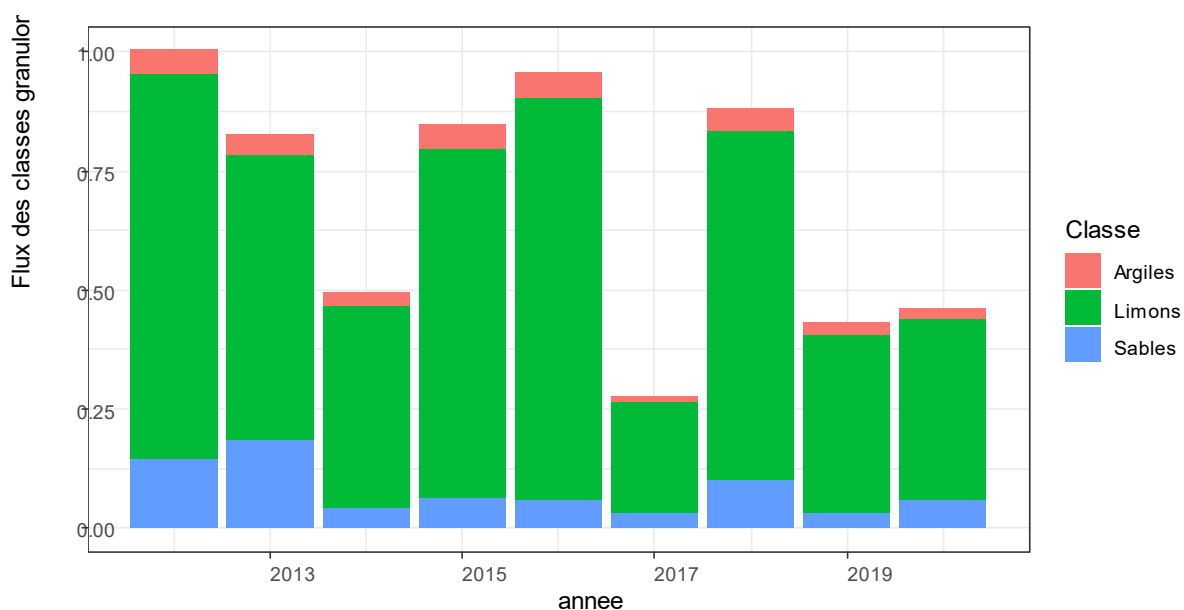


Figure 9. Évolution temporelle du flux annuel des classes granulométriques à Jons pour les prélèvements par piège à particules et après utilisation des ultrasons.

4. Matière organique dans les MES du Rhône et de ses affluents

4.1 Intercomparaison des méthodes à Jons

Comme pour la granulométrie, seules les données obtenues à la station de Jons ont été utilisées pour comparer les différentes méthodes de prélèvements sur les teneurs en COP et les rapports C/N des MES. La méthode de prélèvement manuelle (MAN) a été exclue de cette comparaison étant donné le peu de données de COP et NT pour ce type de prélèvement. A cette station, la concentration moyenne en COP est respectivement pour les prélèvements par CFI, CMO et PAP de 36.4 ± 16.5 g/kg (n=144), 32.8 ± 15.2 g/kg (n=62), 31.4 ± 7.7 µm et 29.8 ± 11.3 g/kg (n=175).

Contrairement à la granulométrie, il n'est pas observé de différences significatives de concentrations en COP dans les MES prélevées par centrifugation (mobile ou fixe) ou par PAP (Figure 10). Ceci avait déjà été montré par Masson et al. (2018) dans une étude où les concentrations en COP des MES prélevées à Jons par PAP avaient été comparées à celles mesurées dans les deux prélèvements ponctuels réalisés par centrifugation lors du déploiement et du retrait de chaque PAP. Il est toutefois à noter que des concentrations plus faibles dans les PAP (par rapports à la référence que constitue l'échantillonnage par centrifugation) ont été observées en période estivales lors de déploiements d'un mois (Masson et al., 2021). Des études complémentaires vont permettre de mieux cerner cette éventuelle perte de matière organique dans ces conditions très particulières (périodes estivales avec faibles concentrations en MES et déploiement de MES d'un mois).

Les concentrations en COP sont significativement plus faibles en période de crue qu'en période de base (Figure 10). Ce phénomène, communément observé dans les rivières (e.g. Paolini, 1995; Veyssy et al., 1998) est expliqué par une dilution des particules autochtones riches en matière organique (algues, phytoplancton...) par des particules appauvries en matière organique issues de l'érosion des sols durant les crues (Meybeck, 1982).

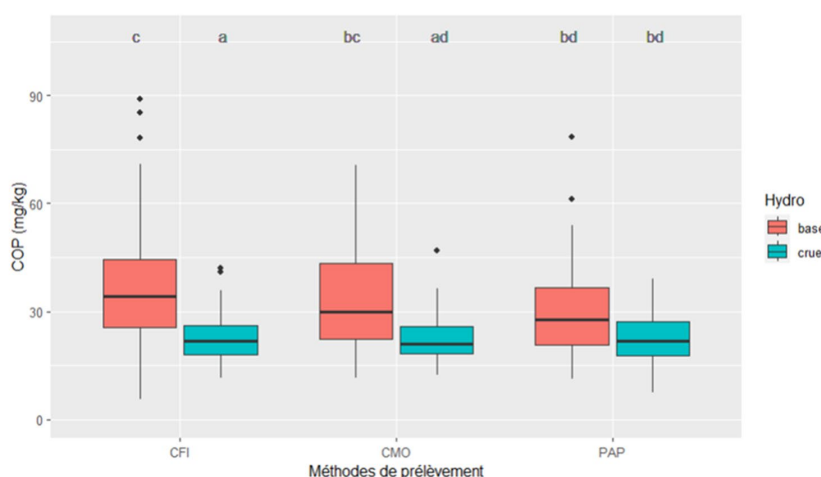


Figure 10. Boîtes à moustache des concentrations en COP mesurées dans les MES prélevées à la station de Jons par centrifugation fixe (CFI) et mobile (CMO) et par pièges à particules (PAP) lors de périodes hydrologiques de base (rose) ou crues (bleu).

