



**HAL**  
open science

# Devenir des polluants métalliques associés aux sédiments contaminés dans un cours d'eau en relation avec la dynamique sédimentaire

Mathilde Zebracki

► **To cite this version:**

Mathilde Zebracki. Devenir des polluants métalliques associés aux sédiments contaminés dans un cours d'eau en relation avec la dynamique sédimentaire. Chimie. UNIVERSITE PARIS-SUD XI, 2008. Français. NNT: . tel-01180203

**HAL Id: tel-01180203**

**<https://hal.science/tel-01180203>**

Submitted on 24 Jul 2015

**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.

**UNIVERSITE PARIS-SUD XI**  
**E.D. RAYONNEMENTS ET ENVIRONNEMENT**

**THESE**

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR**

*Chimie*

présentée et soutenue publiquement

par

**Mathilde ZEBRACKI**

le 23 juin 2008

***Devenir des polluants métalliques associés aux  
sédiments contaminés dans un cours d'eau en relation  
avec la dynamique sédimentaire***

---

*Directeur de thèse (LSCE) : Philippe BONTE*  
*Encadrant Ecole des Mines : Claire ALARY*

---

**JURY**

Eric SIMONI	Président
Daniel THEVENOT	Rapporteur
Jean-Claude FISCHER	Rapporteur
Olivier RADAKOVITCH	Examineur
Janusz DOMINIK	Examineur







*Pour David,*



## REMERCIEMENTS

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont pour l'essentiel été réalisés au Centre National de Recherche sur les Sites et Sols Pollués (CNRSSP). Le CNRSSP était alors un Groupement d'Intérêt Public (GIP) né d'un partenariat entre différentes institutions et sociétés privées et situé sur le centre de recherche de l'Ecole des Mines à Douai. Ses priorités de recherche concernaient la caractérisation, la mobilité et l'impact des polluants dans l'environnement. Créé en mai 1996, le CNRSSP ne survivra pas à son dixième anniversaire et le GIP entrera en liquidation administrative en janvier 2007.

Je remercie Pascal Oustrière, Directeur du CNRSSP, et Agnès Laboudigue, Directrice scientifique, pour m'avoir accueillie au laboratoire en 2004. Je souhaite exprimer toute ma reconnaissance à Jean-Paul Monory, liquidateur du GIP, dont le soutien aura été précieux.

Pour mener à bien ce travail de thèse, j'ai bénéficié de l'encadrement scientifique de Philippe Bonté (LSCE), Directeur de thèse, et de Claire Alary (ENSM Douai), encadrante au CNRSSP. Je leur sais gré de leur investissement et de leur accompagnement tout au long de cette aventure intellectuelle et humaine unique.

Je remercie Messieurs Jean-Claude Fischer (USTL) et Daniel Thévenot (CEREVE), rapporteurs, pour leur regard éclairé et leurs critiques constructives, Messieurs Janusz Dominik (Institut Forel) et Olivier Radakovitch (CEREGE), examinateurs, pour leur attention et l'intérêt qu'ils ont portés à ce travail et, enfin, Eric Simoni (IPNO) d'avoir accepté d'être le président de jury.

Je souhaite exprimer ma profonde gratitude envers tous ceux et toutes celles qui ont contribué à l'aboutissement de ce travail. Un grand merci...

- à Vincent Ledoux de la Société des Eaux de Douai, au personnel des Voies Navigables de France et de la Communauté d'Agglomération du Douaisis pour l'ensemble des informations transmises ;
- au personnel des départements de l'Ecole des Mines pour sa disponibilité et son soutien technique ;
- à toute l'équipe du LSCE pour son accueil chaleureux, son soutien technique et analytique, en particulier Irène, Marie-Françoise, et Alain ;
- tous les cneursspiens et cneursspiennes dont l'esprit d'équipe est inoubliable et dont le talent collectif peut transformer une coupure de courant électrique en véritable carnaval, et avec dans le rôle des carnavales...Manon, Géraldine, Stéphanie, Isabelle, Valérie & Valérie, Caroline, Laurence & Laurence, Gwen, Mélanie, Philippe, Terence, Virginie, Bertrand, Vasilica, Florent, Cindy.

Je salue mes compagnons d'étude, de gloire, de fortune et de voyage aux Mines de Douai : Guilaine, Philippe, Christophe & Christophe, Simon, Samira, Paul, Mohamad, Amine, Guillaume.

Il est des régions qui méritent d'être traversées sans quoi on ne connaît pas l'histoire d'un pays. Le ch'Nord en fait résolument partie. Merci à tous ceux et toutes celles qui m'ont permis d'y faire un tiot trou et de m'y sentir bien. C'est une expérience dont le souvenir m'est particulièrement agréable. Et, je sais..., je sais que beaucoup ont veillé sur moi...





# TABLE DES MATIERES

<b>INTRODUCTION</b>	<b>19</b>
<b>1 SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	<b>23</b>
1.1 LES MÉTAUX DANS LE SYSTÈME AQUATIQUE	23
1.1.1 <i>Origine des métaux dans les milieux aquatiques</i>	24
1.1.1.1 Naturelle	24
1.1.1.2 Anthropique	26
1.1.2 <i>Distribution des métaux dans les milieux aquatiques</i>	27
1.1.2.1 Dans l'eau	27
1.1.2.2 Dans les sédiments	29
1.1.3 <i>Réactivité des métaux dans les sédiments</i>	32
1.1.3.1 Spéciation chimique : méthodes	32
1.1.3.2 Mécanismes de fixation	34
1.2 TRANSFERT DES MÉTAUX À L'INTERFACE EAU-SEDIMENT	37
1.2.1 <i>Dans un sédiment non perturbé</i>	38
1.2.1.1 Diagenèse des sédiments	38
1.2.1.2 Diffusion à l'interface eau-sédiment	42
1.2.2 <i>Dans un sédiment perturbé.</i>	46
1.2.2.1 Etudes en milieu naturel	46
1.2.2.2 Etudes au laboratoire	47
1.2.2.3 Revue des principaux mécanismes	48
1.3 RÔLE DE LA DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE. UTILISATION DES TRACEURS ENVIRONNEMENTAUX.	52
1.3.1 <i>Les processus sédimentaires</i>	53
1.3.1.1 La sédimentation	53
1.3.1.2 La remise en suspension/l'érosion	54
1.3.2 <i>Les traceurs radioactifs environnementaux</i>	57
1.3.2.1 Différentes origines	57
1.3.2.2 Détermination des activités dans les matrices naturelles	62
1.3.2.3 Notion de traçage	62
1.3.2.4 Applications	63
1.4 CONCLUSIONS	66
<b>2 MATÉRIELS ET MÉTHODES</b>	<b>69</b>
2.1 CONTEXTE DE L'ÉTUDE	69
2.2 PRÉSENTATION DE LA SCARPE	70
2.2.1 <i>Situation géographique</i>	70
2.2.2 <i>Description du bassin versant</i>	71
2.2.3 <i>Les eaux de surface</i>	73
2.2.4 <i>Secteur étudié</i>	74
2.2.4.1 Sources de pollution locales	74
2.2.4.2 Hydrologie	78
2.3 CHOIX DES SITES DE PRÉLEVEMENT. RAPPEL DES OBJECTIFS	80
2.3.1 <i>Carottage</i>	80
2.3.2 <i>Suivi de terrain</i>	80
2.3 PRÉLEVEMENT ET ÉCHANTILLONNAGE DES SOLIDES	83
2.3.1 <i>Sédiments</i>	83
2.3.2 <i>Matières en suspension</i>	86
2.4 TRAITEMENT ET ANALYSE DES ÉCHANTILLONS SOLIDES	87
2.4.1 <i>Mesure de masse volumique</i>	87
2.4.2 <i>Distribution granulométrique par granulométrie laser</i>	88
2.4.2.1 Principe	88
2.4.2.2 Manipulation	89
2.4.2.3 Influence des ultrasons	89
2.4.3 <i>Activités des radionucléides émetteurs gamma</i>	90
2.4.3.1 Principe de la spectrométrie gamma	91
2.4.3.2 Manipulation	92
2.4.4 <i>Activités des radionucléides émetteurs alpha</i>	92
2.4.4.1 Principe de la spectrométrie alpha	92
2.4.4.2 Manipulation	93
2.4.5 <i>Dosage des métaux et majeurs par ICP AES</i>	93
2.4.5.1 Principe	93

2.4.5.2	Limite de détection	94
2.4.5.3	Dosage de la fraction pseudo-totale	94
2.4.5.4	Dosage de la fraction réactive des métaux	96
2.4.6	Mesure des teneurs en C, N, S	96
2.4.6.1	Dosage du carbone organique total	96
2.4.6.2	Dosage de l'azote	97
2.4.6.3	Dosage du soufre total	97
2.5	ANALYSE DES EAUX INTERSTITIELLES	97
2.5.1	Echantillonnage des métaux contenus dans les eaux interstitielles : Technique DET	97
2.5.1.1	Principe	98
2.5.1.2	Manipulation	98
2.5.2	Dosage des métaux	99
2.5.2.1	Principe de l'ICP MS	100
2.5.2.2	Limite de quantification et reproductibilité	100
2.5.2.3	Influence du temps de pose	101
2.5.2.4	Comparaison entre deux méthodes d'échantillonnage	104
2.5.3	Mesure de O <sub>2</sub> et N <sub>2</sub> O dissous, pH, Eh	105
2.5.3.1	Principe	105
2.5.3.2	Manipulation	106
2.5.3.3	Test de reproductibilité	106
2.5.3.4	Influence du protocole : cas d'O <sub>2</sub>	107
2.6	RECAPITULATIF	109
<b>3</b>	<b>DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE A LONG TERME ET CONTAMINATION DES SEDIMENTS</b>	<b>112</b>
3.1	CARACTERISATION PHYSIQUE DES SEDIMENTS	112
3.1.1	Teneur en eau	112
3.1.2	Distribution granulométrique	115
3.2	AGE DES SEDIMENTS	118
3.2.1	Rappels	118
3.2.2	<sup>137</sup> Cs	119
3.2.3	<sup>210</sup> Pb	122
	Conclusion	129
3.3	CONTAMINATION DES SEDIMENTS DE LA SCARPE	131
3.3.1	Les métaux	131
3.3.1.1	Concentrations moyennes	131
3.3.1.2	Degré de contamination	132
3.3.1.3	Profils verticaux	134
3.3.1.4	Historique de la pollution métallique	145
3.3.2	Le carbone organique	146
3.3.3	L'uranium	149
3.3.4	Rôle du soufre	153
	Conclusion	156
<b>4.</b>	<b>DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE A COURT TERME</b>	<b>160</b>
4.1	A LA RECHERCHE D'UN OUTIL RADIOACTIF	161
4.1.1	Le déséquilibre radioactif <sup>234</sup> Th <sub>xs</sub> / <sup>238</sup> U	161
4.1.2	Le déséquilibre radioactif <sup>210</sup> Po <sub>xs</sub> / <sup>210</sup> Pb <sub>xs</sub>	163
4.1.2.1	Description de la méthode radioactive : revue bibliographique	163
4.1.2.2	Caractérisation des sédiments de surface et des matières en suspension	163
4.1.3	Le Béryllium-7	165
4.1.3.1	Méthode du Béryllium-7 : revue bibliographique	165
4.1.3.2	Pénétration verticale du <sup>7</sup> Be dans les sédiments	168
	CONCLUSION	168
4.2	DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE MENSUELLE DES SEDIMENTS DE SURFACE	169
4.2.1	Enregistrement du <sup>7</sup> Be dans les sédiments de surface	169
4.2.1.1	Détermination de l'inventaire du <sup>7</sup> Be dans les sédiments	169
4.2.1.2	Profils verticaux de l'inventaire du <sup>7</sup> Be dans les carottes	169
4.2.1.3	Inventaires de <sup>7</sup> Be dans les sédiments	173
4.2.2	Activités du <sup>7</sup> Be dans les matières en suspension	176
4.2.4	Taux de dépôt et d'érosion des sédiments de surface	180
4.2.4.1	Résultats et suivi temporel	180
4.2.4.3	Hydrologie	183
	CONCLUSION	187

<b>5.</b>	<b>TRANSFERT DES POLLUANTS METALLIQUES A L'INTERFACE EAU-SEDIMENT</b>	<b>188</b>
5.1.	TRANSFERT PARTICULAIRE-PARTICULAIRE	189
5.2.	TRANSFERT PARTICULAIRE-DISSOUS. REMOBILISATION	190
5.3.	TRANSFERT DISSOUS-DISSOUS : PAR ADVECTION	192
5.4.	TRANSFERT DISSOUS-DISSOUS : PAR DIFFUSION. MECANISMES DIAGENETIQUES	194
5.4.1	<i>Caractérisation des eaux interstitielles. Mécanismes diagénétiques.</i>	194
5.4.1.1	Eh, O <sub>2</sub> , N <sub>2</sub> O, pH	195
5.4.1.2	Concentrations des métaux dans les eaux interstitielles	200
5.4.1.3	Rôle des sulfures	203
5.4.2	<i>Evolution des échanges au cours du temps.</i>	205
5.4.2.1	Concentrations des métaux dans les eaux interstitielles	205
5.4.2.2	Remobilisation des métaux dans les sédiments. Rôle du Mn.	211
5.4.2.3	Diffusion et dynamique sédimentaire à l'interface eau-sédiment.	213
	CONCLUSION	216
	<b>CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES</b>	<b>219</b>
	<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUE</b>	<b>223</b>
	<b>ANNEXES</b>	<b>237</b>



# LISTE DES FIGURES

## Chapitre 1

---

FIGURE 1. 1 : LES DIFFERENTS ETATS D'OXYDATION DES METAUX DE TRANSITION : EXEMPLE DE LA PREMIERE SERIE DE TRANSITION. _____	24
FIGURE 1. 2 : CLASSIFICATION DES ELEMENTS PROPOSEE PAR GOLDSCHMIDT. _____	24
FIGURE 1. 3 : RELATION TYPIQUE ENTRE LA CONCENTRATION EN ZINC ADSORBE EN FONCTION DU DIAMETRE DE LA PARTICULE SEDIMENTAIRE. ADAPTE D'APRES WESTRICHT (1986). _____	28
FIGURE 1. 4 : CLASSIFICATION GRANULOMETRIQUE EN FONCTION DU DIAMETRE APPARENT (EN $\mu\text{M}$ ) DES PARTICULES INORGANIQUES. ADAPTE D'APRES CALVET (2003). _____	30
FIGURE 1. 5 : MECANISMES DE TRANSFERT DES CATIONS METALLIQUES ( $\text{Me}^{\text{N}+}$ ) AUX SEDIMENTS. ADAPTE D'APRES LEBRETON (1996). _____	34
FIGURE 1. 6 : INFLUENCE DU POTENTIEL HYDROGENE ET DU POTENTIEL D'OXYDOREDUCTION SUR LA MOBILITE DES ELEMENTS TRACES METALLIQUES (EN L'ABSENCE DE MATIERE ORGANIQUE). (A) LES PRINCIPAUX MINERAUX CONTROLANT LA SOLUBILITE DES METAUX. (B) LES TENDANCES A AUGMENTER LA SOLUBILITE. D'APRES BOURGH ET LOCH (1995). _____	35
FIGURE 1. 7 : TRANSPORT ET TRANSFORMATION DES CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS. ADAPTE D'APRES EGGLETON ET THOMAS (2004). _____	38
FIGURE 1. 8 : DIAGRAMME SCHEMATIQUE DES PROCESSUS BIOGEOCHIMIQUES DANS LE SYSTEME EAU-SEDIMENT. ADAPTE D'APRES FÖRSTNER (1995). 1-PHOTOSYNTHESE, 2-MINERALISATION EN MILIEU OXYDE, 3-DENITRIFICATION, 4-REDUCTION DU MN, 5-REDUCTION DU FE, 6-REDUCTION DES SULFATES, ET 7-METHANISATION. _____	39
FIGURE 1. 9 : PROFIL DE CONCENTRATIONS DANS LES EAUX INTERSTITIELLES. CAS DES SEDIMENTS D'EAU DOUCE (LAC MICHIGAN). ADAPTE D'APRES NEALSON ET STAHL (1997). _____	40
FIGURE 1. 10 : SEQUENCE DES REACTIONS REDOX DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE. ADAPTE D'APRES SANTSCHI ET AL. (1990). _____	41
FIGURE 1. 11 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES ETAPES DANS LA DECROISSANCE DU POTENTIEL REDOX EN FONCTION DU TEMPS. CAS A : SYSTEME FERME SANS PERTURBATION. CAS B : SYSTEME SOUMIS A PERTURBATION. ADAPTE D'APRES FÖRSTNER (1995). _____	42
FIGURE 1. 12 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE L'INTERFACE EAU-SEDIMENT. EN ORDONNEE, DISTANCE VERTICALE ENTRE EAU ET SEDIMENT, ET EN ABCISSE, CONCENTRATION D'UN SOLUTE DANS LA COLONNE D'EAU ET LES EAUX INTERSTITIELLES. ADAPTE D'APRES LERMAN (1978). _____	43
FIGURE 1. 13 : EXEMPLE D'UN SYSTEME HORS EQUILIBRE. _____	44
FIGURE 1. 14 : DIMINUTION DE LA CONCENTRATION EN METAUX DANS LES SEDIMENTS EN RELATION AVEC LES PROCESSUS DE DEPOT ET D'EROSION. ADAPTE D'APRES FÖRSTNER (1995). _____	47
FIGURE 1. 15 : REMOBILISATION DU ZN DES SEDIMENTS DE L'ELBE. ADAPTE D'APRES CALMANO ET AL. (1993). _____	48
FIGURE 1. 16 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES PRINCIPAUX PROCESSUS DE TRANSPORT DES PARTICULES. ADAPTE D'APRES LIJKLEMA ET AL. (1994). _____	52
FIGURE 1. 17 : DIAGRAMME EMPIRIQUE DE HJULSTRÖM. _____	53
FIGURE 1. 18 : MODES DE TRANSFERT DES RADIONUCLEIDES D'ORIGINE NATURELLE ET ARTIFICIELLE DANS UNE RIVIERE. ADAPTE D'APRES MUNDSCHEK (1995). _____	59
FIGURE 1. 19 : LES TROIS GRANDES FAMILLES RADIOACTIVES : $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ ET $^{235}\text{U}$ . LES DIFFERENTES COULEURS SONT ATTRIBUEES AUX PROPRIETES DES ISOTOPES DANS LES CONDITIONS ENVIRONNEMENTALES (OXYDEES). _____	60
FIGURE 1. 20 : ACTIVITES DU $^{137}\text{Cs}$ DANS LES SOLS EN EUROPE EN MAI 1986. D'APRES VAN DER PERK ET AL. (2000). _____	61

## Chapitre 2

---

FIGURE 2. 1 : LOCALISATION DU BASSIN VERSANT DE LA SCARPE (EN VIOLET) ET DE LA SECTION DE CANAL ETUDIEE. ADAPTE D'APRES L'AGENCE DE L'EAU ARTOIS-PICARDIE. _____	70
FIGURE 2. 2 : SCHEMA SIMPLIFIE DES CANAUX. LOCALISATION DU SECTEUR D'ETUDE. _____	71
FIGURE 2. 3 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DE LA SECTION DE CANAL ETUDIEE. _____	74
FIGURE 2. 4 : STATION DE RELEVAGE « VALLEE DE SCARPE ». A GAUCHE : ARRIVEE DES EAUX DANS LA STATION. A DROITE : REJET DANS LA SCARPE INFERIEURE. _____	76
FIGURE 2. 5 : SCHEMA D'ALIMENTATION DE LA STATION DE RELEVAGE « VALLEE DE SCARPE ». SOURCE : CHARBONNAGES DE FRANCE. _____	77
FIGURE 2. 6 : CONTAMINATION DES SOLS EN Pb. LOCALISATION DE LA STATION DE RELEVAGE (= SR) « VALLEE DE SCARPE ». ADAPTE D'APRES SOBANSKA (1999). _____	78