Les rapports C/N mesurés dans les MES prélevés à Jons par CFI varient de 3.5 à 20.8 avec une moyenne de 8.9 (n=67). Les rapports C/N mesurés dans les MES prélevés par PAP varient de 4.0 à 26.4 avec une moyenne de 9.9 (n=115). Peu de différences sont observées entre les rapports C/N mesurés par les deux méthodes de prélèvement CFI et PAP. Ces résultats montrent que l'influence de la méthode de prélèvement sur la nature des MES vis-à-vis de la matière organique est négligeable.

Une différence de rapport C/N est observée en fonction de la période hydrologique. Les rapports C/N semblent être légèrement plus élevés en période de crue qu'en période base. Ce résultat très préliminaire est en phase avec les deux hypothèses exprimées précédemment :

- les MES autochtones ont un rapport C/N plus faible que les MES terrigènes ;
- les MES terrigènes sont majoritairement prélevées en période de crue.

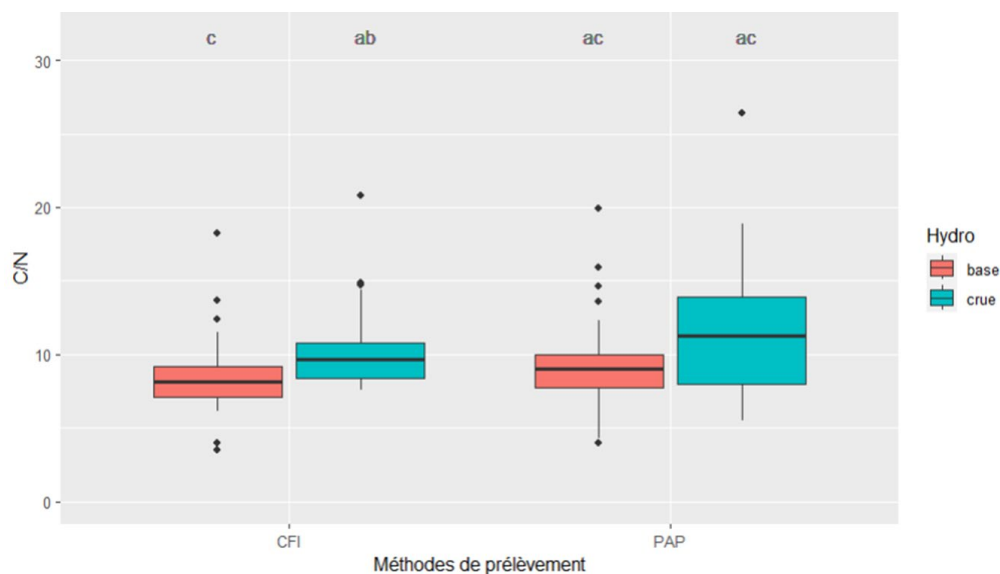


Figure 11. Boîtes à moustache des rapports en COP et NT (C/N) mesurés dans les MES prélevés à la station de Jons par centrifugation fixe (CFI) et par pièges à particules (PAP) lors de périodes hydrologiques de base (rose) ou crues (bleu).

4.2 Variations des teneurs en COP entre les stations

Les concentrations en COP dans le Rhône et ses affluents varient de 3.2 à 284 g/kg. Indépendamment des conditions hydrologiques, les concentrations en COP sont les plus élevées dans le Gier, la Bourbre, l'Ardèche et le Guiers. Les concentrations les plus faibles sont mesurées dans l'Arve, la Durance, l'Isère, Le Rhône à Arles et à Jons.

Les concentrations en COP sont généralement plus faibles en période de crue qu'en période de base, excepté pour l'Ardèche, l'Arve et la Drôme.

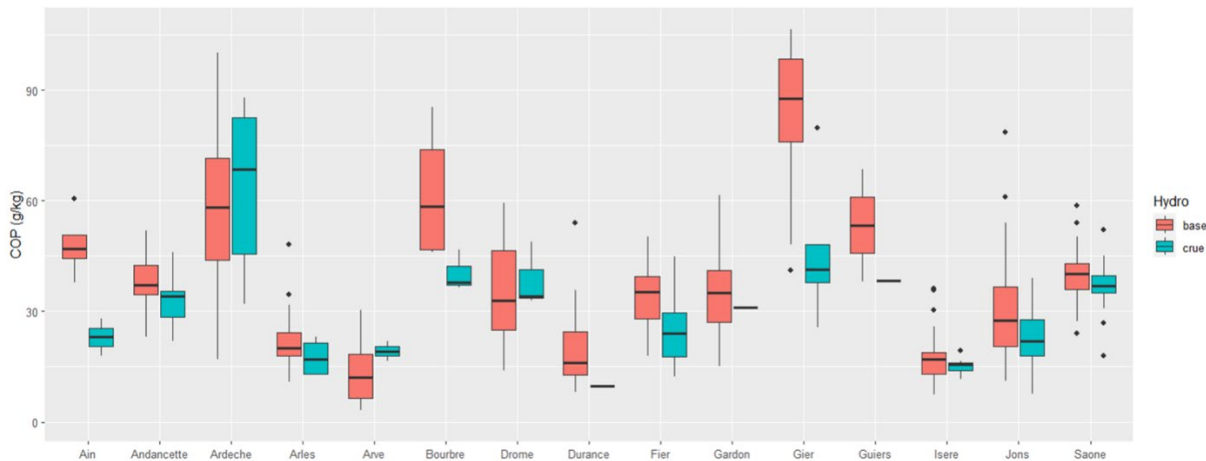


Figure 12. Boîtes à moustache des concentrations en COP pour les différentes stations en fonction des conditions hydrologiques de base et de crue.

Des relations négatives plus ou moins fortes en fonction des stations sont observées entre les teneurs en COP mesurées dans les PAP et les flux de MES estimés durant la période de déploiement, excepté pour 2 des 3 stations pour lesquelles les concentrations en base et crue n'étaient pas différents (Ardèche et Drome). Comme discuté précédemment pour la station de Jons, ce phénomène de diminution de concentrations en COP en période de crue et quand les flux de MES sont importants est dû à la dilution des particules terrigènes plus faibles en COP pendant les périodes de crue. Pour l'instant, aucune explication ne peut expliquer le fait que ce phénomène de dilution ne soit pas visible pour l'Ardèche et la Drome.

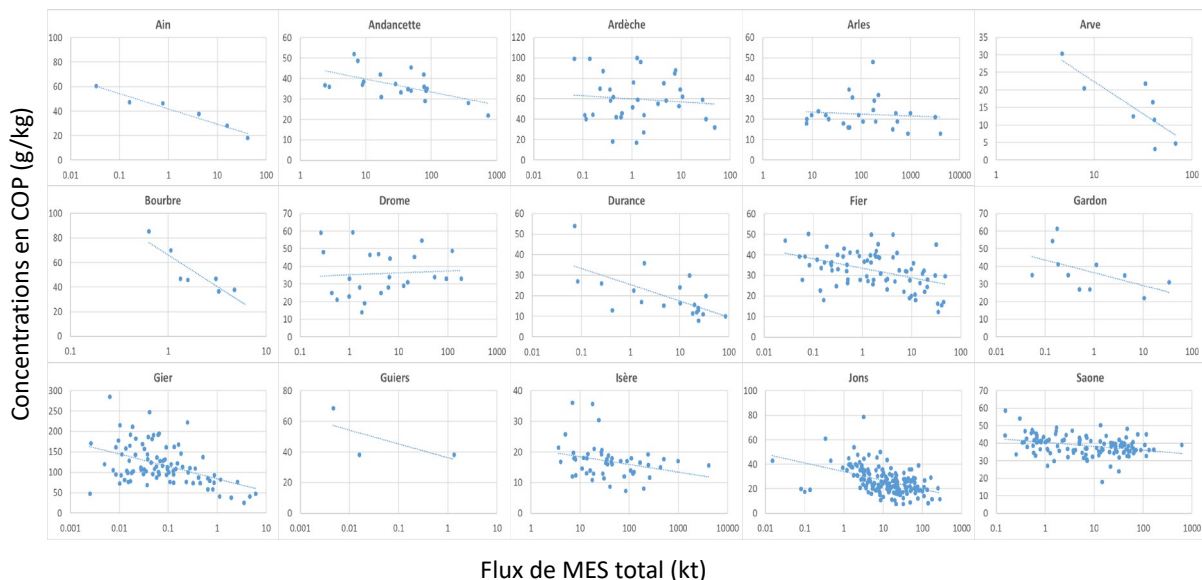


Figure 13. Variation des concentrations en COP en fonction des flux de MES pour les prélèvements par PAP au niveau des différentes stations. L'axe des flux est en logarithme base 10.

4.3 Variations de la nature de matière organique entre les stations

Les rapports C/N mesurés dans les MES du Rhône et de ses affluents varient de 4.0 à 59.4 (Figure 14). Pour chaque affluent, ces rapports sont similaires ou plus élevés en période de crue qu'en période de base. Cela traduit bien un apport de particules terrigènes appauvries en azote et donc avec des rapports C/N plus élevés en période de crue. Seule le Guiers présente des valeurs de C/N plus élevés en période de base ; mais devant le peu de valeurs collectées pour cet affluent (1 en crue et 2 en base), ce résultat reste à confirmer. Les valeurs les plus basses mesurées en période de base sont comprises entre 4 et 9 pour tous les affluents (excepté pour le Guiers avec une valeur minimale à 12.9), ce qui pourrait correspondre à une signature de matière organique autochtone. Ces rapports C/N pourraient être utilisées comme signature d'origine terrigène vs. autochtone dans l'étude du traçage de l'origine des MES du Rhône. Enfin, parmi toutes les stations étudiées, la Drôme semble être un peu différente des autres avec les valeurs de C/N les plus élevées. Ces fortes valeurs, particulièrement en période de crue, pourraient être expliquées par un apport terrigène de matière organique très appauvri en azote et donc une matière organique très minéralisée et humifiée. La grande dispersion du rapport C/N observée durant le régime de base pour la Drôme pourrait être la conséquence de ce rapport C/N très élevé pour les particules terrigènes et une production de matière organique autochtone plus faible et variable que pour les autres affluents du Rhône. Cette particularité non expliquée à ce jour, pourrait provenir d'une occupation des sols et d'usages des sols (en particulier l'agriculture) sur le bassin de la Drôme différents des autres bassins du Rhône.

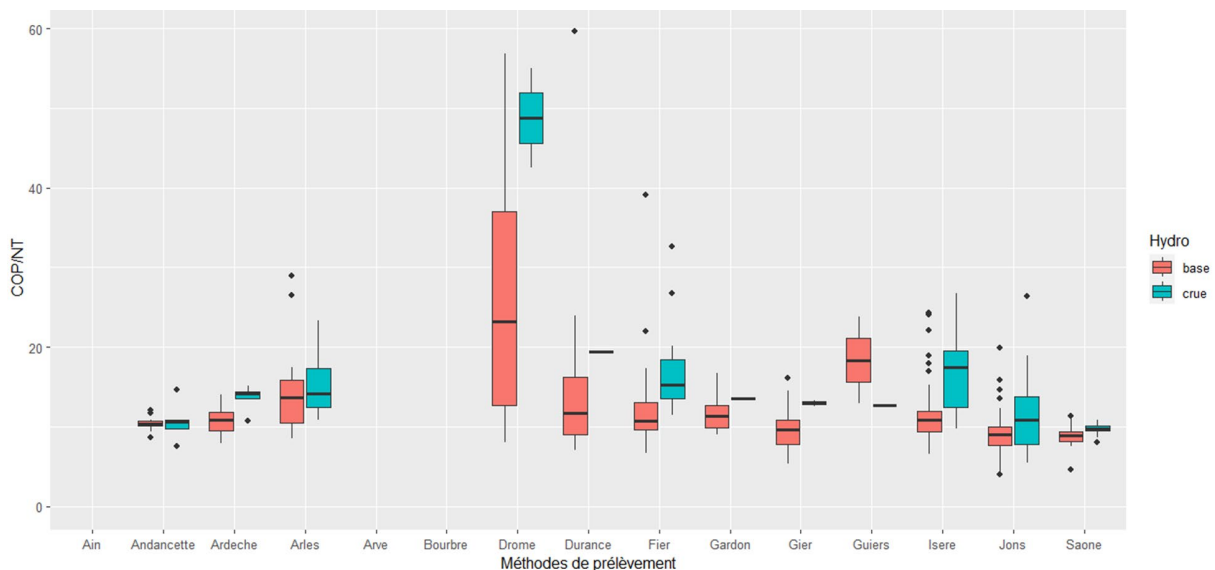


Figure 14. Boîtes à moustache des rapports C/N pour les différentes stations en fonction des conditions hydrologiques de base et de crue.