FIGURE 2. 7 : PLUVIOMETRE A AUGETS BASCULEURS.	79
FIGURE 2. 8 : RELATION ENTRE LE DEBIT MESURE AU NIVEAU DE L'ECLUSE « FORT DE SCARPE » (ECLUSE AMONT), DE LA STATION D'EPURATION (STEP) ET DE LA STATION DE RELEVAGE « VALLEE DE SCARPE » (SR VALLEE), ET LA PLUVIOMETRIE.	80
FIGURE 2. 9 : SECTION DE SCARPE INFERIEURE. LOCALISATION DES REJETS, AFFLUENT, PLUVIOMETRES (CROIX), ET SITES DE PRELEVEMENT (RONDS).	82
FIGURE 2. 10 : TUBES POUR PRELEVEMENT DE CAROTTES. DE GAUCHE A DROITE : GRAND (H : 1 M) ET PETIT (H : 30 CM) TUBES, CAROTTE A GRAND DIAMETRE (H : 60 CM).	84
FIGURE 2. 11 : A GAUCHE : ACCESSOIRES DU CAROTTIER PETIT DIAMETRE (57/63 MM). A DROITE : TETE COUPANTE DU CAROTTIER AVEC MEMBRANE.	84
FIGURE 2. 12 : SYSTEME D'EXTRUSION A PRESSION HYDRAULIQUE. PRELEVEMENT A LA SPATULE ET A LA CUILLER.	84
FIGURE 2. 13 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU PRELEVEMENT D'UNE CAROTTE EN 3 EXEMPLAIRES (OU REPLICATS) ET DU DECOUPAGE DE CHAQUE CAROTTE.	85
FIGURE 2. 14 : ECHANTILLONS DE LA CAROTTE K13. DE GAUCHE A DROITE : TRANCHES 0-2 CM A 30-32 CM, PAR TRANCHE DE 2 CM D'EPaisseur.	85
FIGURE 2. 15 : ECHANTILLONS DEDIES A L'EXTRACTION DE LA FRACTION POTENTIELLEMENT DISPONIBLE DES METAUX DANS LES SEDIMENTS. A GAUCHE : ECHANTILLON DE PROFONDEUR. A DROITE : ECHANTILLON DE SURFACE. LA DIFFERENCE DE COLORATION EST NETTE ET TMOIGNE DES CONDITIONS OXYDEE (EN SURFACE) ET REDUITE (EN PROFONDEUR) DU MILIEU.	86
FIGURE 2. 16 : PIEGE A SEDIMENTS. DISPOSITIF PERMETTANT LA RECUPERATION DES MES.	87
FIGURE 2. 17 : EMBLACEMENT DU PIEGE A SEDIMENT INSTALLE A L'ENTREE DE LA STATION DE RELEVAGE « VALLEE DE SCARPE ».	87
FIGURE 2. 18 : SCHEMA DE FONCTIONNEMENT DU PYCNOMETRE A HELIUM.	88
FIGURE 2. 19 : EXEMPLE DE LA DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE OBTENUE POUR UN ECHANTILLON DE SEDIMENT PRELEVEE EN SURFACE EN K36 DANS LA SCARPE.	89
FIGURE 2. 20 : PROFIL VERTICAL DE LA DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE DES SEDIMENTS PRELEVES EN K13. A GAUCHE, LE SEDIMENT A ETE MIS EN SUSPENSION DANS DU DEFLOCULANT. A DROITE, LE SEDIMENT A SUBI DES ULTRASONS (= US) AVANT D'ETRE MIS EN SOLUTION DANS DU DEFLOCULANT.	90
FIGURE 2. 21 : SPECTROMETRE GAMMA. CRISTAL DE GE HP APPARENT ET CRYOSTAT.	91
FIGURE 2. 22 : EXEMPLE D'UN SPECTRE GAMMA OBTENU POUR UN ECHANTILLON DE SEDIMENT PRELEVE DANS LA SCARPE.	92
FIGURE 2. 23 : EXEMPLE D'UN SPECTRE ALPHA OBTENU POUR UN ECHANTILLON DE SEDIMENT PRELEVE DANS LA SCARPE.	93
FIGURE 2. 24 : SCHEMA DE PRINCIPE DE L'ICP AES	94
FIGURE 2. 25 : COMPARAISON ICP AES ET SPECTROMETRIE GAMMA.	95
FIGURE 2. 26 : EQUILIBRE DE LA CONCENTRATION EN METAL DISSOUS ENTRE L'EAU INTERSTITIELLE ET LE GEL.	98
FIGURE 2. 27 : SONDE DET AVANT (A GAUCHE) ET APRES INSERTION (A DROITE) DANS LE SEDIMENT PRELEVE EN K36.	99
FIGURE 2. 28 : SCHEMA DE FONCTIONNEMENT DE L'ICP MS.	100
FIGURE 2. 29 : PROFILS VERTICAUX DES TENEURS EN ZN DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN AVRIL ET MAI 2006. APRES 24 ET 48 H DE POSE DANS LE SEDIMENT.	102
FIGURE 2. 30 : PROFILS VERTICAUX DES TENEURS EN MN DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN AVRIL ET MAI 2006. APRES 24 ET 48 HEURES DE POSE DANS LE SEDIMENT.	103
FIGURE 2. 31 : SCHEMA DU DISPOSITIF DE MESURE.	106
FIGURE 2. 32 : DISPOSITIF DE MESURE AVEC MICROELECTRODE DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DU SEDIMENT.	106
FIGURE 2. 33 : EVOLUTION DE L'OXYGENE ET DU PH DANS UNE CAROTTE DE SEDIMENT. INFLUENCE DE LA MONTEE/DESCENTE.	107
FIGURE 2. 34 : PROFIL VERTICAL DE LA CONCENTRATION EN OXYGENE DISSOUS DANS LES SEDIMENTS DE LA SCARPE PRELEVES EN K36 EN JUILLET 2006. MESURE REALISEE AVEC/SANS ECLAIRAGE DIRECT DE L'INTERFACE EAU-SEDIMENT.	107
FIGURE 2. 35 : PROFIL DE L'OXYGENE DANS UNE CAROTTE DE SEDIMENT. INFLUENCE DE L'ARRIVEE D'AIR.	108
FIGURE 2. 36 : DEROULEMENT DES CAMPAGNES, TYPE D'ECHANTILLONS PRELEVES DANS LA SCARPE, ELEMENTS ANALYSES, INSTRUMENTATION ANALYTIQUE.	110

## Chapitre 3

FIGURE 3. 1 : REPRESENTATION DU SECTEUR D'ETUDE. LOCALISATION DE L'AFFLUENT « LA CUNETTE », DES REJETS DE LA STATION D'EPURATION (=STEP), DES STATIONS DE RELEVAGE (=SR) ET DES REJETS
--

INDUSTRIELS (=RI). LOCALISATION DES 8 SITES DE PRELEVEMENTS K06, K09, K13, K16, K22, K36, K47 ET K49.	112
FIGURE 3. 2 : TENEUR EN EAU EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	113
FIGURE 3. 3 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	116
FIGURE 3. 4 : ACTIVITES EN $^{137}\text{Cs}$ EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	120
FIGURE 3. 5 : VARIATION DES ACTIVITES EN $^{137}\text{Cs}$ EN FONCTION DE LA FRACTION DES PARTICULES FINES.	122
FIGURE 3. 6 : ACTIVITES DU $^{210}\text{Pb}_{\text{TOTAL}}$ ET DU $^{226}\text{Ra}$ EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	123
FIGURE 3. 7 : VARIATION DE L'ACTIVITE DU $^{210}\text{Pb}_{\text{XS}}$ EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	126
FIGURE 3. 8 : VARIATION DE $\ln [A(^{210}\text{Pb}_{\text{XS}})]$ EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DE CAROTTE.	127
FIGURE 3. 9 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES SEDIMENTS DE LA SCARPE EN FONCTION DE LEURS PROPRIETES PHYSIQUES ET DE LEUR AGE.	130
FIGURE 3. 10 : CONCENTRATION EN ZN EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	135
FIGURE 3. 11 : CONCENTRATIONS EN Pb EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	136
FIGURE 3. 12 : CONCENTRATIONS EN Cd EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	137
FIGURE 3. 13 : CONCENTRATIONS EN Cu EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	138
FIGURE 3. 14 : CONCENTRATIONS DU ZN, Pb, Cd ET Cu EN FONCTION DE LA PROFONDEUR MASSIQUE DANS LES SEDIMENTS PEU COMPACTES ET RECENTS.	141
FIGURE 3. 15 : RELATION ENTRE LE ZN ET LE Pb, LE Cu NORMALISES A L'Al DANS LES SEDIMENTS PEU COMPACTES.	143
FIGURE 3. 16 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION EN Cd DANS LES SEDIMENTS PEU COMPACTES ET RECENTS EN FONCTION DE LA PROFONDEUR ET DU SITE ECHANTILLONNE.	144
FIGURE 3. 17 : EVOLUTION DE L'INDEX <i>I<sub>GEO</sub></i> DE LA CONTAMINATION METALLIQUE EN FONCTION DE LA CHRONOSTRATIGRAPHIE SEDIMENTAIRE (DEDUITE DU $^{137}\text{Cs}$ ) EN K22 ET K36.	145
FIGURE 3. 18 : EVOLUTION DE LA TENEUR EN CARBONE ORGANIQUE TOTAL (= COT) EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	147
FIGURE 3. 19 : RELATION ENTRE LES CONCENTRATIONS EN ZN-Cu ET LE CARBONE ORGANIQUE TOTAL (= COT) DANS LES SEDIMENTS PEU COMPACTES.	149
FIGURE 3. 20 : RELATION ENTRE LES ACTIVITES DU $^{234}\text{Th}$ (= U) ET DU $^{228}\text{Th}$ (= Th) DANS LES SEDIMENTS. DANS LA CROUTE SUPERFICIELLE, LES POINTS S'ALIGNENT SUR UNE DROITE DE PENTE 0,8.	150
FIGURE 3. 21 : RELATION ENTRE LES ACTIVITES DU $^{226}\text{Ra}$ ET DU $^{234}\text{Th}$ (U) DANS LES SEDIMENTS. LORSQUE LE $^{226}\text{Ra}$ ET SON PERE LE $^{238}\text{U}$ (= $^{234}\text{Th}$ ) SONT A L'EQUILIBRE SEculaire, LE RAPPORT D'ACTIVITES VAUT 1 (I.E. PENTE = 1).	150
FIGURE 3. 22 : RELATION ENTRE LES ACTIVITES DU $^{228}\text{Ra}$ ET DU $^{228}\text{Th}$ DANS LES SEDIMENTS.	151
FIGURE 3. 23 : RAPPORT D'ACTIVITES $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	152
FIGURE 3. 24 : RELATION ENTRE L'EXCES D'U ET LE Cu ET LE COT DANS LES SEDIMENTS PEU COMPACTES.	153
FIGURE 3. 25 : CONCENTRATIONS DU S EN FONCTION DE LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS.	154
FIGURE 3. 26 : VARIATION DE LA TENEUR EN S EN FONCTION DE LA TENEUR EN COT DANS LES SEDIMENTS.	155
FIGURE 3. 27 : VARIATION DES TENEURS EN ZN EN FONCTION DE LA TENEUR EN S DANS LES SEDIMENTS.	156

## Chapitre 4

FIGURE 4. 1 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES PROCESSUS SEDIMENTAIRES DANS UN MILIEU AQUATIQUE : COLONNE D'EAU, COMPARTIMENT SEDIMENTAIRE, INTERFACE EAU-SEDIMENT ET MATIERES EN SUSPENSION (=MES).	160
FIGURE 4. 2 : LA SCARPE INFERIEURE. REPRESENTATION DU SECTEUR D'ETUDE. LOCALISATION DE L'AFFLUENT « LA CUNETTE », DES REJETS DE LA STATION D'EPURATION (=STEP), DES STATIONS DE RELEVAGE (=SR) ET DES REJETS INDUSTRIELS (=RI). LOCALISATION DES 3 SITES DE PRELEVEMENT K13, K16 ET K36.	161
FIGURE 4. 3 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DU STOCK DE $^7\text{Be}$ DANS UNE CAROTTE DE SEDIMENT ENTRE DEUX COLLECTES SUCCESSIVES (MOIS 1 & 2). TROIS CAS DE FIGURE : (A), (B) ET (C). SOURCE : MODIFIE D'APRES GIFFIN ET REIDE CORBETT (2003).	167
FIGURE 4. 4 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES PROFILS VERTICAUX DE L'INVENTAIRE DU $^7\text{Be}$ DANS LES TRANCHES 0-3 CM ET 3-5 CM DES SEDIMENTS. (A) ACCUMULATION RECENTE DE SEDIMENT. (B) ACCUMULATION MOINDRE DE SEDIMENT. (C) PROCESSUS DE MELANGE. (D) DEPOT DE SEDIMENT AGE SUR DU SEDIMENT PLUS RECENT. (E) EROSION OU DEPOT DE SEDIMENT AGE.	171
FIGURE 4. 5 : EVOLUTION DU STOCK NOUVEAU DE $^7\text{Be}$ DANS LES SEDIMENTS EN K13, K16 ET K36, ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006.	175
FIGURE 4. 6 : ACTIVITES DU $^7\text{Be}$ DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES EN K13, K16 ET K36, ET PLUIE CUMULEE ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	177
FIGURE 4. 7 : EVOLUTION DE LA PLUIE AU COURS DU TEMPS : PLUIE QUOTIDIENNE, ET PLUIE CUMULEE SUR LA PERIODE DE TEMPS SEPARANT DEUX CAMPAGNES DE PRELEVEMENT.	179



FIGURE 4. 8 : EVOLUTION DU FLUX DE DEPOT/EROSION DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13 ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	182
FIGURE 4. 9 : EVOLUTION DU FLUX DE DEPOT/EROSION DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K16 ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	182
FIGURE 4. 10 : EVOLUTION DU FLUX DE DEPOT/EROSION DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	182
FIGURE 4. 11 : DEBITS DE L'ECLUSE ET DE LA STATION DE RELEVAGE, ET PLUVIOMETRIE, ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006 (PREMIERE DONNEE EN MAI 2005).	184
FIGURE 4. 12 : VARIATION DE LA PLUVIOMETRIE ET DU DEBIT DU CANAL PAR JOUR ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	185
FIGURE 4. 13 : VOLUME DEVERSE PAR LA STATION DE RELEVAGE ET PLUVIOMETRIE PAR JOUR ENTRE AVRIL 2005 ET SEPTEMBRE 2006.	185
FIGURE 4. 14 : DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE A COURT-TERME EN K13, K16 ET K36, ET DEBIT MOYEN DU CANAL ET DE LA STATION (x 4), ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006.	186

## Chapitre 5

FIGURE 5. 1 : REPRESENTATION SCHEMATIQUE DES FLUX PARTICULAIRE (DEPOT, EROSION) ET DISSOUS (DIFFUSION, ADVECTION) DES POLLUANTS METALLIQUES A L'INTERFACE EAU-SEDIMENT DANS UN COURS D'EAU.	188
FIGURE 5. 2 : REPRESENTATION DU SECTEUR D'ETUDE. LOCALISATION DE L'AFFLUENT « LA CUNETTE », DES REJETS DE LA STATION D'EPURATION (=STEP), DES STATIONS DE RELEVAGE (=SR) ET DES REJETS INDUSTRIELS (=RI). LOCALISATION DU SITE DE PRELEVEMENT K36.	189
FIGURE 5. 3 : FRACTION REACTIVE DES METAUX CONTENUS DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 CM) PRELEVES EN K36 ENTRE MARS ET JUILLET 2006.	191
FIGURE 5. 4 : EVOLUTION DE LA HAUTEUR DES SEDIMENTS AFFECTES PAR LES PROCESSUS DE DEPOT/EROSION EN K36 ENTRE DECEMBRE 2005 ET AOUT 2006.	193
FIGURE 5. 5 : EVOLUTION DU POTENTIEL REDOX EH AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36, EN MARS ET AVRIL 2006.	195
FIGURE 5. 6 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION EN OXYGENE DISSOUS AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN MARS, AVRIL, MAI ET JUILLET 2006.	196
FIGURE 5. 7 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION EN N <sub>2</sub> O AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN MARS 2006.	197
FIGURE 5. 8 : EVOLUTION DU pH AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN MARS, AVRIL ET MAI 2006.	197
FIGURE 5. 9 : CONCENTRATION DE L'OXYGENE EN FONCTION DE LA PROFONDEUR A PROXIMITE DE L'INTERFACE EAU-SEDIMENT.	199
FIGURE 5. 10 : EVOLUTION DU FLUX D'OXYGENE A L'INTERFACE EAU-SEDIMENT EN K36 ENTRE MARS ET JUILLET 2006.	199
FIGURE 5. 11 : PROFILS VERTICAUX DES CONCENTRATIONS DU Fe, Mn, Zn, Pb ET Cd DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN AOUT 2006.	200
FIGURE 5. 12 : SURFACE (A GAUCHE) ET PROFIL (A GAUCHE) D'UNE CAROTTE DE SEDIMENT PRELEVEE EN K36. PRESENCE DE CANAUX (A GAUCHE) ET DE BULLES DE GAZ (A DROITE).	202
FIGURE 5. 13 : INTERFACE EAU-SEDIMENT D'UNE CAROTTE DE SEDIMENT PRELEVEE EN K36. FORMATION D'HYDROXYDE DE Fe(III) DE COULEUR ROUILLE A LA SURFACE DES SEDIMENTS. A GAUCHE, 1 HEURE APRES LE PRELEVEMENT. A DROITE, 4 SEMAINES APRES LE PRELEVEMENT, AVEC CONSERVATION A L'AIR LIBRE.	204
FIGURE 5. 14 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION DU ZN AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE AVRIL ET AOUT 2006.	206
FIGURE 5. 15 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION DU Pb AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE AVRIL ET AOUT 2006.	207
FIGURE 5. 16 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION DU Cd AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE AVRIL ET AOUT 2006.	208
FIGURE 5. 17 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION DU Cu AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE AVRIL ET AOUT 2006.	209
FIGURE 5. 18 : EVOLUTION DU FLUX DE DIFFUSION DU Mn A TRAVERS L'INTERFACE EAU-SEDIMENT ENTRE DECEMBRE 2005 ET AOUT 2006.	211
FIGURE 5. 19 : EVOLUTION DE LA CONCENTRATION DU Mn AVEC LA PROFONDEUR DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE AVRIL ET AOUT 2006.	212
FIGURE 5. 20 : VARIATION DU FLUX DE Mn A L'INTERFACE EAU-SEDIMENT (=IES) EN FONCTION DE LA HAUTEUR DE SEDIMENT DEPOSE/ERODE EN K36, ENTRE DECEMBRE 2005 ET AOUT 2006.	215

# LISTE DES TABLEAUX

## Chapitre 1

---

TABLEAU 1. 1 : CONCENTRATIONS MOYENNES EN METAUX DANS DIFFERENTS TYPES DE ROCHES TERRESTRES. ADAPTE D'APRES KABATA-PENDIAS (1992).	25
TABLEAU 1. 2 : CONCENTRATIONS MOYENNES EN METAUX ET METALLOÏDE DANS LE FOND GEOCHIMIQUE DES SEDIMENTS DE LA REGION ARTOIS-PICARDIE. ADAPTE D'APRES AGENCE DE L'EAU ARTOIS-PICARDIE.	26
TABLEAU 1. 3 : CONCENTRATIONS DE QUELQUES METAUX DISSOUS DANS LES EAUX NATURELLES. D'APRES STUMM ET MORGAN (1996).	27
TABLEAU 1. 4 : SITES IMPORTANTS DE FIXATION DES CONTAMINANTS ORGANIQUES ET INORGANIQUES AU SEIN DU SEDIMENT. D'APRES EGGLETON ET THOMAS (2004).	34
TABLEAU 1. 5 : COEFFICIENTS DE DISTRIBUTION $K_d$ EN LOG POUR DIFFERENTS METAUX DANS QUELQUES FLEUVES MAJEURS. D'APRES ZHANG <i>ET AL.</i> (1994).	36
TABLEAU 1. 6 : PRINCIPALES REACTIONS D'OXYDATION RESPONSABLES DE LA PRODUCTION DE PROTONS DANS LES SYSTEMES AQUATIQUES. D'APRES CALMANO <i>ET AL.</i> (1993).	50
TABLEAU 1. 7 : PRINCIPALES REACTIONS TAMPONS DU SEDIMENT. SOURCE : CALMANO <i>ET AL.</i> , 1993.	51
TABLEAU 1. 8 : EXEMPLES DE RADIONUCLIDES UTILISES EN TANT QUE TRACEURS DANS LES SYSTEMES AQUATIQUES, POUR DES PROCESSUS SE DEROLANT SUR QUELQUES JOURS JUSQU'A PLUSIEURS SIECLES. ADAPTE D'APRES SANTSCHI (1986).	62

## Chapitre 2

---

TABLEAU 2. 1 : APPORTS EN EAU DANS LA SECTION DE CANAL ETUDIEE.	75
TABLEAU 2. 2 : CONCENTRATIONS EN METAUX DANS LES MATIERES EN SUSPENSION DES REJETS.	75
TABLEAU 2. 3 : CONCENTRATIONS EN METAUX DANS LES MATIERES EN SUSPENSION DES REJETS DE LA STATION DE RELEVAGE ET DE SAPROTEC.	75
TABLEAU 2. 4 : DONNEES HYDRIQUES ENTRE MARS 2005 ET AOUT 2006 (PLUVIOMETRIE, DEBITS).	79
TABLEAU 2. 5 : DATES DES CAMPAGNES DE PRELEVEMENT LORS DU « SUIVI DE TERRAIN » ET DELAI SEPARANT DEUX CAMPAGNES SUCCESSIVES.	83
TABLEAU 2. 6 : LIMITE DE DETECTION (= LD) POUR L'ICP AES, CALCULEE POUR UN ECHANTILLON SOLIDE DE 0,5 G.	94
TABLEAU 2. 7 : LIMITE DE QUANTIFICATION DE L'ICP MS ET ANALYSE DES BLANCS DE TERRAIN.	101
TABLEAU 2. 8 : COMPARAISON ENTRE LES CONCENTRATIONS DE ZN, PB, CD ET CU MESUREES DANS L'EAU SELON DEUX METHODES D'ECHANTILLONNAGE DES METAUX.	104
TABLEAU 2. 9 : MICROELECTRODES UTILISEES.	105

## Chapitre 3

---

TABLEAU 3. 1 : VITESSE DE SEDIMENTATION DANS LA SCARPE A PARTIR DE LA METHODE DU $^{137}\text{Cs}$ .	121
TABLEAU 3. 2 : STOCK I DE $^{137}\text{Cs}$ EN FONCTION DU SITE ECHANTILLONNE.	121
TABLEAU 3. 3 : VITESSE DE SEDIMENTATION DANS LA SCARPE A PARTIR DE LA METHODE DU $^{210}\text{Pb}$ .	127
TABLEAU 3. 4 : CONCENTRATIONS MOYENNES DES METAUX DANS LES SEDIMENTS DE LA SCARPE.	131
TABLEAU 3. 5 : CONCENTRATIONS EN ZN, CD, PB ET CU MESURES DANS LES SEDIMENTS PRELEVES DANS DIFFERENTS SYSTEMES AQUATIQUES SOUMIS AUX ACTIVITES HUMAINES (INDUSTRIELLE, URBAINE, MINIERE).	132
TABLEAU 3. 6 : FACTEUR D'ENRICHISSEMENT GEOCHIMIQUE (= FEG) MOYEN DANS LES SEDIMENTS.	133
TABLEAU 3. 7 : CLASSIFICATION DE LA POLLUTION ASSOCIEE A L'INDEX D'ACCUMULATION GEOCHIMIQUE <i>IGEO</i> .	134
TABLEAU 3. 8 : CONCENTRATIONS MOYENNES EN CONTAMINANTS METALLIQUES (ZN, PB, CD, CU) DANS LES SEDIMENTS ANCIENS ET COMPACTES DE LA SCARPE.	139
TABLEAU 3. 9 : CONCENTRATIONS EN CD, PB, ZN ET CU DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES DANS LA SCARPE EN K13, K16 ET K36, ET A L'ENTREE DE LA STATION DE RELEVAGE, ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006.	144

## Chapitre 4

---

TABLEAU 4. 1 : RAPPORT D'ACTIVITES $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN AVRIL ET MAI 2006.	164
TABLEAU 4. 2 : RAPPORT D'ACTIVITE $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES EN K13, K16 ET K36 ENTRE MAI ET AOUT 2006.	164
TABLEAU 4. 3 : ACTIVITES DU $^7\text{Be}$ DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN AVRIL 2005.	168
TABLEAU 4. 4 : INVENTAIRE DU $^7\text{Be}$ DANS LES SEDIMENTS (TRANCHES 0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN TROIS EXEMPLAIRES (A B C) EN TROIS SITES (K13, K16 ET K36) ENTRE AVRIL 2005 (CAMPAGNE N°1) ET AOUT 2006 (CAMPAGNE N°15).	170
TABLEAU 4. 5 : STOCK TOTAL, RESIDUEL ET NOUVEAU DE $^7\text{Be}$ DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13, K16 ET K36 ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	173
TABLEAU 4. 6 : ACTIVITE DU $^7\text{Be}$ DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES EN K13, K16 ET K36 ET DANS LA STATION DE RELEVAGE, ET PLUVIOMETRIE, ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006.	177
TABLEAU 4. 7 : CALCUL DU FLUX DE DEPOT/EROSION DANS LES SEDIMENTS EN K13, K16, K36, ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	181

## Chapitre 5

---

TABLEAU 5. 1 : FLUX TOTAL DE DEPOT ET FLUX TOTAL D'EROSION POUR LE ZN, LE Pb, LE Cd ET LE Cu, A LA SURFACE DES SEDIMENTS EN K13, K16 ET K36, ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006.	190
TABLEAU 5. 2 : RAPPORT ENTRE LE FLUX TOTAL DE DEPOT ET LE FLUX TOTAL D'EROSION.	190
TABLEAU 5. 3 : DETERMINATION DU FLUX ADVECTIF DU Pb, Cd, Zn ET Cu LORS DES EPISODES D'EROSION EN JANVIER ET AOUT 2006 EN K36. $\Delta t$ DESIGNE LA PERIODE PENDANT LAQUELLE LES SEDIMENTS SE SONT ERODES, SOIT ENTRE DEUX CAMPAGNES DE PRELEVEMENT SUCCESSIVES.	194
TABLEAU 5. 4 : INTERVALLES DE CONCENTRATIONS EN ZN, Pb, Cd ET Cu DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS DE RIVIERES.	205
TABLEAU 5. 5 : FLUX PARTICULAIRES DE DEPOT/EROSION, FLUX DIFFUSIF ET FLUX ADVECTIF DES CONTAMINANTS METALLIQUES A L'INTERFACE EAU-SEDIMENT EN K36 ENTRE DECEMBRE 2005 ET AOUT 2006.	217

## INTRODUCTION

Le développement industriel et urbain de nos sociétés a généré une exploitation de ressources naturelles et une production de déchets et de polluants. Depuis longtemps, les cours d'eau constituent le réceptacle d'une pollution aux formes multiples. Les polluants proviennent des activités urbaine, agricole et industrielle. Les sources de polluants peuvent contaminer les eaux de manière directe (rejet) ou diffuse (dépôt atmosphérique, lessivage de sols contaminés). Lorsqu'il pleut, les eaux de surface ruissellent à travers des surfaces plus ou moins contaminées et charrient avec elles leur lot de polluants. Les eaux de surface sont ainsi capables d'intégrer les pollutions non traitées à l'échelle du bassin versant. L'introduction des polluants dans le cours d'eau peut avoir des conséquences sanitaires et écologiques.

En France, les préoccupations environnementales sont devenues un enjeu social, politique et économique. Une directive-cadre européenne d'octobre 2000 (2000/60/CE) a prévu que chaque Etat devrait, d'ici 2009, avoir élaboré des « plans de gestion » et des « programmes d'actions » concrets dans tous les « districts hydrographiques », afin de parvenir en 2015 à un « bon état des eaux ». Cette directive est appelée à jouer un rôle stratégique et fondateur en matière de politique de l'eau.

Au regard de cette directive cadre, le comportement des sédiments vis-à-vis de la colonne d'eau est particulièrement important à prendre en compte. De nombreuses substances peuvent être piégées dans les sédiments et être libérées après s'être déposées. Ainsi, la question se pose : les sédiments se comportent-ils comme des pièges pour la pollution ou agissent-ils en tant que sources de contamination vis-vis de l'eau sus-jacente ?

Les sédiments jouent le rôle de puits potentiel pour de nombreuses substances toxiques. Les activités humaines depuis l'ère industrielle ont rejeté des métaux lourds dans les eaux de surface et, en raison de leurs propriétés, nombres d'entre eux se sont associés aux sédiments. Dans les environnements où la sédimentation s'est déroulée sur de longues périodes de temps, les sédiments constituent les archives chimiques de l'histoire d'une pollution. Les polluants ainsi piégés peuvent sous certaines conditions être remobilisés dans la colonne d'eau, et ce transfert va à l'encontre des efforts menés sur l'amélioration de la qualité des eaux de surface. Les sédiments constituent ainsi « une bombe chimique à retardement » (Stigliani, 1991). Les activités humaines (navigation, curage) et les événements naturels (cycles hydrologiques, vents) sont susceptibles de perturber l'interface eau-sédiment et de remettre en suspension les sédiments contaminés qui s'étaient accumulés auparavant dans le lit des cours d'eau. Les événements de remise en suspension/d'érosion des sédiments peuvent être à l'origine du transfert des contaminants associés aux sédiments sous forme particulaire (érosion) (*e.g.* ten Hulscher *et al.*, 1992), et/ou dissoute lorsque le confinement des eaux porales est rompu (advection) (*e.g.* Krein et Symader, 2000). Les perturbations physiques (dépôt, érosion, bioturbation) provoquées à la surface des sédiments peuvent modifier les paramètres physico-chimiques (Eh, pH typiquement) des sédiments et altérer la distribution physique et la spéciation chimique des contaminants métalliques présents dans les sédiments. Enfin, à l'interface eau-sédiment, lorsque la dégradation de la matière organique est amorcée, l'établissement de conditions particulières peut être favorable à la remobilisation des polluants métalliques qui passent des sédiments vers la colonne d'eau (diffusion) (*e.g.* van den Berg *et al.*, 1999).

La région Nord-Pas de Calais se caractérise par un réseau dense de rivières canalisées (~ 680 km), soumises à une importante accumulation de matériel sédimentaire. La

sédimentation est favorisée par les faibles débits liés à la topographie plane. Les sédiments marqués par le lourd passif industriel et urbain de la région présentent des concentrations élevées en polluants métalliques et organiques. Les systèmes aquatiques sont soumis, encore actuellement, à des rejets urbains et industriels qui continuent en partie à alimenter les sédiments de fond en polluants métalliques et organiques. Le bassin Artois-Picardie représente environ un tiers de sédiments pollués par rapport au volume national (Bogusz, 1999). Dans un souci croissant de la qualité des écosystèmes aquatiques, la question du devenir des contaminants est donc une problématique environnementale importante dans cette région.

La thèse s'intéresse au « devenir des polluants métalliques associés aux sédiments contaminés dans une rivière en relation avec la dynamique sédimentaire ». Deux termes sont importants : « devenir » et « dynamique ». Le terme « dynamique » porte sur le matériel sédimentaire sous forme particulière : les sédiments en place (lit de la rivière) et les sédiments en transit dans l'eau (matières en suspension). Le « devenir » ultime des particules sédimentaires dans un cours d'eau est de se déposer à la surface des sédiments et d'y être enfouies. Cependant, une sédimentation à long terme n'exclut pas une alternance d'épisodes de dépôt et d'érosion des sédiments se déroulant sur des échelles de temps plus courtes. L'objectif du travail de thèse est de caractériser l'influence des processus sédimentaires (dépôt/érosion) sur le devenir des contaminants métalliques.

L'étude des mécanismes impliqués dans le transport des sédiments de surface passent généralement par une approche théorique, ou des mesures de terrain, des expérimentations, et des simulations. La caractérisation des processus sédimentaires dans le milieu se fait souvent sur des échelles spatiales et temporelles assez importantes. Or, dans les études d'impact environnemental, il est nécessaire d'évaluer la mobilité des polluants sur des échelles plus courtes.

La stratégie du travail de recherche repose sur une variation d'échelle spatio-temporelle. D'une part, la dynamique des sédiments (dépôt/érosion) a été caractérisée sur deux échelles de temps différentes (pluri-décennale et mensuelle) à partir de l'utilisation des traceurs radioactifs environnementaux ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^7\text{Be}$ ). D'autre part, le degré de contamination métallique a été déterminé à l'échelle du compartiment sédimentaire, et le comportement géochimique des polluants métalliques a été étudié à proximité de l'interface eau-sédiment.

Pour aborder le sujet et mettre en place la stratégie d'étude, nous nous sommes intéressés aux mécanismes qui régissent le transport des contaminants métalliques dans un milieu aquatique, et à l'utilisation des traceurs radioactifs environnementaux dans le but de caractériser les processus sédimentaires (chapitre 1). Le choix du secteur d'étude et des sites de prélèvements est ensuite décrit, ainsi que nos méthodes de prélèvement et d'échantillonnage, et les techniques instrumentales utilisées (chapitre 2). L'historique de la pollution métallique dans le secteur d'étude a été établi à partir du bilan sédimentaire (césium-137 et plomb-210) et de la contamination des sédiments (chapitre 3). Afin de caractériser la dynamique sédimentaire sur une échelle de temps plus courte, une méthode originale et basée sur l'utilisation d'un traceur radioactif environnemental (le béryllium-7) a été mise en œuvre (chapitre 4). A partir de ces résultats, l'impact des processus de dépôt/érosion sur le transfert des métaux a pu être quantifié (chapitre 5). Les mécanismes impliqués dans les échanges chimiques à l'interface eau-sédiment y sont également présentés. Enfin, les conclusions générales sont exposées, ainsi que les propositions de recherche complémentaire. L'ensemble des résultats numériques issus des analyses est reporté en annexe (2 à 4).

Les travaux présentés ont été essentiellement réalisés au Centre National de Recherche sur les Sites et Sols Pollués (CNRSSP) à Douai. Cette thèse a bénéficié d'une collaboration scientifique et technique avec l'Ecole des Mines de Douai et le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement à Gif-sur Yvette. Le CNRSSP est un Groupement d'Intérêt Public (GIP) créé en 1996 et entré en liquidation en 2006. Le travail de la thèse est depuis rattaché aux activités de recherche du département Génie Civil et Environnemental de l'Ecole des Mines de Douai, dans la thématique des sédiments.



# 1 SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

## 1.1 Les métaux dans le système aquatique

Les métaux (fer, cuivre, plomb, zinc, argent et or...) sont des corps simples, dotés d'un éclat particulier, bons conducteurs de la chaleur et de l'électricité. Ils sont abondamment utilisés par l'homme depuis l'Antiquité, d'abord pour sa survie, puis son confort et ses loisirs. Les métaux indispensables au métabolisme des êtres vivants constituent les oligo-éléments. Nombreux sont cependant toxiques lorsque leur concentration dépasse un seuil, lui-même fonction de l'état physico-chimique de l'élément considéré : c'est le cas du fer (Fe), du cuivre (Cu), du zinc (Zn), du nickel (Ni), du cobalt (Co), du vanadium (V), du sélénium (Se) du molybdène (Mo), du manganèse (Mn), du chrome (Cr), de l'arsenic (As) et du titane (Ti). D'autres ne sont pas nécessaires à la vie et sont préjudiciables dans tous les cas comme le plomb (Pb), le cadmium (Cd) et l'antimoine (Sb). Les composés métalliques ont une toxicité variable selon leur nature et leur voie de pénétration (ingestion, respiration, contact avec la peau). Trois de ces métaux sont à ce jour considérés comme étant cancérogènes : l'As, le Cr et le Ni (Chiffolleau *et al.*, 2001).

Les métaux de transition sont stables chimiquement. Ils sont sensibles aux processus oxydo-réducteurs car ils présentent généralement différents degrés d'oxydation stables dans les environnements géologiques (figure 1.1).

L'abondance des éléments métalliques est liée à l'affinité chimique des éléments. Goldschmidt a proposé une classification des éléments en quatre groupes (figure 1.2) :

- les éléments lithophiles associés à la phase silicatée ;
- les éléments atmosphériques en phase gazeuse ;
- les éléments sidérophiles présents dans la phase métallique ;
- les éléments chalcophiles présents dans la phase sulfurée.

Par abus de langage, métaux et métalloïdes sont assimilés à l'appellation générique métaux ; néanmoins les contaminants métalliques se distinguent des métaux tels que le fer (Fe) et le manganèse (Mn) qui fournissent dans les environnements aquatiques des supports pour le transport des autres métaux (Cd, Cu, Ni, Zn, Pb...). Le fer et le manganèse que l'on rencontre dans l'eau ou les sédiments ne sont généralement pas considérés comme des polluants. Cependant ils sont suffisamment abondants et réactifs pour influencer le devenir des contaminants métalliques (Boust *et al.*, 1999).



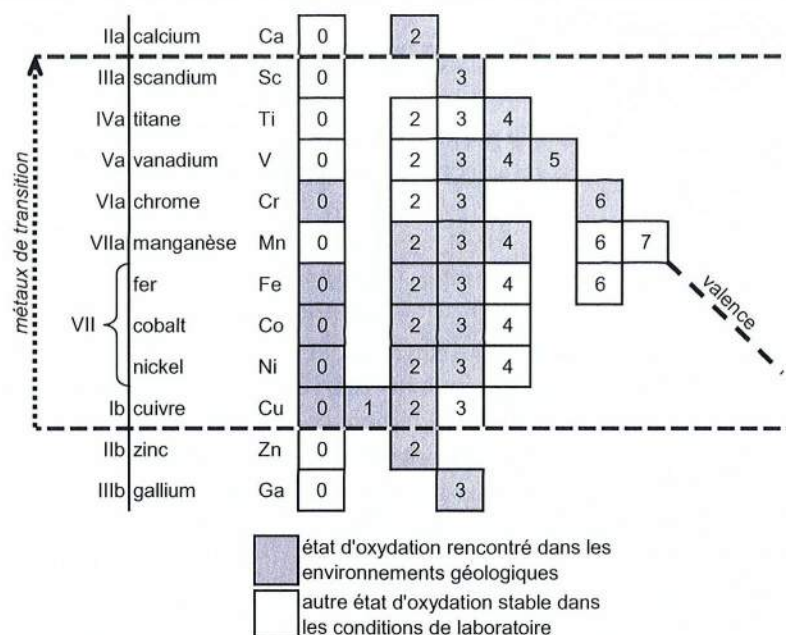


Figure 1. 1 : Les différents états d'oxydation des métaux de transition : exemple de la première série de transition.

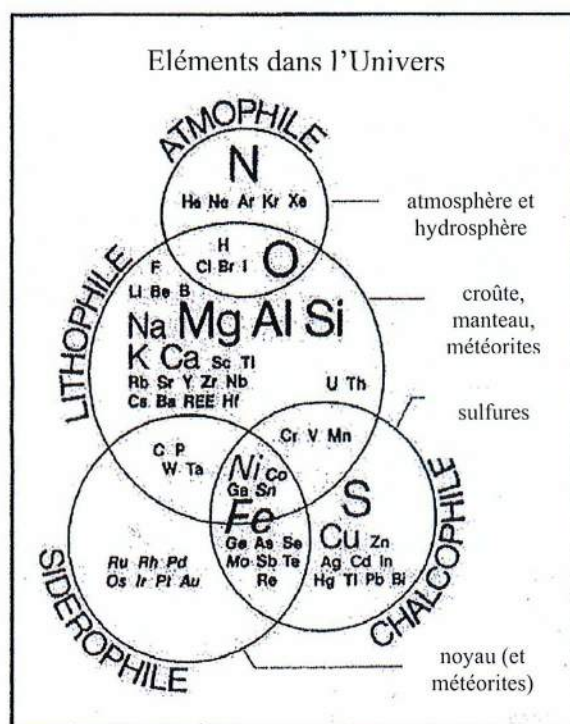


Figure 1. 2 : Classification des éléments proposée par Goldschmidt.

### 1.1.1 Origine des métaux dans les milieux aquatiques

#### 1.1.1.1 Naturelle

Les métaux sont des composants naturels de l'écorce terrestre dans laquelle ils se présentent généralement sous forme de minerai où ils sont associés entre eux et à de nombreux éléments (oxygène et soufre en particulier). Ils sont naturellement présents dans les

roches drainées par les eaux de surface (et les nappes d'eau souterraines) ainsi que dans les poussières atmosphériques. Les volcans, de même que les incendies de forêt, sont des sources naturelles importantes de métaux pour la géosphère et l'hydrosphère. Le tableau 1.1 donne les teneurs moyennes en éléments métalliques à l'échelle mondiale dans différents types de roches.

Concentrations moyennes en $\text{mg.kg}^{-1}$						
Eléments	Roches magmatiques			Roches sédimentaires		
	Roches basiques	Roches intermédiaires	Roches acides	Roches argileuses, sableuses	Grès	Carbonates
Cd	0,13-0,22	0,13	0,09-0,20	0,22-0,30	0,05	0,035
Co	35-50	1,0-10	1-7	11-20	0,3-10	0,1-3,0
Cr	170-200	15-50	4-25	60-100	20-40	5-16
Cu	60-120	15-80	10-30	40	5-30	2-10
Hg	0,0x	0,0x	0,08	0,18-0,40	0,04-0,10	0,04-0,05
Mn	1500-2000	500-1200	350-600	500-850	100-500	200-1000
Mo	1,0-1,5	0,6-1,0	1-2	0,7-2,6	0,2-0,8	0,16-0,40
Ni	130-160	5-55	5-15	50-70	5-20	7-20
Pb	3-8	12-15	15-24	18-25	5-10	3-10
V	200-250	30-100	40-90	100-130	10-60	10-45
Zn	80-120	40-100	40-60	80-120	15-30	10-25

**Tableau 1.1 : Concentrations moyennes en métaux dans différents types de roches terrestres. Adapté d'après Kabata-Pendias (1992).**

Dans certaines régions, l'abondance moyenne des éléments métalliques rencontrée est plus élevée. Cet enrichissement observé est dû à des processus géochimiques qui peuvent conduire à la formation de gisements naturels potentiellement exploitables. Chaque région présente des caractéristiques géologiques et pédologiques qui lui sont propres avec pour conséquences des concentrations variées en éléments métalliques dans les différents réservoirs géochimiques. Ces concentrations singulières constituent le fond géochimique. Le fond géochimique peut être déterminé selon diverses méthodes. Dans des milieux perturbés par l'activité humaine, le référentiel local de concentrations présentes naturellement peut être déterminé à partir de :

- l'analyse des sédiments superficiels prélevés en zone supposée non contaminée (amont des cours d'eau par exemple) ;
- l'analyse statistique d'un grand nombre de prélèvements à l'échelle du bassin versant ou d'un ensemble de bassins versants ;
- l'analyse des couches profondes d'une carotte de sédiment.

Dans le Nord-Pas-de-Calais, les concentrations naturelles de référence en éléments métalliques sont équivalentes aux valeurs déterminées par l'Agence de l'Eau Artois-Picardie à partir des valeurs les plus basses mesurées dans les sédiments de l'Artois-Picardie (zone géographique définie par l'Agence de l'Eau). Le tableau 1.2 présente les concentrations en éléments métalliques constituant le fond géochimique sédimentaire.

métal ou métalloïde	valeurs considérées comme naturelles dans les sédiments, en mg.kg <sup>-1</sup>
arsenic	5
cadmium	0,5
chrome	25
cuiivre	20
manganèse	250
mercure	0,1
plomb	20
fer	10000
zinc	75

**Tableau 1. 2 : Concentrations moyennes en métaux et métalloïde dans le fond géochimique des sédiments de la région Artois-Picardie. Adapté d'après Agence de l'Eau Artois-Picardie.**

### 1.1.1.2. Anthropique

La France métropolitaine extrait relativement peu de minerai de métaux non ferreux mais en importe de grandes quantités qu'elle raffine sur son sol. Les métaux extraits sont ensuite transformés, utilisés, recyclés, parfois exportés. Les utilisations des métaux sont multiples et très diversifiées, depuis les additifs de Pb dans les carburants, au Ni ou au Cd des batteries d'accumulateurs, au Zn des gouttières ou au Cr des aciers inoxydables, au Cu de l'industrie électrique ou à l'As des produits phytosanitaires (Chiffolleau *et al.*, 2001). Les sources de contamination le sont aussi par conséquent. Durant toutes les phases d'élaboration et/ou de recyclage de ces produits, des métaux sont rejetés, parfois en abondance, dans l'environnement, soit directement dans les eaux continentales (rejets industriels ponctuels), soit dans l'atmosphère où ils peuvent être transportés par les vents à des milliers de kilomètres, associés aux poussières avant de se déposer par voie sèche ou par voie humide, bien que la majeure partie de ces émissions atteigne le sol à proximité des sources (*e.g.* Sobanska, 1999). L'utilisation de produits finis contenant des métaux (l'automobile et l'agriculture par exemple) en dissémine des quantités importantes dans l'environnement. Il s'agit d'une contamination généralement diffuse (épandage d'engrais phosphatés naturellement enrichis en Cd par exemple), bien que des régions à forte densité de population et en particuliers les grandes métropoles soient propices à des émissions importantes. Les fortes concentrations de métaux dans les rejets urbains en sont la résultante.