5. Relation entre la granulométrie et la matière organique

Le carbone organique particulaire est un paramètre qui peut être affecté par la granulométrie mais qui peut également avoir une incidence sur les concentrations des contaminants. Il convient donc de regarder dans un premier temps sa relation avec la granulométrie (Figure 15). De manière générale, le COP semble diminuer avec l'augmentation du d50. Cette relation peut être expliquée par le fait que les granulométries les plus élevées sont observées lors des vitesses de courant les plus importantes, et donc pendant les plus forts débits. Dans ce cas, les particules proviennent principalement d'apports terrigènes et donc appauvries en COP. Ce phénomène est d'autant plus visible pendant les crues (principalement en saisons hivernales et au début du printemps) en absence d'apports de matière organique autochtone. Néanmoins, le COP augmente également dans certains cas lors du module (Ardèche, Gier, et Saône). Sur l'Ardèche et le Gier, l'augmentation du d50 pourrait être liée à des apports de matière organique (pour le Gier d'origine domestique avec des rejets d'une STEP en dysfonctionnement ou de réseau d'assainissement) lors des périodes de faibles débits et donc l'augmentation du COP. Pour la Saône, un pic de COP est observé pour un même d50 (entre 10 et 20 μm). Ceci est expliqué par la très faible variabilité de granulométrie entre les périodes de base et de crue par rapport aux plus fortes variations observées pour le COP.

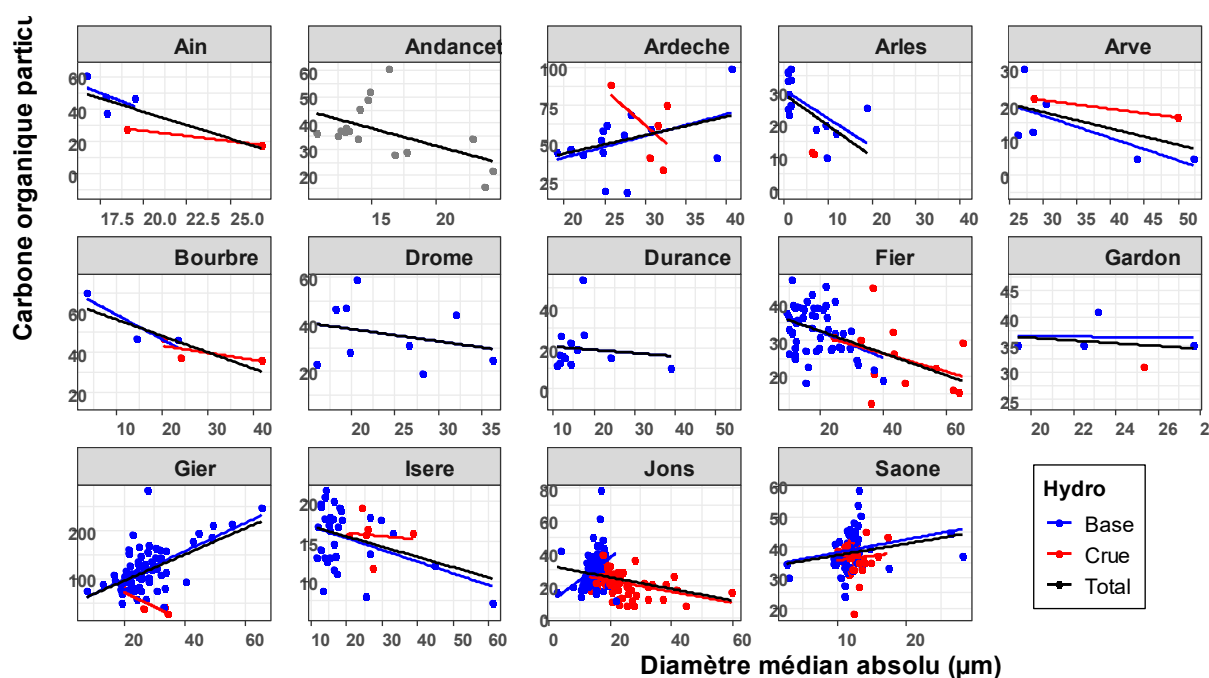


Figure 15. Relation entre le diamètre médian (d50) absolu (après ultrason) et les concentrations en carbone organique particulaire pour toutes les stations sur les prélèvements par PAP selon l'hydrologie.

6. Relations avec les contaminants

Tout comme les données granulométriques, la répartition des échantillons avec un couple granulométrie (avec US) et contaminant est très hétérogène entre les contaminants et entre les stations (Tableau 6). Les métaux sont plus représentés sur la plupart des stations que les

PCB et les radionucléides. Pour interpréter les résultats, seules les couples granulométrie/contaminant avec 5 ou plus données seront conservés par station.

Tableau 6. Nombre de couples granulométrie et contaminants, et couples matière organique (données complètes COP, N et C/N) et contaminants disponibles par contaminants ou famille de contaminants (pour les métaux : As, Cd, Co, Cu, Ni, Pb, Zn ; PCB : somme des concentrations des PCB indicateurs) et par station. Les valeurs en bleu montrent les couples de données en nombre insuffisant (<5) pour interpréter correctement les résultats.