Dans la région du Nord-Pas-de-Calais, concernant la production de Pb dans l'air, la répartition par secteur industriel en 2006 est la suivante (DRIRE Nord-Pas-de-Calais, IRE 2007) :

- sidérurgie/métallurgie/fonderie : 12 242 kg.an<sup>-1</sup>,
- verre/matériaux : 1 129 kg.an<sup>-1</sup>,
- énergie : 491 kg.an<sup>-1</sup>,
- traitements de déchets : 375 kg.an<sup>-1</sup>,
- chimie/pétrole : 191 kg.an<sup>-1</sup>,
- autres : 18 kg.an<sup>-1</sup>.

La prise de conscience politique en matière d'environnement a permis de diminuer les rejets polluants directs. L'importance qu'attribue le législateur à la protection de l'environnement se reflète entre autres dans le nombre déjà croissant de lois et de règlements qui ont été établis lors des trente dernières années. En outre, une politique de l'environnement

commune a été définie dans le Traité sur l'Union Européenne en vigueur depuis le 1<sup>er</sup> juillet 1987. L'Union Européenne a publié une directive cadre pour la protection de l'eau ; la Directive Cadre Eau, adoptée en décembre 2000 fixe pour objectif un « bon état écologique » des eaux à atteindre en 2015.

### 1.1.2 Distribution des métaux dans les milieux aquatiques

Une fois les métaux introduits dans le milieu aquatique, ils se répartissent dans les différents compartiments : eau et sédiment. L'interface eau-sédiment forme la limite entre deux phases : l'eau et le sédiment (Santschi *et al.*, 1990). L'eau comprend une fraction solide correspondant aux matières en suspension en transit et une fraction « dissoute ». De même, le compartiment sédimentaire comprend une phase solide constituée des particules solides de sédiment et une phase liquide correspondant aux eaux interstitielles qui remplissent les pores au sein des sédiments.

Les métaux sont présents sous différentes formes chimiques en fonction des paramètres environnementaux.

#### 1.1.2.1 Dans l'eau

##### Phase dissoute

La fraction dissoute se définit expérimentalement par la filtration de l'eau brute à travers des pores de diamètre égal à 0,45  $\mu\text{m}$ . Il s'agit d'une définition courante pour distinguer les fractions dissoute et particulaire. L'avènement des techniques de filtration plus précises a permis, dans les années 70-80, d'isoler des particules plus fines (Stumm et Morgan, 1996) ; la limite dissous-particulaire a pris des valeurs de plus en plus basses (entre 0,2  $\mu\text{m}$  et 3  $\mu\text{m}$ ) et cette limite varie selon les auteurs.

Le tableau 1.3 présente quelques données sur les concentrations en métaux dans les milieux lacustre, océanique et fluvial. Les concentrations en métaux dans la fraction dissoute sont particulièrement faibles ( $10^{-6}$  à  $10^{-12}$  mol.L<sup>-1</sup>).

Area	Cu (nM)	Zn (nM)	Cd (nM)	Pb (nM)	References
U.S. East Coast rivers	17	13	0.095	0.11	Windom <i>et al.</i> (1991)
Mississippi River	23	3	0.12	—	Shiller and Boyle (1987)
Amazon River	24	0.3-3.8	0.06	—	Shiller and Boyle (1987)
Lake Constance	5-20	15-60	0.05-0.1	0.2-0.5	Sigg <i>et al.</i> (1982)
Lake Michigan	10	9	0.17	0.25	Shafer and Armstrong (1990)
Lago Cristallina <sup>a</sup>	5	30	0.5	3	Sigg (1993, personal communication)
Pacific Ocean	0.5-5	0.1-10	0.01-1	0.005-0.08	Bruland and Franks (1983)
Rainwater <sup>b</sup>	10-300	80-900	0.4-7	10-200	Sigg (1993, personal communication)

Tableau 1.3 : Concentrations de quelques métaux dissous dans les eaux naturelles. D'après Stumm et Morgan (1996).

Dans les rivières, les concentrations en métaux observées sont liées (Stumm et Morgan, 1996) :

- aux caractéristiques géochimiques des roches constitutives du bassin versant : les métaux présents dans les eaux sont issus du processus chimique de lessivage ;
- à la pollution anthropique, via les rejets directs et/ou les retombées atmosphériques ;
- ainsi qu'aux propriétés chimiques des rivières : adsorption des ions métalliques à la surface des particules ou autres substrats.

Les particules exercent un contrôle sur la solubilité des différents métaux dans les systèmes aquatiques, car le coefficient de partage solide-liquide ( $K_d$ ) est relativement stable (*e.g.* Zhang *et al.*, 1994). L'association des contaminants métalliques avec les particules est facilitée par l'abondance des particules sédimentaires en suspension.

### Phase particulaire

Les matières en suspension sont constituées par le matériel particulaire en transit dans l'eau. Les concentrations des matières en suspension sont déterminées après filtration sur membrane de porosité  $0,45\mu\text{m}$  puis une pesée après dessiccation.

Le matériel particulaire présent en suspension dans la colonne d'eau a diverses origines :

- il peut être issu des produits de l'érosion des sols alentours transportés par les eaux de ruissellement ; leur composition est alors liée à la nature des sols érodés et lessivés ;
- les activités urbaines et industrielles sont à l'origine d'un flux de matériaux de moindre importance en masse et généralement diffus ;
- les apports atmosphériques, par retombées sèches et humides, peuvent constituer une source supplémentaire de particules dans le milieu aquatique.
- la production biologique constitue une source de matériel particulaire importante. La part des apports particuliers liée à la production biologique est tributaire des cycles saisonniers qui se superposent avec les cycles hydrologiques (crue, étiage) : elle reste faible, voire négligeable, dans le cas des apports liés aux crues hivernales. Elle devient importante dès l'apparition des premiers blooms phytoplanctoniques du printemps et ce jusqu'en septembre-octobre selon les cycles climatiques annuels (Dupont *et al.*, 2001).
- l'érosion des berges et des sédiments de fond (remise en suspension) peut enrichir la quantité de matériel particulaire en transit dans les cours d'eau.

Il est admis que la majorité des contaminants inorganiques (métaux) s'associe à la matière particulaire (*e.g.* Brüggmann, 1995 ; Horowitz, 2000). Selon Calmano *et al.* (1993), plus de 90 % de la charge en métaux lourds dans les systèmes aquatiques est associée aux particules constitutives des matières en suspension et du sédiment. Pour la plupart des éléments en traces (métaux), > 90 % du flux dans les systèmes fluviaux est présent sous forme particulaire en association avec le sédiment en suspension (Walling *et al.*, 2003).

La taille du grain est un facteur important régissant le transport des contaminants. En général, la concentration en métaux associés aux particules augmente quand la taille du grain diminue et les métaux se fixent préférentiellement à la fraction argileuse (*e.g.* Förstner 2004 ; Westrich, 1986 ; Old *et al.*, 2003 ; Lee *et al.*, 2003).

La figure 1.3 illustre la relation existant entre la concentration en métaux et la taille des particules.

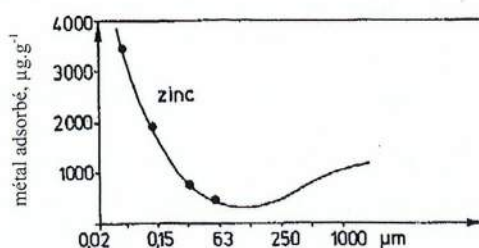


Figure 1.3 : Relation typique entre la concentration en zinc adsorbé en fonction du diamètre de la particule sédimentaire. Adapté d'après Westrich (1986).

En général la majorité des éléments métalliques associés aux matières en suspension se retrouve dans la fraction sédimentaire à granulométrie dite « fine » (Horowitz, 2000). La fraction fine des sédiments en suspension correspond aux particules dont la taille est inférieure à 62,5  $\mu\text{m}$  (Phillips *et al.*, 2000) ou 63  $\mu\text{m}$  (Walling *et al.*, 2000 ; Walling *et al.*, 2003a) ou encore 64  $\mu\text{m}$  (Lick, 1994). C'est la fraction dominant le transport de la plupart des substances naturelles et d'origine anthropique dans les systèmes fluviaux (Zonta *et al.*, 1994 ; Phillips *et al.*, 2000). Comparées aux particules sédimentaires plus grossières, celles à granulométrie plus fine ont des surfaces spécifiques plus élevées et donc des capacités d'adsorption plus importantes (Lick, 1994), ainsi qu'une mobilité plus élevée (Horowitz, 1995 cité par Old *et al.*, 2004). Walling *et al.* (2003a) souligne l'importance des particules à granulométrie fine dans l'étude du transport et du stockage des contaminants associés au sédiment dans les systèmes fluviaux.

Selon une approche traditionnelle, les études sur les sédiments (en suspension ou déposés) supposent que la distribution chimique des fractions minérales est liée à la taille (critère absolu) des particules (distribution granulométrique). Or, Droppo (2001) a souligné l'importance de considérer la structure des particules dans l'étude du transport des contaminants associés aux sédiments (en suspension ou déposés). En effet, dans la plupart des rivières, les matières en suspension sont généralement constituées de sédiments cohésifs en suspension dans l'eau et les sédiments en suspension sont essentiellement transportés sous forme de floes.

Les floes représentent une matrice complexe et hétérogène constituée de :

- composés biologiques : bactéries et autres organismes ;
- composés détritiques non biologiques ;
- particules inorganiques (argiles) ;
- eau.

La floculation contribue à modifier l'hydrodynamisme des constituants d'une particule (taille effective, forme, densité, porosité) et à influencer le transport des sédiments et des contaminants associés. Le comportement physique (transport), chimique (adsorption des contaminants) et biologique (croissance de population et transformation des contaminants) est en évolution permanente avec des conséquences sur l'environnement aquatique.

### **1.1.2.2 Dans les sédiments**

#### **Phase particulaire**

Les sédiments sont constitués de particules sédimentaires qui peuvent être d'origine endogène ou exogène.

Les sédiments d'origine endogène sont principalement issus de la production biologique intrinsèque au milieu. Cette production de matériel biologique, ou production primaire, engendre des débris de macrophytes (plantes aquatiques) et des cadavres d'animaux.

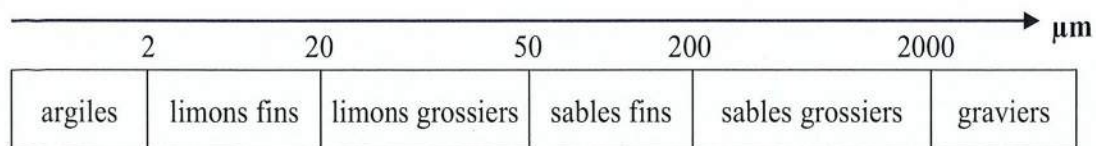
Les sédiments d'origine exogène correspondent aux matières drainées par les rivières et les fleuves, apportées par les effluents ou déposées dans le système aquatique par retombées atmosphériques. Cet apport peut être d'origine naturelle (érosion des sols, décomposition de la matière végétale) ou anthropique (apports de matières en suspension).

Le sédiment se caractérise selon deux principaux critères physico-chimiques : la distribution granulométrique et la composition minéralogique.

La caractérisation granulométrique repose sur deux hypothèses :

- la première consiste à admettre que toutes les particules sont assimilables à des sphères de même masse volumique et que l'on peut leur associer un diamètre équivalent, ou encore « diamètre apparent ».
- la deuxième hypothèse suppose qu'il existe une relation entre la taille des particules et les propriétés de la phase solide.

On peut recenser trois grandes classes granulométriques selon le diamètre des particules : les argiles < 2  $\mu\text{m}$ , les limons entre 2 et 50  $\mu\text{m}$ , les sables entre 50 et 2000  $\mu\text{m}$ , et les graviers > 2000  $\mu\text{m}$ . On distingue parfois des sous-classes de sables et de limons. La figure 1.4 recense les différentes classes granulométriques. La granulométrie d'un sédiment dépend essentiellement de son origine et des conditions hydrodynamiques de dépôt.



**Figure 1. 4 : Classification granulométrique en fonction du diamètre apparent (en  $\mu\text{m}$ ) des particules inorganiques. Adapté d'après Calvet (2003).**

Les sédiments sont dits cohésifs (vase) lorsque les particules ont une taille comprise entre 0,24 et 62  $\mu\text{m}$ . Les propriétés électriques (charges) des particules favorisent leur agglomération pour former des structures plus grosses appelées flocs ou macro-flocs. Contrairement aux sédiments non cohésifs (diamètre moyen supérieur à 62  $\mu\text{m}$ ), lorsque les sédiments cohésifs se déposent sur le fond, des liaisons se forment entre chaque particule, floccule ou macro-floccule, pour former un lit dans lequel la cohésion est importante.

La caractérisation d'un sédiment repose aussi sur l'identification des phases minéralogiques qui le composent. Deux types de composantes se distinguent : la composante minérale (inorganique) et la composante organique. Plusieurs familles minérales peuvent être présentes et leur importance relative dépend de la nature des roches et des sols drainés par le cours d'eau ainsi que des conditions hydrodynamiques et physico-chimiques des milieux de transport et de dépôt.

Il y a :

- les silicates tels que les quartz et feldspaths (tectosilicates), les micas et argiles (phyllosilicates) ;
- les carbonates de calcium (calcite), de fer (sidérite) et de manganèse (rhodocrosite) ;
- les oxydes et hydroxydes de fer et manganèse ;
- les composés soufrés où les sulfures occupent une place importante.

La composition organique, teneur et nature des constituants, d'un sédiment dépend des paramètres hydrologique, physico-chimique et biologique du milieu aquatique. La matière organique présente dans le milieu est issue de trois sources principales :

- autochtone lorsqu'il s'agit d'organismes vivants, animaux et végétaux, et des produits de leur métabolisme ;
- allochtone naturelle lorsqu'il s'agit de matériel détritique issu de l'érosion ou du lessivage des sols ;
- allochtone anthropique lorsqu'il s'agit de rejets organiques, ponctuels ou diffus, liés à l'activité humaine.

Une fraction importante des éléments métalliques introduits dans les milieux aquatiques est associée aux sédiments de fond où ils se répartissent selon une variété de formes physico-chimiques. La distribution de ces éléments métalliques dans les sédiments de fond dépend de nombreuses variables physico-chimiques propres au milieu aquatique (Tessier et Campbell, 1987).

Il est admis que le sédiment constitue le réservoir le plus important pour les métaux et autres contaminants dans les systèmes aquatiques (e.g. Gibbs, 1973 ; Lee *et al.*, 2003). Les contaminants métalliques s'accumulent à long terme dans les sédiments de fond et ce processus est historiquement considéré comme une contribution au piégeage des substances potentiellement toxiques (De Pinto *et al.*, 1994) : les contaminants métalliques introduits dans le milieu aquatique s'associent généralement à la matière particulaire qui va éventuellement s'accumuler et s'incorporer au sein des sédiments (Li *et al.*, 2001). Cependant, certaines études ont montré qu'une fois les sources externes de polluants supprimées, le rétablissement de la qualité du système aquatique n'est pas régi uniquement par la fixation des métaux sur les particules et qui contribuerait au « nettoyage » de la colonne d'eau. Il existe une chimie beaucoup plus lente qui contrôle le rétablissement à long terme du système et qui est gouvernée par l'interaction des sédiments contaminés avec l'eau sus-jacente (De Pinto *et al.*, 1994).

### Eaux interstitielles

L'eau interstitielle correspond à l'eau piégée dans les pores lors de la sédimentation des particules. Elles définissent un milieu confiné soumis de façon très limitée aux processus de mélange ou de circulation. La surface de contact entre la matrice solide et l'eau interstitielle est importante en raison du rapport  $\frac{\text{surface}}{\text{volume}}$  d'autant plus élevé que le sédiment est fin (Reeburgh, 1983 ; Förstner, 1995).

Les eaux interstitielles constituent un milieu privilégié d'échanges entre eau et particule : il en résulte une chimie complexe et particulière. Les réactions de solubilisation sont des réactions susceptibles d'affecter la distribution des éléments chimiques entre les phases liquide et solide (Tessier *et al.*, 1994). Les eaux piégées au sein des pores dans le sédiment séjournent plus longtemps au contact du sédiment que l'eau superficielle. Elles sont donc susceptibles de s'enrichir en métaux car les réactions de partage des éléments entre la phase dissoute et la phase solide tendent vers un état d'équilibre (sous contrôle cinétique). A l'interface eau-sédiment, et plus particulièrement dans la zone oxisque du sédiment (quelques millimètres en surface), des processus de minéralisation (dégradation de la matière organique par les organismes) prennent place. Ces réactions sont catalysées par l'activité microbiologique et contribuent à l'enrichissement des eaux interstitielles en éléments métalliques et autres substances chimiques (tels que les nutriments) et peuvent induire un flux diffusif des espèces depuis le sédiment vers la colonne d'eau (Blasco *et al.*, 2000). Les processus biochimiques (minéralisation) affectant les métaux présents et leur conséquence (diffusion) dans le compartiment sédimentaire seront présentés ultérieurement (cf. § 1.2.1.1).

L'échantillonnage des espèces chimiques contenues dans les eaux porales des sédiments peut être effectué à partir de deux techniques d'échantillonnage : après extraction en laboratoire (collecte de carotte de sédiment puis centrifugation suivie d'une filtration) ou prélèvement *in situ* (par dialyse).

La technique du prélèvement *in situ* repose sur l'équilibre entre l'eau environnante (eau interstitielle) et la quantité d'eau contenue dans les loges du dialyseur à travers une membrane de dialyse. L'échantillonnage des eaux interstitielles à l'aide de dialyseurs ou « peepers » est devenu courant depuis sa description par Hesslein (1976). Les solutés présents dans l'eau



interstitielle migrent par diffusion vers les cavités remplies d'eau du préleveur. Par la suite, en 1991, Davison a développé une technique d'échantillonnage similaire à la dialyse et qui repose sur l'utilisation des DET « Diffusive Equilibration in Thin films » (Davison *et al.*, 1991). Cette technique utilise un gel contenant 95% d'eau et présente deux avantages par rapport à la dialyse : le temps mis pour atteindre l'équilibre est plus court et la résolution spatiale est meilleure (Harper *et al.*, 1997). La technique DET a été utilisée dans les eaux douces (Davison *et al.*, 1991 ; Davison *et al.*, 1994 ; Shuttleworth *et al.*, 1999) et dans les environnements marins (Shuttleworth *et al.*, 1999 ; Fones *et al.*, 2001 ; Zhang *et al.*, 2002). En 1993, Davison et Zhang développent une nouvelle technique de prélèvement *in situ* des espèces dissoutes : les DGT « Diffusive Gradients in Thin films ». La technique est basée sur la diffusion des espèces labiles à travers une épaisseur de gel suivie de leur adsorption sur une résine.

Angelidis *et al.* (1997) ont mené une étude comparative sur les deux méthodes d'échantillonnage les plus utilisées : la dialyse *in situ* et la centrifugation suivie d'une filtration. Ils ont sélectionné deux groupes de substances chimiquement différentes (relativement inertes ou impliquées dans des processus biogéochimiques) et ils montrent que la dialyse *in situ* semble donner des mesures plus justes pour les concentrations en espèces réactives dans les eaux porales.

Gabelle (2006) a présenté une description critique des différentes méthodes de détermination des teneurs en espèces chimiques dans les eaux interstitielles des sédiments : DET, DGT et centrifugation. Son travail a notamment contribué à la validation et l'optimisation des techniques récentes de diffusion sur gel.

### **1.1.3 Réactivité des métaux dans les sédiments**

Les sédiments sont des milieux solides hétérogènes qui incluent phases minérales et matière organique détritique. Les métaux peuvent être liés de différentes façons : par précipitation, co-précipitation, échange ionique et adsorption. Certaines espèces chimiques métalliques sont particulièrement stables et ne participent pas à des réactions d'échange avec la phase aqueuse pendant de longues périodes de temps et ne devraient donc pas être considérées dans les réactions contrôlant la distribution chimique des éléments entre les phases solide et liquide. Notamment, les métaux issus des débris de roches et ceux inclus dans les matrices des minéraux argileux ne sont pas sujets aux réactions de partage à l'échelle de la décennie (*e.g.* Allen, 1994).

#### **1.1.3.1 Spéciation chimique : méthodes**

L'étude de la spéciation chimique des métaux dans le milieu solide se fait généralement selon deux approches. La première passe par l'extraction séquentielle et sélective des métaux dans les échantillons solides, tandis que l'autre s'appuie sur une approche mécanistique où le système est assimilé à plusieurs séries d'équilibres simultanés (Allen, 1994).

Les méthodes d'extraction séquentielle et sélective fournissent des informations sur les sites de fixation des métaux en s'appuyant sur l'utilisation séquentielle de réactifs capables d'extraire sélectivement les métaux faiblement fixés puis ceux liés aux fractions solides plus résistantes (Tessier *et al.*, 1979).

En général, cinq fractions se distinguent (Tessier *et al.*, 1979) :

- la fraction échangeable (métaux liés aux argiles, oxydes hydratés de fer et manganèse, acides humiques) ;
- la fraction carbonatée (métaux associés aux carbonates) ;
- la fraction oxy-hydroxyde de Fe et Mn (métaux associés sous forme de nodules et/ou concrétions, sorbés) ;
- la fraction associée à la matière organique ;
- la fraction résiduelle : on y retrouve les métaux résiduels qui ont résisté aux quatre premières extractions ; il devrait s'agir de la fraction constituée par les minéraux primaires et secondaires incluant les métaux au sein de leur structure cristalline. Les métaux contenus dans cette fraction ne devraient pas participer aux réactions d'échange en solution pendant un temps raisonnablement long dans les conditions environnementales.

La méthode d'extraction séquentielle a largement été utilisée dans la littérature (Tessier *et al.*, 1979 ; Tessier et Campbell, 1987 ; Lead *et al.*, 1998 ; Dong *et al.*, 2000 ; Fan *et al.*, 2002 ; Dong *et al.*, 2003 ; Tsai *et al.*, 2003) et a fait l'objet de critiques car cette méthode d'extraction n'est pas parfaitement sélective et fait intervenir des processus de ré-adsorption (e.g. Fan *et al.*, 2002).

L'extraction d'une fraction géochimique spécifique des sédiments reste une notion définie par un mode opératoire particulier et l'interprétation des résultats est limitée (Wallmann *et al.*, 1983 ; Kerstern et Förstner, 1986 ; Tessier et Campbell, 1987 ; Martin *et al.*, 1987). Le protocole établi par Tessier *et al.* (1979) est récurrent dans la littérature et souvent sujet à modifications. Actuellement, le BCR (« Community Bureau of Reference ») a pour but de coordonner et d'encourager le développement et la validation d'un schéma d'extraction (pour les sols) afin d'harmoniser la méthodologie (Ure, 1996 ; Quevauviller *et al.*, 1996a ; Quevauvillier *et al.*, 1996b ; Rauret *et al.*, 1998). Dans la littérature, les protocoles s'appuient souvent sur celui de Tessier *et al.* (1979) et/ou suivent les recommandations du BCR avant d'être « adaptés » en fonction des objectifs de l'étude et de la nature de la matrice (e.g. Wallmann *et al.*, 1983 ; Kersten et Förstner, 1986 ; Li *et al.*, 2000 ; Billon, 2001 ; Lacal *et al.*, 2003 ; Lions, 2004 ; Caplat *et al.*, 2005 ; Gouzy *et al.*, 2005 ; Nieto *et al.*, 2007). Certains auteurs ont montré que les concentrations en métaux extraites avec de l'acide nitrique ou de l'acide chlorhydrique expliquent généralement la variation des teneurs observées dans les sédiments (e.g. Argese *et al.*, 1997).

En outre, la spéciation des métaux dans les phases solides peut être abordée directement par les méthodes classiques de la minéralogie :

- diffraction des Rayons X sur échantillon total ;
- pétrographie en lame mince ;
- microsonde électronique pour la caractérisation des phases microscopiques ;
- microscopie électronique MEB (Microscopie Electronique à Balayage) et MET (Microscopie Electronique à Transmission). La MEA (Microscopie Electronique Analytique) utilise le couplage du microscope avec un système d'analyse ;
- les méthodes plus « sophistiquées » : fluorescence X sur rayonnement synchrotron, spectroscopie de fluorescence (XRF) en dispersion d'énergie (EDS) ou en dispersion de longueur d'onde (WDS) ou encore spectroscopie par perte d'énergie (EELS), spectroscopie ionique (SIMS), spectroscopie par rayons X durs, spectroscopie EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) pour déterminer la spéciation et la quantité des métaux, micro-spectrométrie XANES (X-ray Absorption Near Edge Structure) pour préciser le degré d'oxydation et la coordinence.

### 1.1.3.2 Mécanismes de fixation

Les sédiments constituent des structures très hétérogènes : des différences significatives peuvent concerner aussi bien les importances respectives des divers constituants, l'arrangement de ces constituants entre eux, le classement granulométrique des particules, les conditions physico-chimiques, que l'intensité des réactions diagénétiques, du dépôt et de l'érosion. Dans les sédiments, les processus de fixation des métaux à certains constituants particuliers. Ils sont présentés dans la figure 1.5.

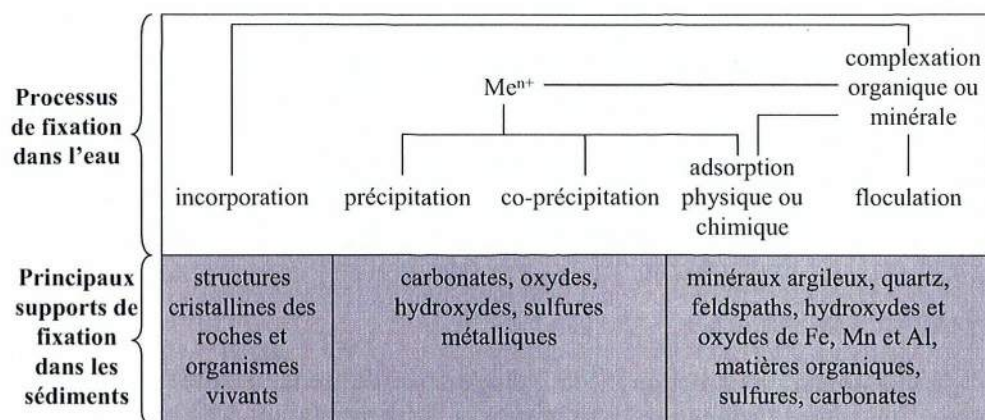


Figure 1.5 : Mécanismes de transfert des cations métalliques ( $Me^{n+}$ ) aux sédiments. Adapté d'après Lebreton (1996).

Les substrats propices à la fixation des métaux sont constitués par (Tessier *et al.*, 1985 ; Calmano *et al.*, 1993 ; Eggleton et Thomas, 2004) : les argiles, les carbonates, les silicates, la matière organique (substances humiques), le matériel biologique (algues et bactéries), et les oxy-hydroxydes de Fe, Mn, Al et Si.

Le tableau 1.4 met en évidence les différents sites importants de fixation des contaminants métalliques au sein des sédiments en fonction du cation métallique.

Contaminant	Sedimentary fraction	Author(s)
$Cu^{2+}$	Sulphide	Lopez-Sanchez et al., 1996;
	Organic matter	Calmano et al., 1993 Lopez-Sanchez et al., 1996
	Residual	Fan et al., 2002; Shul'kin and Bogdanova, 1998; Li et al., 2000
$Pb^{2+}$	Mn oxide	Dong et al., 2000; Fan et al., 2002; Lopez-Sanchez et al., 1996
$Cd^{2+}$	Fe/Mn oxides	Forstner et al., 1989; Zhuang et al., 1994; Dong et al., 2000
	Organic matter	Shul'kin and Bogdanova, 1998
	Exchangeable cations/carbonates	Lopez-Sanchez et al., 1996
$Zn^{2+}$	Sulphide	Shul'kin and Bogdanova, 1998
$Cu^{2+}$	Fe/Mn oxides	Lopez-Sanchez et al., 1996; Hursthouse, 2001
	Residual	Lopez-Sanchez et al., 1996
PCB	Mineral solids/ Organic matter	Chen et al., 1999
PAH	Organic carbon	Woodhead et al., 1999
Organotins	Organic matter/paint particles	Horiguchi et al., 2001; Langstone and Pope, 1995
Methylmercury	Dissolved Organic Carbon (DOC)	Conaway et al., 2003; Langstone and Pope, 1995

Tableau 1.4 : Sites importants de fixation des contaminants organiques et inorganiques au sein du sédiment. D'après Eggleton et Thomas (2004).

Les principaux facteurs contrôlant la mobilité des métaux dans la phase liquide sont le potentiel hydrogène (pH) et le potentiel d'oxydoréduction (Eh ou pe). La figure 1.6 illustre de manière simplifiée l'influence de ces deux paramètres sur la mobilité des éléments métalliques présents en faibles concentrations.

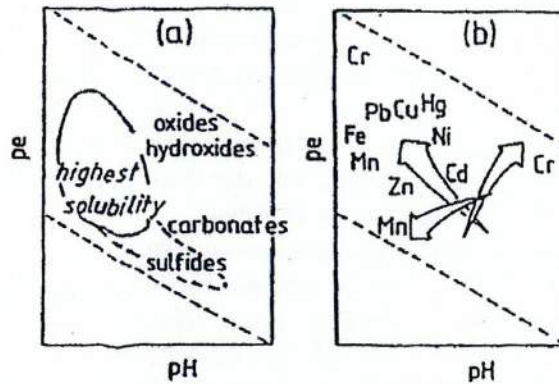
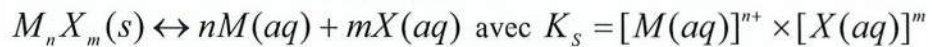


Figure 1. 6 : Influence du potentiel hydrogène et du potentiel d'oxydoréduction sur la mobilité des éléments traces métalliques (en l'absence de matière organique). (a) les principaux minéraux contrôlant la solubilité des métaux. (b) les tendances à augmenter la solubilité. D'après Bourgh et Loch (1995).

### Précipitation

La précipitation est un mécanisme important à considérer dans la fixation des métaux dans les sédiments. Les deux classes principales de précipités présents dans les sédiments sont les carbonates et les sulfures de métaux. La précipitation des métaux sous forme de sulfures métalliques est probablement la réaction dominante dans le contrôle de la solubilité de nombreux métaux dans les milieux anoxiques, alors que la carbonatation des métaux serait un processus important dans les milieux où l'alcalinité est élevée (Allen, 1994).

Les réactions de précipitation peuvent aboutir à des équilibres chimiques où la réaction inverse est désignée par la dissolution ; selon la composition de la solution, un composé minéral pourra précipiter ou se dissoudre. L'équilibre réactionnel se caractérise par le produit de solubilité  $K_s$  :



Ces réactions de précipitation/dissolution sont rarement celles qui contrôlent la répartition solide/eau des métaux ; il y a cependant quelques exceptions pour certains éléments minéraux :

- Zn : ZnS, ZnCO<sub>3</sub>, ZnSiO<sub>3</sub> ;
- Pb : Pb(OH)<sub>2</sub>, PbCO<sub>3</sub>, Pb(OH)<sub>2</sub>(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, Pb<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>X où X désigne un ion chlorure ou hydroxyde ;
- Cd : CdCO<sub>3</sub>, CdS.

Lorsqu'un microcomposant (concentration faible) est entraîné par un macrocomposant (concentration bien plus élevée) pour former un sel insoluble, il s'agit de la co-précipitation. Si les deux composants du sel (micro et macro composant) sont isomorphes (même composition et même structure), il s'agit de syncristallisation ; dans le cas contraire, le microcomposant ne pouvant pas s'intégrer à la structure cristalline du précipité, est fixé à la surface des grains composant le précipité : il s'agit de l'adsorption

### Sorption et adsorption

Le terme sorption est communément employé pour désigner le partage solide/liquide des solutés, résultat de différents processus tels que l'adsorption (en surface), l'absorption (plus en profondeur), voire un partage physique du solide entre les deux phases. L'adsorption est à la base de la plupart des processus chimiques qui ont lieu en surface (Stumm et Morgan, 1996).

L'adsorption d'une molécule sur un solide peut résulter de trois types de forces :

- physiques pour les liaisons du type Van der Waals (liaisons polarisées) ;
- électrostatiques pour les molécules ionisées ;
- chimiques pour les liaisons hydrogène ou covalentes.

De nombreuses études ont montré que le phénomène d'adsorption est un processus se déroulant en deux temps, avec une première phase très rapide due à la sorption sur les surfaces externes des solides, suivie d'une phase plus lente due à la diffusion au sein de la matrice solide. Deux approches différentes, empirique (à l'aide d'isothermes) et conceptuelle (utilisation de modèles de complexation et d'échange permettant d'intégrer les cinétiques de réaction), sont généralement utilisées pour modéliser le phénomène de sorption ; elles tendent à étudier celui-ci dans des conditions d'expériences où l'équilibre est atteint.

Les éléments métalliques ont tendance à s'adsorber à la surface des phases solides en présence. Toutefois, de nombreux paramètres peuvent influencer le degré de répartition des substances entre les phases liquide et solide, et notamment :

- les conditions physico-chimiques du milieu (pH, t°, concentrations en métaux et en particules...) ;
- les propriétés intrinsèques des substances et des sites d'adsorption (contribuant à la stabilité de la liaison chimique existante) ;
- le nombre de types de sites d'adsorption et leur concentration totale respective (souvent assimilée à la mesure de la capacité d'échange ionique).

La littérature recense moult publications sur l'adsorption des métaux à la surface de solides, à la fois dans les matières en suspension et dans le sédiment (Tessier *et al.*, 1985 ; Jenne, 1995 ; Hamilton-Taylor, 1997 ; Lead *et al.*, 1999 ; Dong *et al.*, 2000 ; Blasco *et al.*, 2000 ; Zhang *et al.*, 2002 ; Dong *et al.*, 2003). Le mécanisme d'adsorption est supposé être un mécanisme important dans le contrôle des éléments métalliques présents en solution (Tessier *et al.*, 1985 ; Allen, 1994 ; Petersen, 1995), car les réactions d'équilibre de solubilité des phases solides pures ne sont pas appropriées dans les conditions oxydées des eaux naturelles (systèmes hors équilibre). L'adsorption affecte les concentrations, la biodisponibilité et les temps de résidence des éléments métalliques dans les eaux naturelles de surface (Hamilton-Taylor *et al.*, 1997). Le tableau 1.5 présente les coefficients de partage ( $K_d$ ) de certains éléments métalliques en milieu fluvial.

River	Cd	Co	Cu	Fe	Mn	Ni	Pb	Zn	Reference
Huanghe	4.90-5.99	5.53-6.29	4.04-4.40	5.88-7.47	5.30-6.10	4.76-5.16	5.46-6.15	5.02-5.98	[1]
Changjiang	5.09-5.23		4.33-4.49				5.81-5.95		[2]
Mississippi	4.60-4.98		4.15-4.27	6.95-7.62	5.20-6.30	4.35-4.69	5.23-5.62		[3]
St. Lawrence	4.09	4.95	4.53	5.96	5.32	4.43		4.60	[4]
Nile			5.15-5.25				5.17-5.31		[5]

Tableau 1.5 : Coefficients de distribution  $K_d$  en log pour différents métaux dans quelques fleuves majeurs. D'après Zhang *et al.* (1994).

L'adsorption des éléments métalliques à la surface des solides est dépendante des paramètres physico-chimiques de la solution (pH, force ionique, spéciation métallique), de la granulométrie, et de la composition des phases solides (teneur en matière organique et en oxydes métalliques). La taille des particules et la surface totale disponible qui en résulte sont deux facteurs très importants dans les processus d'adsorption (Luoma, 1989).

Dans les environnements aquatiques superficiels, les phases de sorption prédominantes dans la fixation des métaux sont assurées par la matière organique et les oxy-hydroxydes de Fe et Mn (Balistriero et Murray, 1986 ; Müller et Sigg, 1990 ; Allen, 1994 ; Petersen, 1995 ; Lead *et al.*, 1998 ; Hölmström *et al.*, 2000 ; Blasco *et al.*, 2000 ; Zoumis *et al.*, 2001 ; Fan *et al.*, 2002 ; Li *et al.*, 2003). Les oxy-hydroxydes de Mn adsorbent de nombreux métaux traces en raison de leur grande surface spécifique (Santschi *et al.*, 1990). Certains auteurs ont discuté de la contribution relative entre la matière organique et les oxy-hydroxydes de Fe et Mn (Dong *et al.*, 2000), ainsi que de l'importance relative entre les oxy-hydroxydes de Fe et de Mn (Dong *et al.*, 2000 ; Dong *et al.*, 2003 ; Li *et al.*, 2003). D'autres discutent de l'influence de la variation saisonnière sur l'importance relative des oxy-hydroxydes de Fe et Mn (Hölmström *et al.*, 2000).

Les mécanismes impliqués dans l'adsorption des éléments métalliques à la surface des oxy-hydroxydes de Fe et Mn et de la matière organique sont marqués par des incertitudes, car les particules de sédiment ne sont pas homogènes et affichent des structures variables (Li *et al.*, 2003). La compréhension du phénomène d'adsorption requiert l'intervention de couches superficielles se développant à la surface des particules solides appelées biofilms. Il a été montré qu'il existe une couche superficielle de fixation (« surface coatings ») enveloppant les particules sédimentaires dans tous les types d'environnements aquatiques naturels (*e.g.* Dong *et al.*, 2000 ; Li *et al.*, 2003). Cette pellicule est supposée jouer un rôle essentiel dans le transport des métaux, dans la mesure où ces derniers doivent la franchir afin d'atteindre le substrat solide (Dong *et al.*, 2000 ; Li *et al.*, 2003 ; Dong *et al.*, 2003 ; Förstner, 2004). Dans les conditions environnementales, les surfaces des minéraux sont, au moins partiellement, recouverts par un biofilm. La fixation des métaux sur les bactéries superficielles est considérée comme un phénomène passif parmi les processus d'interaction électrostatique entre cations métalliques et groupements superficiels et cellulaires anioniques (Förstner, 2004).

## 1.2 Transfert des métaux à l'interface eau-sédiment

L'interface eau-sédiment définit une limite entre un mélange de sédiments solides et d'eaux interstitielles et une colonne d'eau sus-jacente (Lerman, 1978).

Les espèces chimiques peuvent être échangées plusieurs fois à travers l'interface eau-sédiment avant d'être définitivement immobilisées dans les sédiments ou remobilisées dans la colonne d'eau. Le recyclage des espèces chimiques à l'interface eau-sédiment est assuré par un ensemble de mécanismes chimiques, biologiques ou physiques.

La figure 1.7 illustre les mécanismes intervenant dans le transport et la transformation des contaminants dans un système aquatique. Les métaux s'intègrent dans un cycle : les métaux introduits sous forme dissoute s'associent aux particules en suspension qui vont s'accumuler à la surface des sédiments. Les processus diagénétiques dans les sédiments peuvent induire une remobilisation des métaux par diffusion vers l'eau de surface. De même, les perturbations physiques à la surface des sédiments provoquent une variation des paramètres biogéochimiques affectant la remobilisation des métaux. Les métaux une fois remobilisés peuvent s'associer de nouveau aux particules en suspension et être transportés vers l'aval, ou, rester en solution dans l'eau. Enfin, les perturbations physiques à la surface des sédiments

provoquent également le transfert des métaux sous forme particulaire dans l'eau qui vont s'accumuler à nouveau à la surface des sédiments.

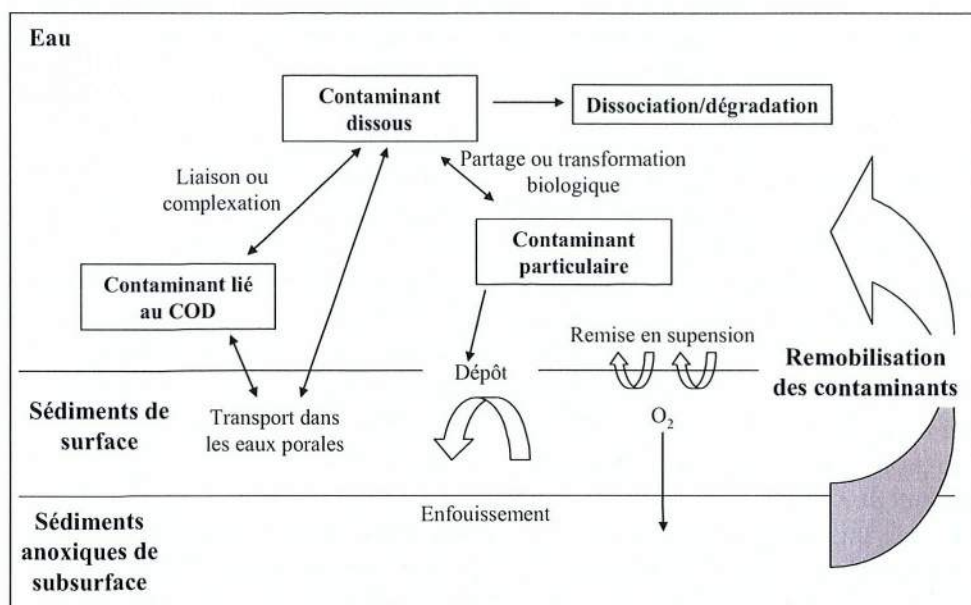


Figure 1.7 : Transport et transformation des contaminants dans les sédiments. Adapté d'après Eggleton et Thomas (2004).