Parametre	AIN	AND	ARD	ARL	ARV	BOU	DRO	DUR	FIE	GAR	GIE	ISE	JON	SAO
Hg	6/0	21/21	29/27	26/26	8/0	6/0	22/22	19/19	77/70	12/12	89/72	46/46	174/114	117/75
Métaux	0/0	21/21	19/19	26/26	3/0	0/0	22/22	12/12	56/55	12/12	60/59	40/40	30/30	108/74
PCB	6/0	0/0	6/4	0/0	5/0	6/0	0/0	4/4	22/17	0/0/0	27/13	23/23	91/36	51/16
Ac228	2	2	21	0	0	1	12	9	22	8	14	80	18	2
C14	0	0	19	24	0	0	6	9	18	4	7	40	9	0
Cs137	2	2	21	0	0	1	13	9	23	8	14	80	19	2
K40	2	2	21	0	0	1	12	9	22	8	14	80	18	2
TOL	0	0	6	22	0	0	6	4	20	3	4	42	8	0

6.1 Cas du mercure et des métaux

Le mercure est un contaminant qui est mesuré dans la quasi-totalité des MES des échantillons de l'OSR. Les concentrations sont bancarisées dans BDOH. Le Tableau 7 recense les corrélations (test de Pearson) entre les concentrations en mercure et les caractéristiques des MES (d50, COP, NT et C/N) pour chaque station étudiée. Pour de nombreuses stations (Ardèche, Arve, Fier, Gier, Isère, Saône et le Rhône à Jons, Andancette et Arles), des corrélations positives sont observées entre les concentrations mercure et les concentrations en COP et NT. Pour la plupart de ces stations, une corrélation négative est aussi observée entre les concentrations en Hg et le rapport C/N. Ceci peut s'expliquer pour la forte affinité du mercure avec la matière organique particulaire. Les résultats suggèrent aussi que les concentrations en mercure sont plus importantes dans les particules avec un rapport C/N faible, ce qui pourrait montrer une plus grande affinité du mercure pour la matière organique autochtone par rapport à la matière organique terrigène.

Tableau 7. Coefficients de corrélation (test de Pearson) entre les concentrations en mercure et les différents paramètres caractérisant les MES : d50, COP, NT et C/N. Seules les coefficients pour les corrélation significative (p-value < 0.05) sont indiquées dans le tableau ; les cases remplies d'un tiret indiquent une absence de corrélation ; la mention N.D. indique un test non réalisé par manque de données.

Paramètre	AIN	AND	ARD	ARL	ARV	BOU	DRO
d50	-	-	-	-	-	-	-
COP	-	0.72	0.81	0.48	0.84	-	-
NT	N.D.	0.53	0.83	0.76	N.D.	N.D.	-
C/N	N.D.	-	-	-	N.D.	N.D.	-
Paramètre	DUR	FIE	GAR	GIE	ISE	JON	SAO
d50	-	-0.76	-0.58	-	-0.65	-0.31	-
COP	-	0.63	-	0.27	0.29	0.43	-
NT	-0.49	0.74	-	0.30	0.62	0.58	0.38
C/N	0.49	-0.36	-	-0.37	-0.58	-0.35	-0.47

Des corrélations négatives sont aussi observées pour quelques stations (Fier, Gardon, Isère et Rhône à Jons) entre les concentrations en mercure et les valeurs de d50. Une dépendance entre matière organique et granulométrie n'étant pas à exclure (diminution générale des teneurs en COP avec l'augmentation de la granulométrie ; Figure 15), il est difficile de conclure sur un effet réel de la taille des particules sur les concentrations en mercure de ces 4 stations. Aucune corrélation entre les concentrations en Hg et celles en COP ou NT n'a été observée pour la Drôme et la Gardon. Pour la Drôme, ceci pourrait s'expliquer par le fait que les concentrations en mercure mesurées dans les MES font partie des concentrations les plus faibles mesurées dans les MES de l'OSR et que les rapports C/N des MES de la Drôme sont très élevées par rapport aux autres stations (Figure 14). Enfin, la Durance apparaît elle aussi atypique car c'est une corrélation négative qui est observée entre Hg et NT et une corrélation positive entre Hg et le rapport C/N. Ceci est particulièrement étonnant et inexplicable à ce jour, d'autant plus que les MES de la Durance ont des caractéristiques similaires à celle de l'Isère (mêmes gammes de COP et C/N) où des relations Hg et COP plus classiques ont été observées.

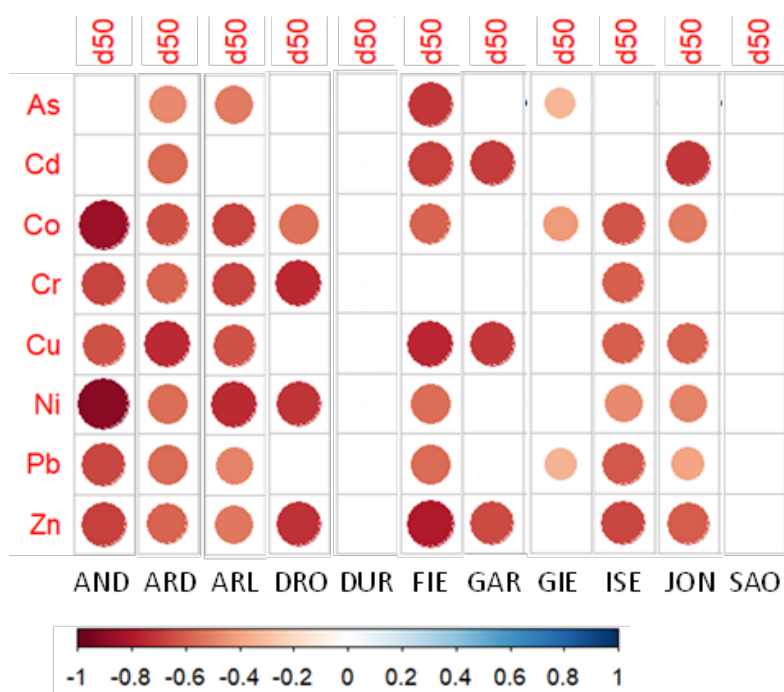


Figure 16. Corrélations (test de Pearson) obtenues entre la granulométrie (d50) et les concentrations en métaux (As, Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb et Zn) pour les principaux affluents du Rhône (Ardèche, Drôme, Durance, Fier, Gardon, Gier, Isère et Saône). Les corrélations significatives ($p < 0.05$) sont représentées par des ronds dont la couleur dépend du coefficient de corrélation (entre -1 pour la couleur rouge et +1 pour la couleur bleue).