## 1.2.1 Dans un sédiment non perturbé

### 1.2.1.1 Diagenèse des sédiments

La diagenèse correspond à l'ensemble des processus physiques, chimiques et biologiques qui modifient le sédiment et qui se déroulent immédiatement dès que les particules se déposent au fond des milieux aquatiques (Berner, 1980). La diagenèse précoce prend place pendant l'enfouissement des particules sédimentaires et comprend les processus suivants :

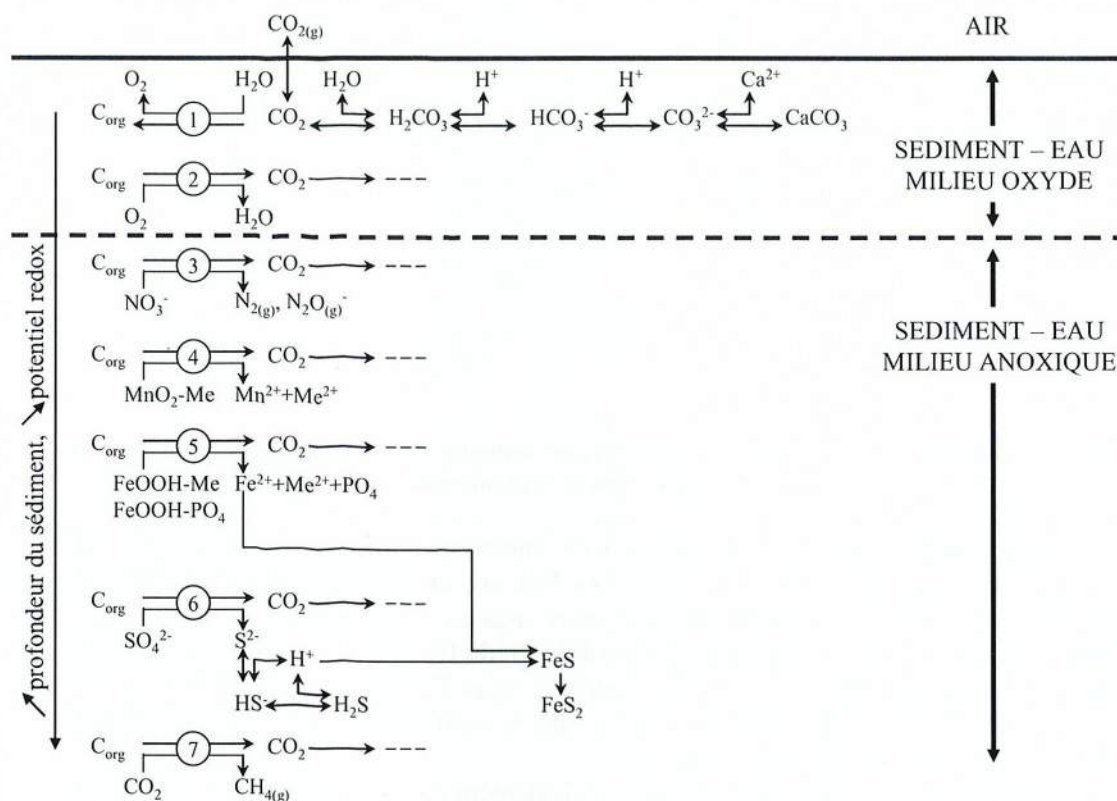
- la compaction des boues avec évacuation des eaux poreuses ;
- l'activité biologique due aux organismes ;
- la décomposition bactérienne de la matière organique ;
- la formation d'agrégats.

La compaction des sédiments et l'expulsion des eaux poreuses qui en résulte constitue un processus advectif. La compaction est causée par la pression des sédiments sus-jacents (Berner, 1980). La compaction modifie la teneur en eau du sédiment et peut indirectement influencer sur les autres processus diagenétiques tels que la diffusion.

Dans le cas des sédiments fins, les échanges avec la colonne d'eau sont très faibles et un confinement s'établit : l'interface eau-sédiment est la limite entre deux milieux aux caractéristiques physico-chimiques contrastées évoluant presque indépendamment.

D'un point de vue chimique, la diagenèse précoce des sédiments est dominée par la dégradation de la matière organique à laquelle la flore bactérienne contribue activement. La dégradation de la matière organique correspond à une séquence de réactions mises en jeu et a des conséquences sur le milieu interstitiel. Après enfouissement dans les sédiments, la matière organique subit une dégradation progressive pilotée par des processus d'oxydoréduction et catalysée par l'activité bactérienne : chaque étape fait intervenir un donneur d'électron qui

sera oxydé et un accepteur d'électron qui sera réduit. La figure 1. 8 représente la succession des processus biogéochimiques intervenant dans le système aquatique.



**Figure 1. 8 : Diagramme schématisé des processus biogéochimiques dans le système eau-sédiment. Adapté d'après Förstner (1995). 1-Photosynthèse, 2-minéralisation en milieu oxydé, 3-dénitrification, 4-réduction du Mn, 5-réduction du Fe, 6-réduction des sulfates, et 7-méthanisation.**

Dans les environnements continentaux, les zones diagénétiques se développent dans les premiers millimètres (ou centimètres) de sédiments. L'extension limitée des zones diagénétiques est liée à l'apport de matière organique réactive mais également à la faible disponibilité des oxydants externes, principalement les nitrates et les sulfates. Les sédiments continentaux riches en matière organique et déposés sous une colonne d'eau oxydée se caractérisent par le développement de conditions anoxiques très proches de l'interface eau-sédiment : les eaux interstitielles sont rapidement marquées par l'absence d'oxygène, la présence de  $Fe^{2+}$ ,  $Mn^{2+}$  et de sulfures. Ensuite, les profils sont influencés par d'autres réactions redox (e.g. réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn) ou par des réactions post-dépôt (dissolution/précipitation). La figure 1.9 montre des profils caractéristiques d'environnements continentaux.

Les conditions aérobies se limitent aux millimètres supérieurs. La consommation de l'oxygène n'est pas liée uniquement à la respiration mais aussi à l'oxydation des phases solides réduites (e.g.  $FeS$ ) et des phases dissoutes (e.g.  $Fe^{2+}$ ,  $Mn^{2+}$ , ammonium, sulfures, méthane dissous). La respiration ne représente qu'une faible partie de l'oxygène consommé. La présence d'oxygène dissous dans les premiers mm diminue le flux diffusif des constituants réduits de l'eau interstitielle vers la colonne d'eau.



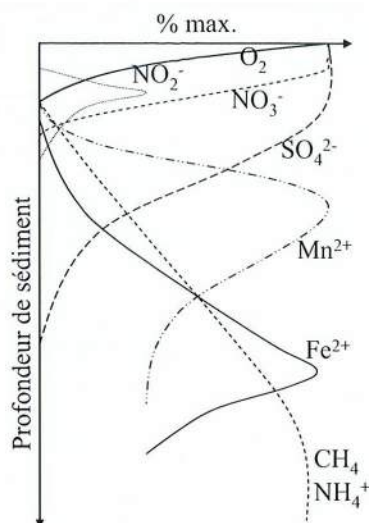


Figure 1.9 : Profil de concentrations dans les eaux interstitielles. Cas des sédiments d'eau douce (Lac Michigan). Adapté d'après Nealson et Stahl (1997).

La dénitrification est aussi limitée aux cm supérieurs. Le  $NO_3^-$  est réduit complètement dès le premier centimètre étant donné le faible flux des nitrates de la colonne d'eau vers les sédiments et la dégradation rapide de la matière organique. Le  $Mn^{3+,4+}$  et le  $Fe^{3+}$  des oxyhydroxydes passent vers d'autres phases solides réduites (e.g.  $MnCO_3$ ,  $FeCO_3$ ,  $FeS$ ). Le maximum de concentration en  $Mn^{2+}$  est observé sous l'interface eau-sédiment, ensuite le  $Mn^{2+}$  diminue. La distribution du Mn entre phases solide et dissoute est contrôlée par la précipitation de rhodocrosite ( $MnCO_3$ ).

Le Fe et le Mn dissous sont séparés verticalement car le  $Fe^{2+}$  est réoxydé par  $MnO_2$  en profondeur. L'équilibre impliquant des minéraux magnésiens est plus rapidement atteint que celui impliquant des minéraux ferrières. Suite à la bioturbation et au mélange physique des sédiments,  $Fe^{2+}$  et  $Mn^{2+}$  dissous et solides peuvent être oxydés ou re-précipités et s'associer aux oxyhydroxydes de Fe-Mn. Ces oxydes ont des propriétés d'adsorption importantes et jouent un rôle sur le piégeage d'autres éléments en traces. Lorsque la couche oxydée est mince ou absente, la diffusion du  $Mn^{2+}$  et du  $Fe^{2+}$  vers la colonne d'eau est possible.

Les sulfates chutent vers 0 dans les 1ers cm de sédiment. Le sulfate de l'eau des eaux interstitielles est réduit en sulfures, principalement sous forme inorganique. Bien que la pyrite soit le sulfure le plus stable, sa formation dans les sédiments est controversée.  $FeCO_3$  et  $FeS$  peuvent contrôler la concentration en  $Fe^{2+}$  des eaux interstitielles dans la couche anoxique des sédiments.

La réduction des sulfates est l'une des dernières étapes dans la séquence redox pilotée par l'activité bactérienne. Ce processus diagénétique n'a généralement pas lieu à proximité de l'interface eau-sédiment et se situe en profondeur dès lors que tous les accepteurs d'électrons sont épuisés. Cependant, dans les milieux où l'apport de carbone organique est élevé et où la bioturbation est présente, les particules sédimentaires contenant des sulfures peuvent se retrouver à proximité de l'interface eau-sédiment (Santschi *et al.*, 1990).

La présence de  $NH_4^+$  est due à la dégradation de la matière organique azotée. La production continue de  $NH_4^+$  indique un processus de méthanisation, même sous la zone de réduction des sulfates. La méthanisation est souvent le processus de dégradation de la matière organique dominant sous les 1ers cm de sédiment. Dans les sédiments riches en matière organique, la concentration de  $CH_4$  dépasse souvent la limite de solubilité et en résulte une production de bulles de méthane.

La plupart des réactions diagénétiques ont lieu dans les sédiments de surface et leur séquence en fonction de la profondeur sont bien connues. La figure 1.10 illustre la séquence

idéale dans les sédiments en fonction du potentiel du couple redox et l'énergie dégagée par la dégradation de la matière organique en fonction de l'espèce oxydante ( $O_2$ ,  $NO_3^-$ ,  $Fe^{3+}$ ,  $SO_4^{2-}$  et  $CO_2$ ).

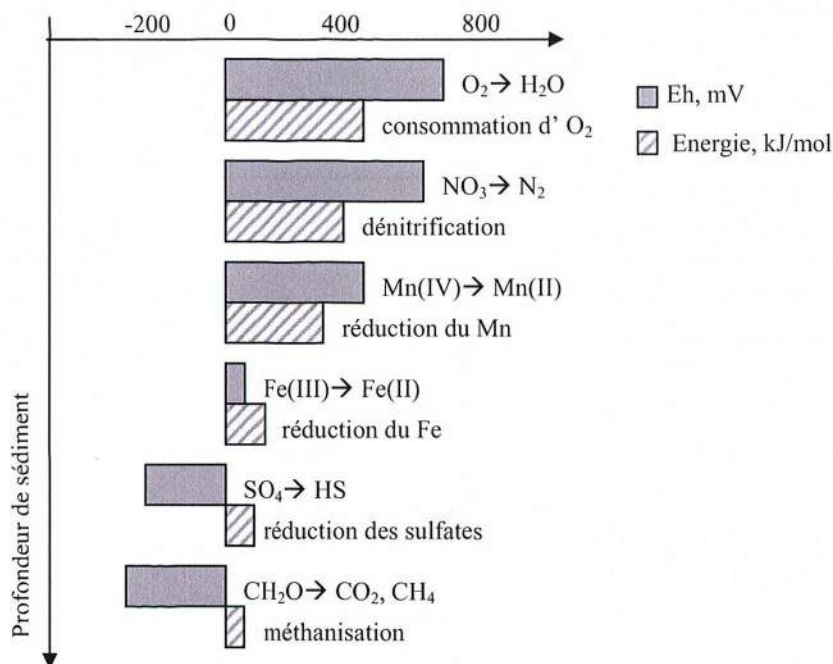


Figure 1. 10 : Séquence des réactions redox dans les sédiments de surface. Adapté d'après Santschi *et al.* (1990).

Si le système n'est pas perturbé, chaque couple redox va imposer la valeur de son potentiel redox dans le milieu tant que l'espèce oxydante n'est pas complètement consommée (figure 1.11, cas A). Cependant, lorsque les sédiments sont soumis à des phénomènes de mélange, l'oxygène de l'eau (première espèce oxydante) pénètre dans les sédiments. Si cette pénétration se fait avant consommation complète de l'oxygène dans le milieu, alors les autres espèces inorganiques oxydantes ne sont pas sollicitées. Le cas B (figure 1.11) illustre de manière schématique la séquence des étapes intervenant dans la diminution du potentiel redox entre deux perturbations affectant les sédiments.

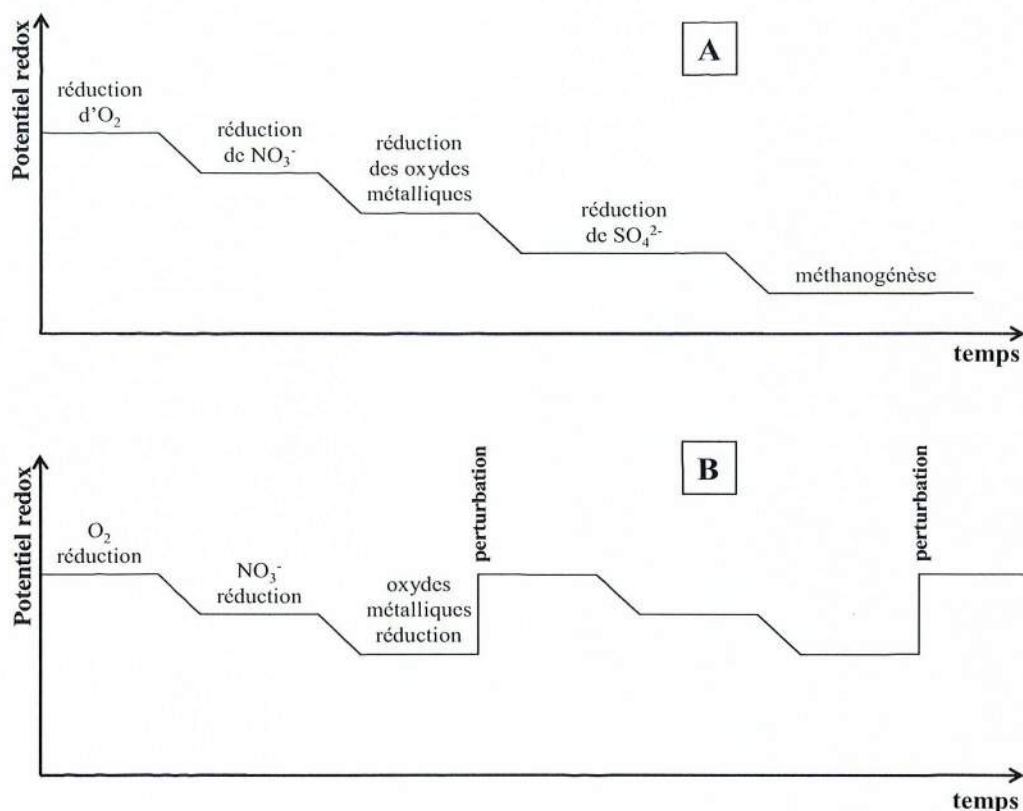


Figure 1. 11 : Représentation schématique des étapes dans la décroissance du potentiel redox en fonction du temps. Cas A : système fermé sans perturbation. Cas B : système soumis à perturbation. Adapté d'après Förstner (1995).

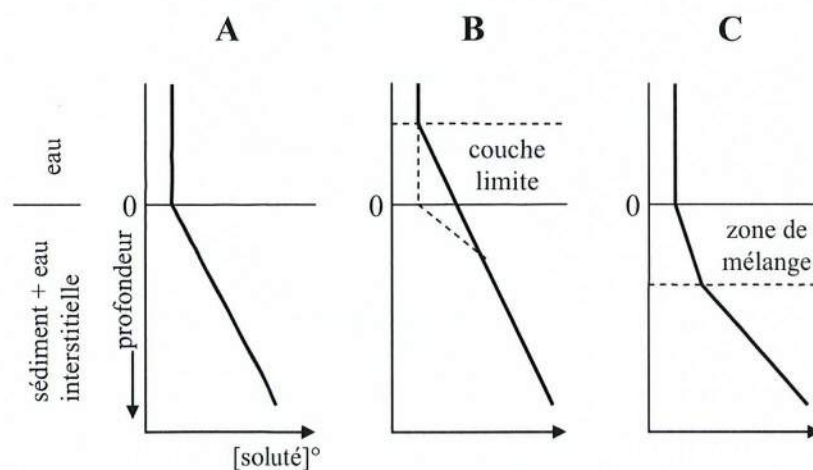
### 1.2.1.2 Diffusion à l'interface eau-sédiment

Les mécanismes de transport des espèces chimiques à travers l'interface eau-sédiment se regroupent par catégories (Lerman, 1978) :

- le flux sédimentaire de matériel solide ;
- le flux entrant de matériel dissous et d'eau vers le sédiment, lié à l'augmentation de la colonne sédimentaire ;
- le flux partant de matériel dissous et d'eaux porales depuis le sédiment, causé par le gradient de pression hydrostatique des aquifères ;
- le flux de diffusion moléculaire dans les eaux porales ;
- le mélange de l'eau et du sédiment à l'interface, lié à la perturbation des sédiments par l'activité biologique et les turbulences de l'eau.

Lerman (1978) a schématisé trois modèles d'interface eau-sédiment, représentés sur la figure 1.12. Dans le cas A, l'eau sus-jacente à l'interface eau-sédiment est homogène : il n'y a pas de gradient de concentration du soluté dans l'eau. Sous l'interface eau-sédiment, un gradient de concentration peut apparaître car la vitesse de transport d'un soluté dans l'eau interstitielle est plus faible. A l'interface eau-sédiment, les concentrations de l'eau du fond et de l'eau interstitielle sont égales. Dans le cas B, le courant est laminaire et une diffusion moléculaire a lieu dans la couche limite. L'existence d'une telle couche limite présentant un gradient de concentrations peut induire un flux diffusif à travers l'interface eau-sédiment. Enfin, dans le cas C, la couche sédimentaire située juste en-dessous de l'interface eau-sédiment est caractérisée par un transport plus rapide des solutés en comparaison avec la couche sédimentaire située plus en profondeur. L'apparition d'une couche de mélange dans le

sédiment est liée à l'activité biologique des organismes fousseurs (bioturbation) et à l'introduction d'eau à proximité du sédiment (turbulences).



**Figure 1. 12 : Représentation schématique de l'interface eau-sédiment. En ordonnée, distance verticale entre eau et sédiment, et en abscisse, concentration d'un soluté dans la colonne d'eau et les eaux interstitielles. Adapté d'après Lerman (1978).**

La diffusion moléculaire se réfère à la diffusion dans une même phase d'un constituant (atome, ion, molécule) pouvant se dérouler au sein du solide, en surface des solides, ou dans les eaux interstitielles. La diffusion en solution aqueuse est décrite par la Première Loi de Diffusion de Fick (Berner, 1980) et pour des espèces non chargées :

$$1^{\text{ère}} \text{ loi de diffusion } J_i = -D_i \frac{\partial C_i}{\partial x} ;$$

où  $J_i$  désigne le flux diffusif du constituant  $i$  en masse par unité de surface et par unité de temps,  $C_i$  désigne la concentration du constituant  $i$  en masse par unité de volume,  $D_i$  le coefficient de diffusion de  $i$  en surface par unité de temps, et  $x$  la direction du gradient de concentration maximal.

Avant d'appliquer la loi de Fick dans les sédiments, de nombreuses modifications doivent être effectuées. Dans le sédiment, il faut tenir compte de la porosité  $\phi$  :

La 1<sup>ère</sup> loi de diffusion de Fick s'écrit :  $J_s = -\phi D_s \frac{\partial C}{\partial x}$  où  $J_s$  désigne le flux diffusif au sein des sédiments, en unité de masse par unité de surface du sédiment total et par unité de temps.

Lorsqu'une espèce chimique en solution est consommée dans les eaux interstitielles, un gradient de concentration va s'établir à travers l'interface eau-sédiment. La concentration du soluté dans l'eau sus-jacente peut être considérée constante car le réservoir « eau » est infini par rapport au réservoir « sédiment ». Le gradient de concentration qui s'établit correspond à un état d'équilibre. Cet état d'équilibre persiste tant que la concentration du soluté dans l'eau ou dans les eaux interstitielles ne varie pas. Si un changement intervient, le profil de concentration se modifie. Un état hors équilibre va se développer au cours du temps dans les profils de concentration des eaux interstitielles. Si le système n'est pas perturbé pendant un certain temps, un nouvel état d'équilibre reflétant les nouvelles conditions va s'établir (figure 1.13).

En général, les systèmes ne sont pas à l'équilibre dans les environnements aquatiques. La mesure des concentrations à proximité de l'interface eau-sédiment dans les eaux interstitielles

va évoluer selon la période de mesure. En profondeur, la concentration restera *a priori* constante en fonction de la période de mesure.

La figure 1.13 illustre le retour à l'équilibre d'un système après perturbation. Au départ, le système est à l'équilibre : la concentration ne varie pas à travers l'interface. Si la concentration dans l'eau sus-jacente augmente brutalement (cas a), la concentration dans les eaux interstitielles va évoluer progressivement et de nouveaux profils de concentration s'établissent au cours du temps jusqu'à retour à l'équilibre du système (cas b, puis c, puis d). Le temps nécessaire pour atteindre le nouvel état d'équilibre et la profondeur de pénétration par diffusion dépendent des conditions environnementales (concentration dans l'eau par exemple).

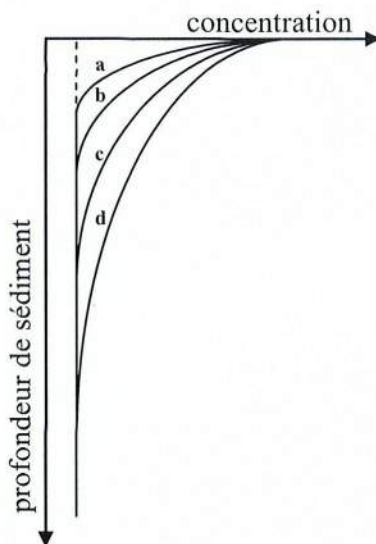


Figure 1. 13 : Exemple d'un système hors équilibre.

L'une des conséquences les plus importantes de la diagenèse précoce est le contrôle exercé sur la composition chimique des eaux naturelles. Si les réactions diagénétiques se déroulent au voisinage de l'interface eau-sédiment, il en résulte des gradients de concentrations et, par diffusion (et aussi advection), il apparaît des flux d'espèces dissoutes depuis le sédiment vers l'eau sus-jacente. Ces flux exercent une grande influence sur la composition chimique de l'eau sus-jacente.

#### **Détermination du flux des espèces réactives à travers l'interface eau-sédiment :**

Le flux des espèces dissoutes à l'interface eau-sédiment peut s'obtenir à partir de différentes méthodes (Santschi *et al.*, 1990) :

- Soit par un bilan massique ;
- Soit par la détermination des profils de concentrations dans l'eau ;
- Soit par l'incubation de carottes de sédiments ;
- Soit par la mesure des gradients de concentrations à l'interface eau-sédiment (utilisation des dialyseurs) ;
- Soit par l'utilisation de chambres benthiques.

### **Importance du flux diffusif à l'interface eau-sédiment**

De nombreux auteurs ont déterminé les flux de métaux (Cr, Cu, Co, Pb, Zn, Fe, Mn...) à l'interface eau-sédiment dans différents milieux aquatiques :

- côtier (e.g. Cheevaporn *et al.*, 1995 ; Blasco *et al.*, 2000 ; Man *et al.*, 2004),
- lacustre (e.g. Hamilton-Taylor *et al.*, 1996 ; Holmström *et al.*, 2000 ; Motelica-Heino *et al.*, 2003),
- fluvial (e.g. Petersen *et al.*, 1995 ; van den Berg *et al.*, 1998 ; Audry *et al.*, 2004a),
- océanique (e.g. Fones *et al.*, 2004).

Le flux de métaux issu du gradient de concentration entre les métaux contenus dans les eaux porales et ceux de l'eau sus-jacente peut constituer une source de contamination pour la colonne d'eau sus-jacente. Le transport des métaux vers les sédiments ne contribue pas nécessairement à l'accumulation des métaux dans les sédiments en raison de la dégradation des phases porteuses des métaux au cours des processus diagénétiques (Shaw *et al.*, 1990).

Bien que le flux diagénétique (par voie dissoute) des métaux depuis le sédiment vers l'eau reste inférieur par rapport au flux sédimentaire (dépôt particulaire), il n'est pas négligeable pour autant (Lerman, 1978). Cheevaporn *et al.* (1995) ont montré que le flux diagénétique est variable d'un contaminant métallique et qu'il peut représenter 10 à 91 % du flux sédimentaire de contaminants à la surface des sédiments.

La remobilisation des métaux depuis le sédiment vers la colonne d'eau sus-jacente peut contribuer à un re-dépôt significatif des métaux dans le sédiment. En effet, les métaux une fois remobilisés dans la colonne d'eau vont à nouveau se fixer sur les particules en suspension, par co-précipitation ou adsorption (Petersen *et al.*, 1995). Ainsi, l'enrichissement en métaux dans les horizons superficiels du sédiment par rapport aux teneurs en profondeur ne traduit pas nécessairement l'apport récent en métaux, d'origine seulement anthropique, mais peut aussi témoigner des conséquences d'une remobilisation antérieure des métaux à partir du sédiment, et liées aux réactions diagénétiques (Cheevaporn *et al.*, 1995).

Les flux diagénétiques des contaminants vers la colonne d'eau peuvent contribuer à augmenter les concentrations en métaux dissous dans la colonne d'eau. Audry *et al.* (2004a) ont montré que 30 % du Cu, 20 % du Cd et 10 % du Zn dissous dans l'eau proviennent des sédiments par voie de diffusion moléculaire à travers l'interface eau-sédiment. Excepté pour le Cu, ces métaux ne restent pas à l'état dissous car ils se fixent sur les matières en suspension.

Les flux de remobilisation des métaux à l'interface eau-sédiment liés aux réactions diagénétiques dépendent (Barbanti *et al.*, 1995) :

- des variations saisonnières,
- de la qualité du matériel sédimentaire ;
- des conditions environnementales de dégradation de la matière organique.

La dynamique sédimentaire est également susceptible d'exercer un contrôle sur les processus diagénétiques (Barbanti *et al.*, 1995). Lorsque la vitesse de sédimentation est importante, la dégradation de la matière organique se fait en milieu anaérobie. L'oxydation de la matière organique fait intervenir des oxydants autres que l'oxygène (réduction des sulfates par exemple). Lorsque les sédiments sont soumis à la bioturbation ou la remise en suspension, la matière organique est moins réactive et le rôle des processus diagénétiques dans les sédiments est moindre. En effet, la bioturbation et la remise en suspension favorisent la dégradation de la matière organique en milieu oxydé.

Dans les sédiments, la conservation de la matière organique est liée à une augmentation de la vitesse de sédimentation. En milieu anaérobie, la conservation de la matière organique est

favorisée car les bactéries anaérobies ont une capacité à dégrader la matière organique qui est inférieure à celle des bactéries aérobies.

## ***1.2.2 Dans un sédiment perturbé.***

### **1.2.2.1 Etudes en milieu naturel**

De nombreux paramètres d'origine naturelle ou artificielle sont susceptibles de perturber l'interface eau-sédiment et de contribuer à la remobilisation des contaminants métalliques.

Les courants, les marées (en milieu côtier et estuarien), les vents forts peuvent remettre en suspension périodiquement les sédiments superficiels et provoquer une remobilisation métaux associés aux sédiments (*e.g.* ten Hulscher *et al.*, 1992 ; Calmano *et al.*, 1993). Les débits turbulents associés aux crues saisonnières ou aux orages sont capables d'exposer des sédiments anoxiques à des conditions oxydantes.

L'activité biologique est susceptible de perturber l'interface eau-sédiment et de provoquer la remobilisation des contaminants. Le terme « bioturbation » est un terme générique associé à l'effet combiné de toutes les activités biologiques sur la dynamique des particules et des eaux interstitielles à l'interface eau-sédiment (Santschi *et al.*, 1990). La gamme des mécanismes affectant le mouvement des particules et de l'eau est variable (Santschi *et al.*, 1990). En général, l'activité biologique regroupe :

- la bioturbation qui définit les mouvements aléatoires des solides et des fluides provoqués par l'activité des macro- et micro-organismes fouisseurs (crustacés, larves) ;
- l'irrigation biologique qui peut affecter les sédiments plus profonds et représente le transport d'espèces dissoutes dans des structures sous formes de tubes ou de galeries qui sont creusés par les macro-invertébrés (oligochètes, chironomidés). Des échanges peuvent avoir lieu entre l'eau sus-jacente et les eaux porales. La pénétration de l'oxygène contribue à stimuler l'activité bactérienne et perturber les équilibres chimiques.

Un autre phénomène d'origine biologique susceptible de provoquer la remobilisation des contaminants dans les sédiments superficiels est lié à la production de gaz (méthanisation par exemple) et à la migration des bulles dans le sédiment (*e.g.* Brennwald *et al.*, 2005 ; Klein, 2006 ; Poissant *et al.*, 2007).

Enfin, les activités humaines (navigation et curage) engendrent des perturbations majeures au niveau des sédiments.

Lors d'une remise en suspension des sédiments contaminés, les métaux associés à la fraction géochimique la plus labile et d'origine anthropique (Cd, Pb, Zn, Cu) sont préférentiellement échangés par rapport aux métaux plus réfractaires et d'origine naturelle (Fe, Cr, Ni, Mn, V) (Argès *et al.*, 1997).

La transformation des espèces réactives dans la phase solide, au cours de la diagenèse précoce, implique des changements dans la distribution des éléments entre phase solide et dissoute. Les facteurs qui affectent la remobilisation des éléments sensibles aux variations biogéochimiques se caractérisent par (Förstner, 1995) :

- Un environnement dynamique, où un gradient chimique dans les eaux porales s'établit dans les sédiments riches en matière organique et sulfures.
- La fréquence des variations dans la morphologie d'une rivière, comprenant la remise en suspension des sédiments qui conduit à une oxydation des sulfures inorganiques avec pour conséquence une augmentation de la solubilité des métaux lourds.
- L'intensité de la remobilisation (et parfois de la ré-adsorption) dépend de la stabilité des complexes inorganiques ou organiques. L'importance de la ré-adsorption est principalement contrôlée par la charge particulaire.

La figure 1.14 suggère qu'après dépôt et lors du stockage dans les sédiments réduits, les métaux adsorbés se transforment sous forme de sulfures. Pendant les événements d'érosion, l'oxydation induit une remobilisation d'une fraction des métaux associés aux sédiments, qui peuvent ensuite se ré-adsorber en partie sur les particules. Il est possible qu'à l'issue du cycle irrégulier des processus d'érosion et de dépôt, une remobilisation significative des métaux à partir des sédiments se manifeste.

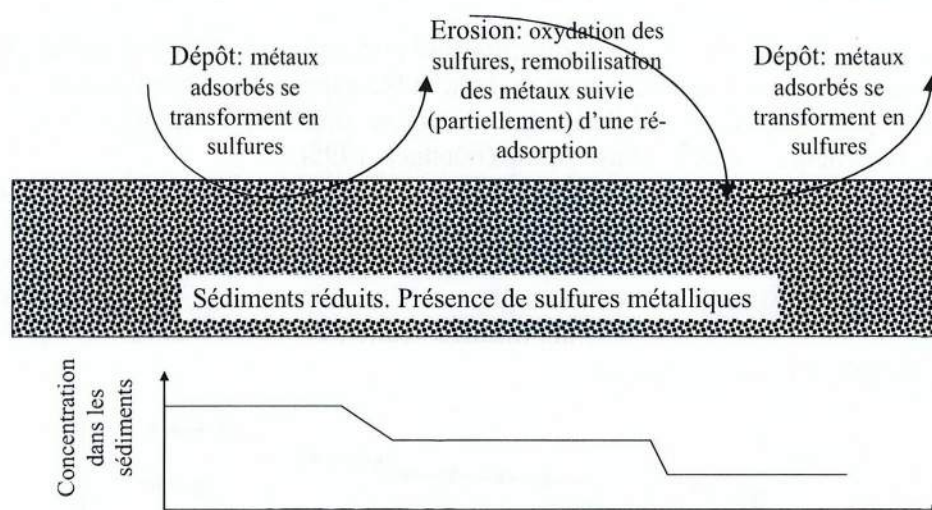


Figure 1. 14 : Diminution de la concentration en métaux dans les sédiments en relation avec les processus de dépôt et d'érosion. Adapté d'après Förstner (1995).

### 1.2.2.2 Etudes au laboratoire

L'étude du transfert des métaux entre phases solide et liquide a largement été menée dans le cadre d'expérimentations au laboratoire où les conditions contrôlées permettent de faire varier les paramètres physico-chimiques affectant la remobilisation des métaux, d'identifier les mécanismes en jeu, de quantifier les cinétiques de réaction, et de les extrapoler éventuellement aux observations de terrain (Munk et Faure, 2004). Les expériences sont parfois réalisées dans des conditions proches de celles rencontrées dans le milieu naturel (Petersen *et al.*, 1997) ; elles sont généralement réalisées sur des échantillons de sédiments contaminés en métaux prélevés sur le terrain et conservés en milieu réducteur puis mis en agitation avec de l'eau (oxydée). On peut citer les dispositifs expérimentaux récurrents dans la littérature : le réacteur type « batch » dans lequel les sédiments contaminés sont soumis à une agitation dans l'eau (*e.g.* Caetano *et al.*, 2003 ; Lors *et al.*, 2004 ; Gabelle, 2006 ; Vdovic *et al.*, 2006 ; Atkinson *et al.*, 2007), et le PES (Particle Entrainment Simulator) dans lequel la



remise en suspension des sédiments contaminés est contrôlée (Calvo *et al.*, 1991 ; De Pinto *et al.*, 1994 ; Alkhatib et Castor, 2000 ; Cantwell *et al.*, 2002 ; Cantwell et Burgess, 2004 ; Feng *et al.*, 2007 ; Yang *et al.*, 2007).

### 1.2.2.3 Revue des principaux mécanismes

Eggleton et Thomas (2004) dressent une revue des conséquences dues aux perturbations à la surface des sédiments sur le devenir des contaminants métalliques.

La perturbation des sédiments induit une variation des propriétés physico-chimiques du milieu. Les études antérieures montrent que l'introduction d'oxygène dissous provoque une variation positive du potentiel redox Eh. L'oxydation des sédiments anoxiques provoque l'augmentation de l'activité microbienne et la diminution du pH dans le sédiment (principalement due à l'oxydation des sulfures) (Petersen *et al.*, 1997 ; Simpson *et al.*, 1998). L'étendue spatiale où la diminution de pH est observée dépend de la concentration en sulfures dans le sédiment et de la proportion oxydée (Delaune et Smith, 1985 dans Eggleton et Thomas, 2004).

Une modification des propriétés chimiques des associations contaminant-phase sédimentaire engendre une remobilisation et le transfert des métaux, issus principalement de la déstabilisation des complexes métalliques soufrés (FeS et MnS) (Calmano *et al.*, 1993).

La remise en suspension des sédiments peut provoquer une diminution significative du pH en raison de la production de proton et de la faible capacité de neutralisation du système. Les métaux peuvent être remobilisés dans la phase dissoute, mais aussi ré-adsorbés ou précipités partiellement avec la phase solide (Förstner, 1995).

La figure 1.15 illustre le résultat expérimental d'une simulation de remise en suspension au cours de laquelle le Zn est remobilisé.

L'exemple montre que la remobilisation initiale du Zn décroît de manière continue en raison des processus de ré-adsorption. Les rectangles noirs correspondent à la remobilisation nette ; les ronds noirs correspondent à la remobilisation totale ; les ronds blancs correspondent à la capture (adsorption/co-précipitation).

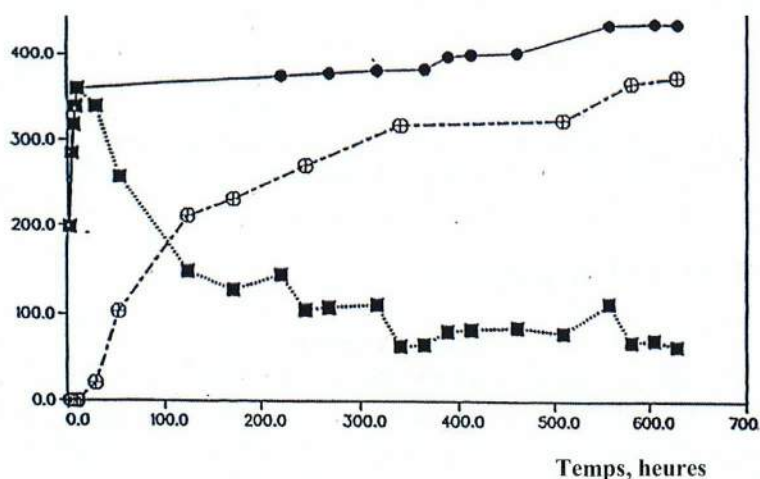


Figure 1. 15 : Remobilisation du Zn des sédiments de l'Elbe. Adapté d'après Calmano *et al.* (1993).

Sur la base de plusieurs expériences et de la compilation des résultats d'études antérieures, un modèle a été développé pour décrire le comportement des éléments métalliques associés aux sédiments anoxiques dans les systèmes soumis à oxydation ; ce modèle comporte quatre étapes (Förstner, 1995) :

- Phase de libération des métaux : cette phase inclut l'oxydation des sulfures amorphes et de la pyrite et la décomposition de la matière organique. Au début, l'oxydation des sulfures amorphes est le processus chimique dominant, les métaux associés aux AVS (Acid Volatile Sulfide) seront remobilisés.

- Phase de transition entre remobilisation et capture par les particules : les sulfures amorphes sont épuisés, tandis que la dégradation de la pyrite et de la matière organique se poursuit. La ré-adsorption devient plus importante. Les phosphates issus de la décomposition de la matière organique s'accumulent et précipitent les métaux.

- Phase de capture : les processus comprenant l'oxydation de la pyrite, la décomposition de la matière organique, la remobilisation des métaux provenant des composés solides organiques et inorganiques déclinent. Les oxy-hydroxydes de Fe-Mn se forment et la capture des métaux traces devient le processus dominant.

- Phase d'équilibre pendant laquelle les processus de remobilisation et de capture sont à l'équilibre cinétique, c'est-à-dire que le flux de remobilisation et le flux de capture sont égaux. La concentration en métaux dissous reste constante. La formation de nouvelles espèces métalliques solides et leur redistribution se poursuit durant cette phase de « diagenèse précoce ».

Le temps correspondant à la concentration maximale de métaux libérés en solution est caractéristique d'un métal donné. Si la durée d'oxydation est plus faible que cette valeur, alors le processus dominant est la capture ou l'établissement d'un équilibre relatif ; à l'inverse, si la durée d'oxydation est supérieure à cette valeur, alors les métaux sont remobilisés.

Lors d'une remise en suspension des sédiments réduits, la variation de la cinétique de désorption des métaux initialement fixés aux sulfures dépend du métal considéré : par exemple le Hg, le Pb, et le Cu sont remobilisés plus rapidement que le Zn (Caille *et al.*, 2003). Les métaux co-précipités, ou adsorbés à la surface des sulfures de Fe et Mn sont rapidement oxydés (dans les premières minutes) après la remise en suspension, en raison de leur solubilité relative en milieu oxydé (Simpson *et al.*, 1993 ; Caetano *et al.*, 2003). Les sulfures métalliques plus stables (comme les sulfures de Cu et la pyrite) ne sont pas susceptibles de s'oxyder sur des échelles de temps courtes, car ils présentent des cinétiques d'oxydation lentes (Caetano *et al.*, 2003).

Le Fe et le Mn remobilisés re-précipitent rapidement et se déposent sous forme d'oxy-hydroxydes insolubles à la surface desquels les métaux remobilisés peuvent se ré-adsorber avec des cinétiques et une importance variables (Saulnier et Mucci, 2000 ; Caetano *et al.*, 2003).

La remobilisation des métaux est un phénomène à phases multiples avec une palette de processus se déroulant au début de la remise en suspension (dans les premières heures) et d'autres processus gouvernant la remobilisation à long terme (sur plusieurs semaines). Les processus cycliques se manifestant de manière continue ou périodique vont conduire à des fluctuations dans les concentrations en contaminants (*e.g.* Eggleton et Thomas, 2004).

Certains métaux divalents (Ni, Zn, Cd, Pb, Cu et Hg) sont également susceptibles de remplacer les monosulfures de Fe et Mn dans la couche anoxique de sédiment, en formant des précipités sulfurés bien plus insolubles. Dans ce cas, les métaux peuvent ne pas être désorbés lors d'une remise en suspension (Di Toro *et al.*, 1990).

Notons que la remobilisation des métaux dans les sédiments partiellement oxydés est négligeable car les potentiels pH et Eh varient peu (Reibhle *et al.*, 2000b).

### La force ionique

Plus la force ionique est élevée, moins le nombre de réaction de complexation de surface intervenant entre les espèces métalliques en solution et les groupes fonctionnels à la surface des particules est important.

### Le potentiel d'oxydoréduction (Eh)

La variation du potentiel redox au sein des sédiments est l'un des principaux facteurs affectant la mobilité des polluants, car elle provoque un changement dans la nature des liaisons entre les métaux et les sédiments (e.g. Zoumis *et al.*, 2001). Quand une fraction significative des métaux passe d'une forme dans laquelle ils sont fortement fixés à une autre où la nature de la liaison est plus faible, la mobilité des métaux est potentiellement plus élevée.

### Rôle du potentiel hydrogène (pH)

Le pH est un des principaux facteurs physico-chimiques et joue un rôle fondamental sur la répartition des éléments métalliques entre les sédiments et les eaux porales (Calmano *et al.*, 1993).

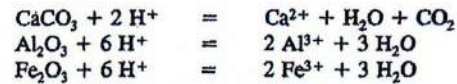
En général, le pH des eaux porales est inférieur à celui de l'eau sus-jacente (Simpson *et al.*, 2002), car :

- quand la matière organique se décompose, il y a production de protons ;
- le gaz carbonique dissous joue le rôle de tampon dans l'eau interstitielle ;
- les fluctuations des concentrations en dioxygène dissous dans les sédiments superficiels influencent les réactions d'oxydation des sulfures en sulfates et du Fe(II) en Fe(OH)<sub>3</sub>.

Le tableau 1.6 rend compte des réactions responsables de la production de protons dans les systèmes aquatiques, et le tableau 1.7 illustre les principales réactions qui ont pour fonction de tamponner le milieu au sein du sédiment.

Elements	Reactions
inorganic	
S	$H_2S + 2 O_2 = SO_4^{2-} + 2 H^+$
S	$S^0 + 3/2 O_2 + H_2O = SO_4^{2-} + 2 H^+$
S, Fe	$FeS + 9/4 O_2 + 3/2 H_2O = FeOOH + SO_4^{2-} + 2 H^+$
S, Fe	$FeS_2 + 15/4 O_2 + 5/2 H_2O = FeOOH + 2 SO_4^{2-} + 4 H^+$
Fe	$Fe^{2+} + 1/4 O_2 + 5/2 H_2O = Fe(OH)_3 + 2 H^+$
N	$NH_4^+ + 2 O_2 = NO_3^- + H_2O + 2 H^+$
N	$NO_x + 1/4(5-2x)O_2 + 1/2 H_2O = NO_3^- + H^+$

Tableau 1.6 : Principales réactions d'oxydation responsables de la production de protons dans les systèmes aquatiques. D'après Calmano *et al.* (1993).



**Tableau 1. 7 : Principales réactions tampons dans les sédiments. Source : Calmano *et al.* (1993).**

Simpson *et al.* (2002) ont étudié l'oxydation des sédiments lors des expériences de remise en suspension, le pH des eaux porales diminue fortement et cette diminution est attribuée aux réactions d'hydrolyse du Fe(III) :  $\text{Fe}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{Fe}(\text{OH})_3 + 3\text{H}^+$ . Lorsque la diminution du pH est plus importante, les réactions responsables de la production de protons sont l'oxydation des sulfures de fer (FeS) et l'oxydation des monosulfures ( $\text{HS}^-$ ).