Les relations entre granulométrie et métaux ont été étudiées au travers des corrélations (test de Pearson) obtenues entre le d50 et les concentrations en métaux pour chaque station de l'OSR (Figure 16). Pour l'Isère, le Fier, l'Ardèche, le Rhône à Arles. La plupart des métaux étudiés ont des concentrations significativement corrélées négativement aux valeurs de d50. Cette diminution des concentrations métalliques avec l'augmentation de la granulométrie est classiquement interprétée par une affinité plus importante des métaux pour les particules les plus fines due à l'augmentation de leur surfaces spécifiques (Duinker, 1986; Olsen et al., 1982). Ce phénomène n'est visible que pour certains métaux pour la Drôme (pour Co, Cr, Ni et Zn) et

du Gardon (Cd, Cu et Zn). En ce qui concerne le Gier, seulement 3 métaux (Pb, Co, As) sont corrélés avec le d50 et les coefficients de corrélation sont beaucoup plus faibles que pour les stations précédentes. Ceci pourrait être expliqué par des apports importants en matière organique anthropique (encore une fois, rejet de STEU en dysfonctionnement et rejets de réseau d'assainissement) qui augmentent la granulométrie des particules (formation de floccs et d'agrégats organiques) et qui modifient alors les relations entre métaux et granulométrie classiquement observées. Enfin, aucune relation significative entre d50 et concentrations en métaux n'a été observée pour la Durance et la Saône. Encore une fois, la très faible variabilité de granulométrie observée pour la Saône est certainement à l'origine de cette absence de corrélation.

Les relations entre les concentrations en MES et la matière organique (au travers des concentrations en COP, NT et rapport C/N) sont plus hétérogènes que celles observées avec le mercure. Deux stations présentent de fortes corrélations positives entre les concentrations en métaux et celles en COP et NT : le Rhône à Andancette et le Fier. Ces relations sont un peu moins marquées (et pour une partie seulement des métaux) pour la Saône et l'Isère, l'Ardèche et le Rhône à Arles. Les MES de l'Isère, le Fier et le Rhône à Arles présentent des corrélations négatives entre la plupart des métaux et le rapport C/N. Encore une fois, il est difficile d'évaluer le rôle de la matière organique dans les variations des concentrations en métaux étant donné les relations qui peuvent être observées entre la granulométrie et la teneur en matière organique dans les MES (diminution générale des teneurs en COP avec l'augmentation de la granulométrie ; Figure 15).

Quasiment aucune relation entre les métaux et la matière organique n'est observée pour la Drôme, la Durance, le Gardon et le Rhône à Jons.

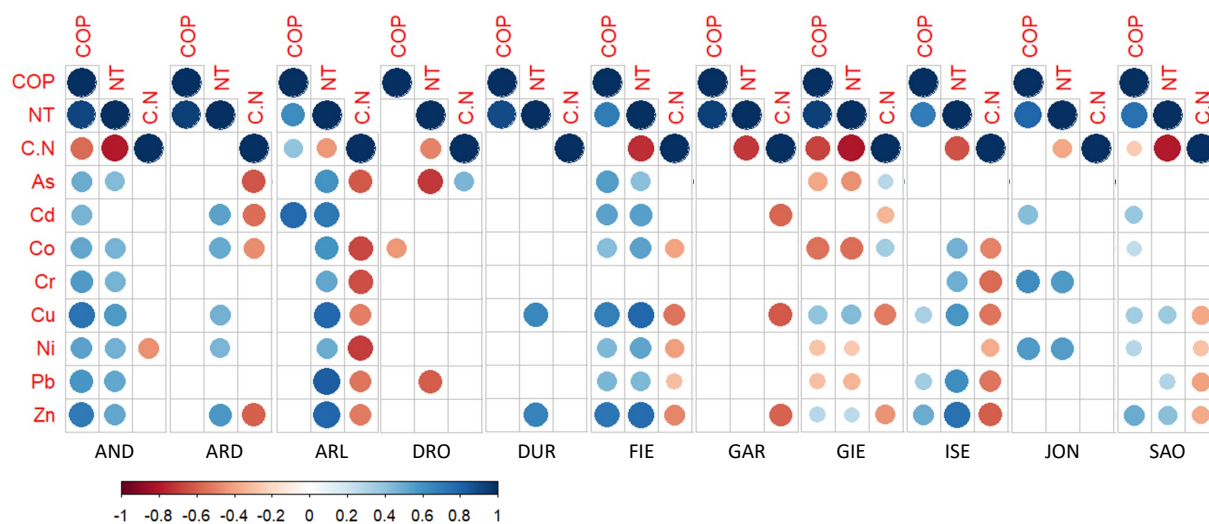


Figure 17. Corrélations (test de Pearson) obtenues entre les teneurs en COP, NT et C/N (noté C.N) et les concentrations en métaux (Hg, As, Cd, Co, Cr, Cu, Ni, Pb et Zn) pour le Rhône à Arles et Jons et des affluents du Rhône (Gier, Drôme, Isère et Saône) et le Rhône à Jons et Arles. Les corrélations significatives ($p < 0.05$) sont représentées par des ronds dont la couleur dépend du coefficient de corrélation (entre -1 pour la couleur rouge et +1 pour la couleur bleue).

6.2 Cas des PCB

Les données en PCB ne sont disponibles que pour les affluents du Haut-Rhône, l'Isère et le Gier. Etant donné les faibles niveaux de quantification des PCB les plus légers, l'étude de comparaison entre concentrations en PCB et granulométrie a été réalisée sur la somme des concentrations des 7 PCB indicateurs (PCBi) : PCB28, PCB52, PCB101, PCB118, PCB138, PCB153 et PCB180. De façon générale, la concentration en PCBi n'est pas corrélée aux caractéristiques des MES (d50, COP, NT et C/N). Ceci est cohérent avec les résultats de l'étude de Masson et al. (2018) dans laquelle les concentrations en PCB mesurées dans les MES collectées par PAP à Jons ne semblaient pas être influencées par une augmentation de la granulométrie lors des crues par rapport aux MES collectées par CFI. Une corrélation négative avec la granulométrie (d50) est observée pour le Fier, le Gier et la Saône. Pour le Fier et le Gier, une corrélation positive avec les concentrations en COP est aussi observée. Pour l'Isère, une corrélation est observée entre les concentrations en PCBi et celles en NT. Enfin une forte corrélation (mais seulement 6 mesures) est observée pour les MES de la Durance entre les concentrations en PCBi et le rapport C/N. Ceci avait aussi été observé pour le mercure. Il est à noter que les concentrations en PCBi dans les MES de la Durance sont très faibles comparées aux autres stations.

Tableau 8. Coefficients de corrélation (test de Pearson) entre les concentrations en mercure et les différents paramètres caractérisant les MES : d50, COP, NT et C/N. Seules les coefficients pour les corrélation significative (p-value < 0.05) sont indiquées dans le tableau ; les cases remplies d'un tiret indiquent une absence de corrélation ; la mention N.D. indique un test non réalisé par manque de données.

Paramètre	AIN	ARD	ARV	BOU	DUR	FIE	GIE	ISE	JON	SAO
d50	-	-	-	-	-	-0.76	-0.39	-	-	-0.34
COP	-	-	-	-	-	0.63	0.40	-	-	-
NT	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	-	-	-	0.52	-	-
C/N	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	0.99	-	-	-	-	-

6.2.1 Cas des radionucléides

Pour cette étude, 4 radionucléides (Ac228, C14, Cs137, K40) ont été considérés car leur fréquence de quantification était suffisante pour étudier les tendances. A Arles, seules les mesures de C14 ont été associées à des mesures granulométriques et de COP. Dans l'ensemble, si une diminution des concentrations est observée sur plusieurs stations avec l'augmentation de la taille de particules (Arles, Drome, Durance, Fier, Gier), celle-ci est faible et rarement significative (p-value < 0.01) pour l'ensemble des radionucléides (Figure 18). A Jons, les concentrations diminuent significativement avec l'augmentation du d50 à l'exception du C14. Pour ce radionucléide, les concentrations sont uniquement significativement corrélées avec le d50 à Arles. Sur l'Ardèche, le Gardon, l'Isère et la Saône aucune corrélation n'est observée. Concernant le COP, seules deux relations significatives sont observées : dans le Fier pour le Cs137 et à Jons pour le K40. Ces résultats montrent qu'il ne semble pas y avoir une relation universelle entre la nature des particules (granulométrie et COP) et la concentration des contaminants radioactifs.

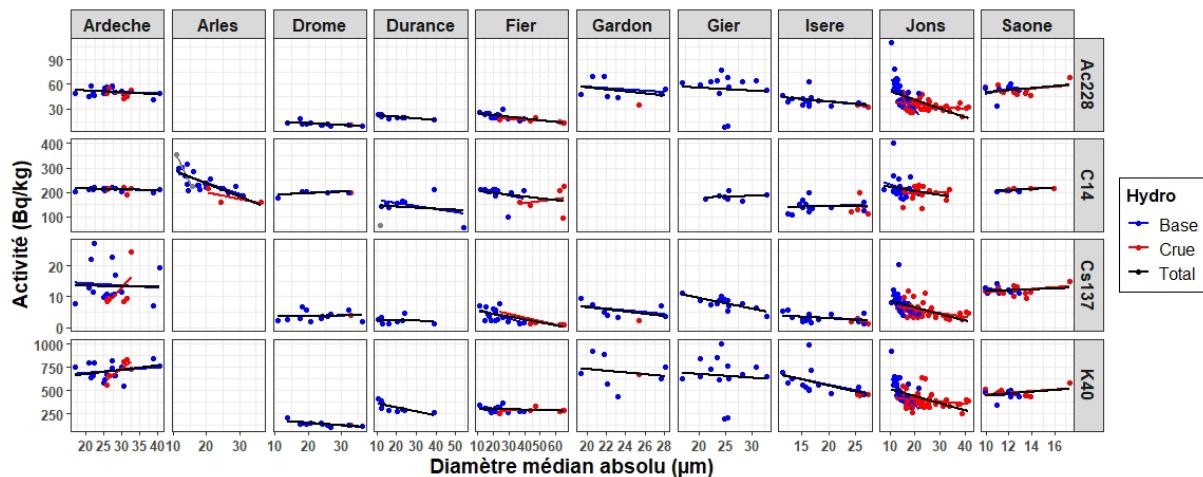


Figure 18. Variation de la concentration des radionucléides en fonction du d50 et de l'état hydrologique, sur les prélèvements par PaP et après ultrasons.

7. Conclusion et perspectives

Les nombreuses données recueillies dans le cadre de l'OSR sur les MES du Rhône et de ses affluents ont permis d'étudier les variations de granulométrie et de matière organique des MES à l'échelle du Rhône :

- Les différentes techniques de prélèvement des MES mises en œuvre à la station de Jons permettent de confirmer les résultats précédemment obtenus : les pièges à particules tendent à collecter des MES plus grossières que les autres types de prélèvement (centrifugation ou prélèvement manuel).
- De façon générale, la granulométrie des MES du Rhône et de ses affluents est homogène avec une prédominance de limons quel que soit le régime hydrologique. Lors des crues, la part des sables tend à augmenter alors que la proportion en argile reste constante.
- Le degré d'agrégation des MES tend à diminuer en crue pour tous les affluents. De manière générale, il augmente avec l'augmentation du d50 effectif.
- Pour la première fois, des flux par classes de particules ont été calculés à la station de Jons. Les flux sont majoritairement dominés par les limons au détriment des sables et des argiles.
- Les teneurs en COP des MES sont variables en fonction des stations. Les concentrations les plus élevées sont observées pour le Gier, la Bourbre, l'Ardèche et le Guiers, et les concentrations les plus faibles sont mesurées dans l'Arve, la Durance, l'Isère, Le Rhône à Arles et à Jons.
- Les tendances en COP ont des tendances à diminuer lors des crues où les rapports C/N sont les plus élevés. Le rapport C/N pourrait être un très bon traceur pour l'origine terrigène (rapports C/N > 10) ou autochtone (C/N < 10) de la matière organique.

- Globalement, on peut observer une diminution des concentrations en COP avec l'augmentation de la granulométrie qui peut s'expliquer par un apport plus important de particules terrigènes appauvries en matière organique durant les crues.

Les relations entre contaminants (Hg, métaux, PCB et radionucléide) et les caractéristiques des MES (granulométrie au travers du d50, teneur en COP et nature de la matière organique au travers du rapport C/N) sont complexes :

- Les concentrations en mercure semblent plus influencées par les concentrations en COP et NT que par la granulométrie, ce qui est cohérent avec la forte affinité du mercure pour la matière organique généralement observée dans la littérature.
- Les concentrations en métaux sont généralement plus influencées par la granulométrie que par la matière organique : une augmentation de la granulométrie tend à diminuer les concentrations métalliques ce qui s'explique traditionnellement par la diminution de la surface spécifique des particules les plus grossières. La très faible variation de granulométrie observée pour la Saône est à l'origine de l'absence de corrélation entre métaux et granulométrie.
- Les concentrations en PCB et contaminants radioactifs sont très peu influencées par la granulométrie ou la matière organique. Les variations des concentrations de ces contaminants pourraient être plus liées à la variation de la source de contaminants qu'à la nature des particules.
- Les relations globales entre granulométrie et matière organique observées sur les stations de l'OSR rendent compliquées l'établissement de relations claires entre les concentrations en contaminants et la granulométrie ou la matière organique.

Pour aller plus loin que l'étude des données historiques de l'OSR et fouiller plus en profondeur les relations entre contaminants et granulométrie, une expérimentation de fractionnement granulométrique est en cours. Cette action vise à séparer par classes de taille un échantillon brut, afin de mesurer la répartition des contaminants d'intérêt au sein de ces classes. Comme cette action requiert une quantité significative de matière, elle ne sera réalisée que sur des échantillons de crue. Il est ainsi prévu de l'appliquer pour deux échantillons prélevés sur les principaux affluents.

Le fractionnement est réalisé par voie humide à l'aide d'un arbre à tamis (<20 µm, 20-60 µm, 60-100 µm, 100-200 µm et 200-1000 µm). La porosité des tamis a été sélectionnée en fonction des modes granulométriques que l'on observe sur le Rhône, dans la limite métrologique. En effet, les tamis de faibles porosités sont difficiles à utiliser car très vite colmatés et ceux malgré l'utilisation de la vibration de l'arbre à tamis et l'apport d'eau.

8. Bibliographie

Duinker, J.C. (1986). The role of small, low-density particles on the partition of selected PCB congeners between water and suspended matter (North-Sea area). *Netherlands Journal of Sea Research* 20, 229-238.

[https://doi.org/10.1016/0077-7579\(86\)90045-14](https://doi.org/10.1016/0077-7579(86)90045-14)

Grangeon, T., Legout, C., Esteves, M., Gratiot, N., Vavratil, O. (2012). Variability of the particle size of suspended sediment during highly concentrated flood events in a small mountainous catchment. *Journal of Soils and Sediments* 12(10), 1549-1558.

<https://doi.org/10.1007/s11368-012-0562-5>

Karickhoff, S.W., Brown, D.S., Scott, T.A. (1979). Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments. *Water Research* 13(3), 241-248.

[https://doi.org/10.1016/0043-1354\(79\)90201-X](https://doi.org/10.1016/0043-1354(79)90201-X)

Kelso, J.E. (2018). Organic Matter Sources, Composition, and Quality in Rivers and Experimental Streams. Graduate These, Ecology, Utah State University.

<https://digitalcommons.usu.edu/etd/7354>

Lepage, H., Masson, M., Delanghe, D., and Le Bescond, C. (2019). Grain size analyzers: results of an intercomparison study. *SN Applied Sciences*, 1(9), 1100.

<https://hal.science/OSR/hal-02454916v1>

Masson, M., Angot, H., Le Bescond, C., Launay, M., Dabrin, A., Miège, C., Le Coz, J., Coquery, M. (2018). Sampling of suspended particulate matter using particle traps in the Rhône River: Relevance and representativeness for the monitoring of contaminants. *Science of the Total Environment* 637-638, 538-549.

<https://hal.science/OSR/hal-02015899v1>

Masson, M., Dabrin, A., Dieudé, P., Gruat, A., Richard, L., Dherret, L., Grisot, G., Le Coz, J., Radakovitch, O., Coquery, M. (2021). *Représentativité de l'échantillonnage intégré des matières en suspension dans les rivières à l'aide de pièges à particules*. 27^e Réunion des Sciences de la Terre, Lyon, France.

<https://hal.science/OSR/hal-03588180v1>

Meybeck, M. (1982). Carbon, nitrogen, and phosphorus transport by world rivers. *American Journal of Science* 282, 401-450.

<https://doi.org/10.2475/ajs.282.4.401>

Olsen, C.R., Cutshall, N.H., Larsen, I.L. (1982). Pollutant particle associations and dynamics in coastal marine environments - a review. *Marine Chemistry* 11(6), 501-533.

[https://doi.org/10.1016/0304-4203\(82\)90001-9](https://doi.org/10.1016/0304-4203(82)90001-9)

Paolini, J. (1995). Particulate organic-carbon and nitrogen in the Orinoco River (Venezuela). *Biogeochemistry* 29, 59-70.

<https://doi.org/10.1007/BF00002594>

Pierard, C., Budzinski, H., Garrigues, P. (1996). Grain-size distribution of polychlorobiphenyls in coastal sediments. *Environmental Science and Technology* 30(9), 2776-2783.
[https://doi.org/10.1016/0304-4203\(82\)90001-9](https://doi.org/10.1016/0304-4203(82)90001-9)

Phillips, J.M., Walling, D.E. (1995). An assessment of the effects of sample collection, storage and resuspension on the representativeness of measurements of the effective particle size distribution of fluvial suspended sediment. *Water Research* 29(11), 2498-2508.
[https://doi.org/10.1016/0043-1354\(95\)00087-2](https://doi.org/10.1016/0043-1354(95)00087-2)

Veyssy, E., Etcheber, H., Lin, R.G., Buat-Menard, P., Maneux, E. (1998). Seasonal variation and origin of particulate organic carbon in the lower Garonne river at La Reole (southwestern France). *Hydrobiologia* 391, 113-126.
<https://doi.org/10.1023/A:1003520907962>



Observatoire
des Sédiments
du Rhône

Dispositifs scientifiques cadres



Partenaires scientifiques



Partenaires techniques et financiers



Cofinancé par
l'Union européenne