Calmano *et al.* (1993) ont réalisé des simulations de remise en suspension de sédiments réduits en milieu oxydé et ont observé une diminution du pH dans le sédiment en suspension. La variation de pH est liée la faible capacité de neutralisation des acides. Cette notion dépend de l'échelle à laquelle les métaux se dissolvent.

Dans l'eau, la remise en suspension de sédiments réduits s'accompagne d'une diminution du pH lié à l'oxydation des sulfures amorphes (AVS) et de la pyrite ( $\text{FeS}_2$ ) (*e.g.* Shipley *et al.*, 2004).

Dans le milieu aquatique naturel, lorsque le sédiment est remis en suspension, l'eau joue le rôle de tampon et les variations de pH sont limitées.

### Nature des phases porteuses des métaux

Calmano *et al.* (1993) ont montré que la nature des liaisons métalliques varie de manière significative lors d'événements de remise en suspension sur de longues périodes de temps. La capacité pour un métal à être remobilisé dépend de la nature de la phase porteuse à laquelle il est associé dans le sédiment (Simpson *et al.*, 2000 ; Shipley *et al.*, 2004 ; Chen et Li, 2004) et du métal (*e.g.* Tack *et al.*, 1995).

Lors d'expériences d'oxydation des sédiments réduits, la proportion de métaux (*e.g.* Zn, Cd, Cu et Pb) associés aux sulfures et à la fraction organique diminue au profit des fractions carbonatées et échangeables moins stables (Calmano *et al.*, 1993 ; Zoumis *et al.*, 2001). Tack *et al.* (1995) ont montré que les phases contrôlant la mobilité du Zn, Cd, Cu et Pb sont les sulfures dans un premier temps. Ensuite, quand le sédiment est de plus en plus oxydé, ce sont les oxydes de Fe-Mn et la matière organique qui régissent la rétention des métaux.

Les concentrations en métaux dissous sont le reflet de la réactivité des phases porteuses et des différentes réactions dont les cinétiques sont en compétition ; il y a compétition cinétique entre les processus de remobilisation et de capture (la capture étant le processus responsable de la diminution de la concentration en espèces dissoutes). Les espèces chimiques remobilisées sont aussitôt capturées par les oxy-hydroxydes de Fe et/ou Mn nouvellement précipités (Spagnoli et Bergamini, 1997 ; Saulnier et Mucci, 2000 ; Caetano *et al.*, 2003). Les vitesses de formation de ces phases porteuses et les vitesses de capture des métaux en solution sont le reflet des différences entre les cinétiques d'oxydation. Néanmoins une fraction importante des métaux remobilisés peut rester en solution (Caille *et al.*, 2003 ; Caetano *et al.*, 2003).

Zoumis *et al.* (2001) ont montré que, dans les profils verticaux des eaux porales, lorsque les sulfures métalliques sont oxydés et que la concentration en carbone organique diminue, il y a amplification de la remobilisation des contaminants initialement sorbés et complexés.

Chen et Li (2004) ont étudié l'influence de la concentration en sulfures sur la remobilisation des métaux associés aux sédiments et ont montré qu'il existe une bonne

corrélation entre la concentration en sulfures, la production de sulfates et la solubilisation des métaux.

Tsai *et al.* (2003) ont étudié l'influence du rapport  $\frac{[sulfures]}{[sédiment]}$  sur la remobilisation des métaux à partir d'expériences sur un sédiment contaminé. Ils montrent que le pH diminue d'autant plus vite que le rapport est élevé, et que la concentration en sulfates augmente d'autant plus vite que le rapport est grand. La remobilisation observée en métaux (Pb et Cr) est d'autant plus intense que le rapport est grand. Les auteurs mettent également en avant l'influence du rapport sur la nature des liaisons entre les métaux et les sédiments.

### Bactéries

L'influence des bactéries sur la remobilisation des métaux dans les sédiments a été mise en évidence à partir d'expériences de biolixiviation (« bioleaching »). Les micro-organismes les plus utilisées pour favoriser la remobilisation des métaux sont les espèces de *Thiobacillus* autotrophes (e.g. Chen et Lin, 2004). Les bactéries les plus utilisées sont : *Thiobacillus ferrooxidans* et *Thiobacillus thiooxidans*.

Lors *et al.* (2004) ont étudié l'influence des bactéries indigènes sur la remobilisation des métaux dans un sédiment prélevé aux abords dans la Scarpe Inférieure (Nord-Pas-de-Calais). Ils ont réalisé des expériences de biolixiviation et montré que la présence d'*Acidithiobacillus thiooxidans* augmente la cinétique d'oxydation des sulfures métalliques (identifiée comme source primaire de remobilisation des métaux).

## 1.3 Rôle de la dynamique sédimentaire. Utilisation des traceurs environnementaux.

Les particules constituent le principal vecteur de transport des contaminants métalliques dans les systèmes aquatiques. Le devenir des contaminants métalliques est intimement lié à celui des particules. La figure 1.16 illustre de manière schématique les principaux processus de transport des particules dans un système aquatique. Le transport des particules est dominé par les processus de sédimentation, de remise en suspension, d'érosion et de transport latéral.

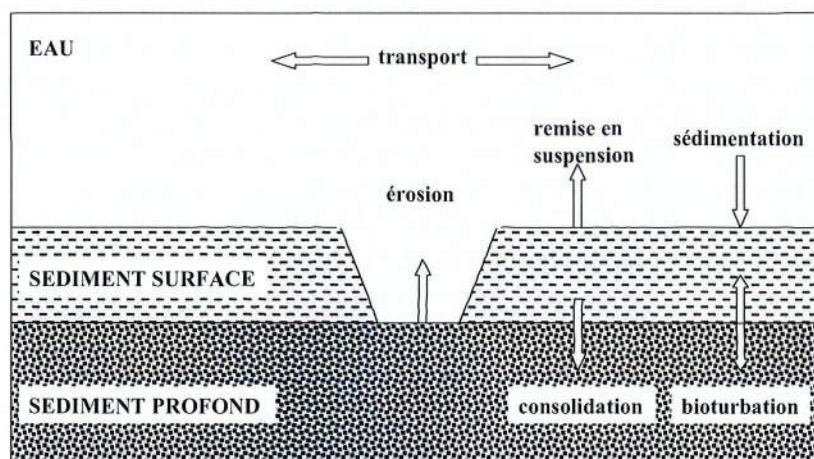


Figure 1. 16 : Représentation schématique des principaux processus de transport des particules. Adapté d'après Lijklema *et al.* (1994).

### 1.3.1 Les processus sédimentaires

Le transport, l'érosion et la sédimentation des particules sédimentaires dans un système aquatique sont fonction du débit de l'eau et de la taille des particules. La figure 1.17 illustre l'influence de la granulométrie des particules sédimentaires sur leur transport et leur vitesse de sédimentation ; le diagramme de Hjulström montre la vitesse minimale d'un courant nécessaire pour mobiliser, transporter et déposer des grains de quartz de granulométrie variable. Dans la partie supérieure du graphique (érosion des particules), la vitesse du courant nécessaire pour mobiliser les grains augmente avec leur granulométrie. En revanche, pour les particules fines, la courbe montre une augmentation de la vitesse du courant avec la diminution de la granulométrie. Ce comportement paradoxal est une conséquence de la cohésion élevée des particules fines (liaisons électrostatiques). Enfin, la partie inférieure du graphique illustre la relation entre la granulométrie et la vitesse du courant lors du dépôt.

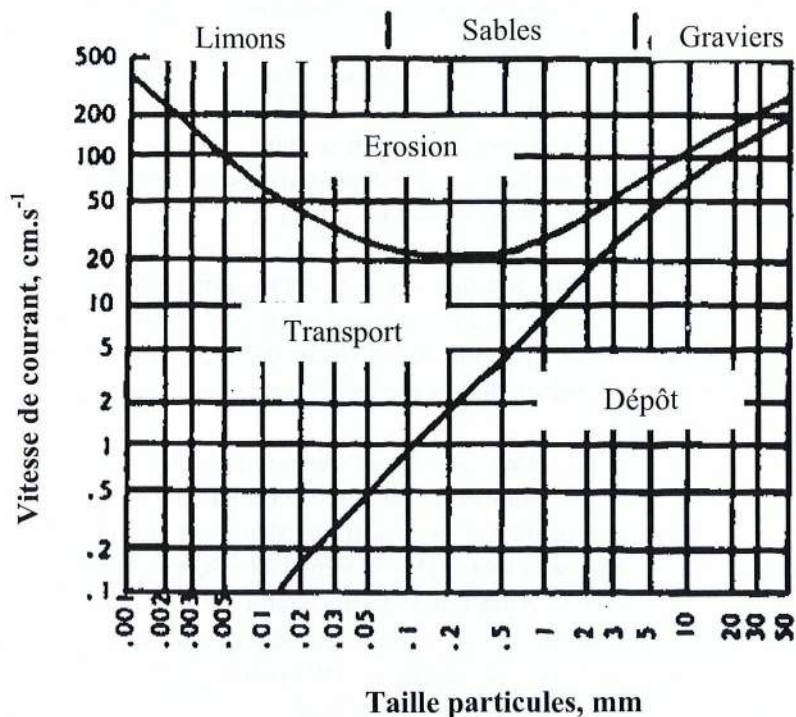


Figure 1. 17 : Diagramme empirique de Hjulström.

Il faut distinguer deux types de transport des sédiments dans un cours d'eau :

- Le transport à la surface immédiate du fond (transport par charriage) : le transport des sédiments est horizontal et s'effectue immédiatement au-dessus du lit. Ce sont les collisions successives des particules entre elles qui sont à l'origine du mouvement du sédiment ;
- Le transport des sédiments en suspension : en ce cas, c'est l'écoulement qui favorise le détachement et le transport des sédiments.

#### 1.3.1.1. La sédimentation

La sédimentation correspond à l'ensemble des processus qui gouvernent la formation et le dépôt des sédiments. La sédimentation peut se définir comme l'ensemble de deux processus : le dépôt, la remise en suspension. L'accumulation définitive correspond alors à la différence nette entre le dépôt et la remise en suspension (Giffin et Corbett, 2003). Cette

définition évoque la différence des échelles de temps auxquelles se produisent les processus sédimentaires.

Le dépôt des particules à la surface du sédiment est un processus continu. Le phénomène de dépôt est sensible aux variations saisonnières, biologiques (« bloom phytoplanctonique » au printemps par exemple), à l'hydrodynamisme et aux événements hydrologiques.

Les vitesses de dépôt sédimentaire varient entre quelques millimètres tous les 1 000 ans dans les océans et quelques centimètres par an dans les lacs et réservoirs.

La taille des particules est un critère plus important vis à vis de la sédimentation par rapport à la densité (Droppo *et al.*, 2000). Les particules restent en transit dans la colonne d'eau d'autant plus longtemps que la taille des particules est petite : les particules grossières vont sédimenter plus rapidement que les particules argileuses plus fines qui vont présenter des distances de transport plus longues (Noji *et al.*, 2002).

A la mort du « bloom phytoplanctonique » qui coïncide avec la fin de l'été, les petites particules vont être captées par des agrégats qui vont s'affaisser dans la colonne d'eau. De telles captures ont lieu lors d'épisodes d'intense sédimentation et contribuent au transport vers le fond des particules.

Lors d'événement de crue (naturelle ou artificielle), les particules qui vont se déposer en premier dans le temps correspondent aux graviers et aux sables grossiers, tandis que les particules plus fines vont transiter plus longtemps dans l'eau avant de se déposer. Les particules sont triées par le courant et se déposent successivement par granulométrie décroissante (*e.g.* Westrich, 1986 ; Pomerol *et al.*, 2000).

Tant que les particules sont soumises au transport convectif et au mélange turbulent dans la colonne d'eau, il n'y a pas d'accumulation des particules vers le sédiment. Des processus advectifs peuvent être à l'origine du transport des particules horizontalement sur de longues distances (plusieurs centaines de kilomètres en milieu océanique) avant de sédimenter (Noji *et al.*, 2002).

Dans les rivières non régulées, la vitesse de courant et le mélange turbulent sont généralement suffisamment élevés pour prévenir toute sédimentation. Sous ces conditions, les sédiments transportés par le courant de la rivière se déposent uniquement par dispersion latérale dans les eaux adjacentes plus lentes (Westrich, 1986, Kern et Westrich, 1997).

Dans la plupart des milieux aquatiques dont le débit est régulé, la vitesse moyenne du courant est suffisante pour assurer le transport des sédiments vers l'aval, sans toutefois empêcher les particules fines de se déposer (Westrich, 1986). Les origines de la sédimentation dans un cours d'eau ou un canal sont liées :

- aux apports par les effluents ou par des rejets ;
- à la configuration et aux caractéristiques du cours d'eau ou du canal (présence de bassins de virements, méandres, courbes et écluses) ;
- à la déstabilisation des berges ;
- à l'érosion hydrique du bassin versant ;
- aux apports directs par la ripisylve de débris végétaux.

### **1.3.1.2. La remise en suspension/l'érosion**

Dans la littérature, la distinction entre remise en suspension et érosion n'est pas nécessairement signifiée. Certains auteurs utilisent le terme « removal » pour déplacement (*e.g.* Canuel *et al.*, 1990 ; Giffin et Reide Corbett, 2003), « resuspension » pour remise en suspension (Fitzgerald *et al.*, 2001 ; Giffin et Reide Corbett, 2003 ; Reide Corbett *et al.*, 2004) et d'autres celui de « in-stream erosion » (*e.g.* Haag *et al.*, 2000) pour érosion des sédiments.

Westricht (1986) indique que la remise en suspension désigne un processus de transport pour lequel l'érosion domine la sédimentation.

De manière théorique, les sédiments sont érodés quand la contrainte de cisaillement de fond excède celle du sédiment (Evans, 1994). La contrainte de cisaillement est fonction des propriétés des matériaux de fond telles que la granulométrie et la teneur en eau.

Le matériel déposé récemment et peu consolidé est plus aisément érodé que le matériel plus compacté (e.g. Evans, 1994). La remise en suspension résulte en une augmentation des cinétiques de transport des particules (Westricht, 1986).

### Origines

La remise en suspension s'effectue sous de nombreuses conditions (Evans, 1994). Les facteurs naturels se distinguent des facteurs artificiels d'origine anthropique.

Dans les milieux aquatiques, la capacité d'un sédiment à se remettre en suspension est dépendante de la situation géographique, de la topographie (relief), de la morphométrie (dimension, forme des particules et du modelé terrestre), des conditions hydrologiques (e.g. vitesses de courant, turbidité). Dans les situations particulières présentant des pentes raides, les courants de turbidité peuvent être induits par des glissements de sédiment (Evans, 1994 ; Saulnier et Mucci, 2000).

Dans les milieux estuariens et côtiers, les phénomènes quotidiens de marée peuvent être à l'origine d'une remise en suspension. Les courants et les vagues génèrent également des contraintes de cisaillement à l'interface eau-sédiment et sont susceptibles de remettre en suspension du sédiment déposé auparavant (Lick, 1994 ; Jones et Lick, 2001 ; Qin *et al.*, 2004).

Les facteurs météorologiques pouvant induire des contraintes de cisaillement suffisamment élevées pour provoquer le départ des sédiments de fond dans les milieux aquatiques sont (Eggleton et Thomas, 2004) :

- le vent, caractérisé par sa vitesse et la direction d'où il provient. Le vent est susceptible de produire des vagues et des courants turbulents de l'eau (Evans, 1994 ; Qin *et al.*, 2004). Dans la plupart des systèmes aquatiques, la remise en suspension/érosion devient un événement important dès lors que la vitesse du vent excède  $15\text{-}20 \text{ km.h}^{-1}$  soit  $> 4 \text{ m.s}^{-1}$  (Evans, 1984 ; Giffin et Corbett, 2003 ; Qin *et al.*, 2004) ;
- les précipitations : les orages violents, les précipitations saisonnières sont à l'origine de crues et donc d'un débit plus important susceptible d'induire des courants turbulents (Ziegler *et al.*, 1994 ; Kozerski, 1994 ; Kern et Westricht, 1997 ; Jones et Lick, 2001 ; Eggleton et Thomas, 2004).

Les phénomènes biologiques participent également à la remise en suspension des sédiments superficiels comme la bioturbation (e.g. Saulnier et Mucci, 2000). La bioturbation correspond à l'ensemble des perturbations, dérangements, remaniements, plus ou moins intenses, d'un sédiment par des organismes fouisseurs.

Enfin, les activités humaines sont à l'origine de la remise en suspension des sédiments par la navigation et l'immersion de boues contaminées dans les estuaires (Argese *et al.*, 1997 ; Saulnier et Mucci, 2000 ; Eggleton et Thomas, 2004), ou encore par le curage/dragage des sédiments de fond (Van den Berg *et al.*, 2001).

### Caractérisation et rôle vis-à-vis des milieux aquatiques contaminés

La remise en suspension peut être mise en évidence à partir de données mesurées *in situ* et a souvent fait l'objet d'expériences à l'aide de dispositifs expérimentaux au laboratoire (Lick, 1994 ; McNeil, 1996 ; Alkhatib et Castor, 2000 ; Jones et Lick, 2001 ; Cantwell et



Burgess, 2004). Bloesh (1994) recense les différentes méthodes utilisées pour quantifier la remise en suspension du sédiment :

- instruments optiques et acoustiques (transmitomètres, néphélomètres, échosondeurs...);
- échantillonnage d'eau instantané et simultané en de multiples points ;
- utilisation de pièges à sédiments ;
- calculs de bilans massiques ;
- modélisation et méthodes statistiques ;
- expériences menées en laboratoire ;
- utilisation de marqueurs des sédiments.

La quantification de la hauteur de sédiments échangés avec la colonne d'eau peut se faire à partir de considérations sur les profils verticaux de densité et de teneur en eau dans des carottes (Qin *et al.*, 2004). Enfin, la quantité de sédiment érodé peut être estimée à partir du couplage de méthodes expérimentales (bathymétrie par exemple) et numériques (Kern et Westrich, 1997).

La remise en suspension/l'érosion des dépôts a fait l'objet de nombreuses études dans une variété de milieux aquatiques : marin et côtier, lacustre, fluvial, industrialisé, urbanisé. Le phénomène de remise en suspension est un phénomène variable dans le temps et dans l'espace (*e.g.* Evans, 1994).

La remise en suspension/l'érosion est susceptible de se produire plus facilement dans les régions d'eau à faible profondeur plutôt que dans les zones plus profondes (*e.g.* Evans, 1994). La période de temps s'écoulant entre deux remises en suspension successives peut varier spatialement. L'importance de la remise en suspension dépend de la période d'investigation : la remise en suspension épisodique peut être différente de celle mesurée sur une échelle saisonnière ou annuelle (Evans, 1994).

Les masses échangées de sédiments à l'interface eau-sédiment sont variables et les variations dépendent des conditions environnementales du secteur étudié.

Qin *et al.* (2004) ont montré que 5 à 10 cm de sédiments superficiels sont impliqués dans les échanges en milieu lacustre.

En milieu fluvial, Kern et Westrich (1997) ont montré que des événements pluvieux et orageux ont provoqué l'érosion de 25 cm de sédiment superficiel en moyenne et que la profondeur maximale d'érosion a atteint 1m.

Fitzgerald *et al.* (2001) ont mis en évidence une alternance saisonnière de dépôt et d'érosion des sédiments contaminés dans une rivière située en zone industrialisée. Lors de la décrue, l'érosion domine et induit un déplacement (« removal ») du sédiment affectant 0,5 cm de profondeur.

Santschi *et al.* (1999) ont montré que le déplacement des particules a affecté entre 2 et 7 cm du sédiment superficiel dans la Baie de Lavaca.

Giffin et Corbett (2003) ont étudié la dynamique du sédiment à court terme pendant des événements naturels de remise en suspension dans différents estuaires peu profonds. La remise en suspension a localement et ponctuellement provoqué le déplacement de 2,2 cm.

Certains auteurs ont souligné l'importance de la remise en suspension des sédiments par rapport à la charge particulaire dans la colonne d'eau (*e.g.* Feng *et al.*, 1999 ; Bonté *et al.*, 2000).

La stabilité d'un sédiment face à des processus d'érosion est plus grande pour les sédiments âgés et consolidés par rapport aux sédiments plus récents sus-jacents (Lick, 1994, Haag *et al.*, 2001). La cohésion des particules et la compaction qui en résulte induit un flux de remise en suspension/érosion variable en fonction de la profondeur et du temps écoulé depuis le dépôt. Le flux d'érosion est plus élevé en surface et diminue en profondeur de plusieurs ordres de grandeurs (Jones et Lick, 2001). Ce comportement est caractéristique des sédiments

cohésifs à granulométrie fine et s'oppose au comportement érosif des sédiments non cohésifs à granulométrie plus grossière pour lesquels les flux d'érosion tendent vers une valeur constante avec la profondeur (Jones et Lick, 2001).

D'après les expériences menées en laboratoire et sur le terrain, il apparaît que le flux d'érosion d'un sédiment dépend de plusieurs facteurs (Lick, 1994 ; Jones et Lick, 2001) :

- la densité globale du sédiment ;
- la taille des particules (moyenne et distribution) ;
- la composition minéralogique ;
- le volume de gaz contenu dans le sédiment ;
- la teneur en matière organique ;
- le temps qui s'est écoulé après le dépôt ;

Il a été montré que la présence de macrophytes est susceptible de consolider le sédiment et de diminuer le flux d'érosion par conséquent.

Enfin, le flux d'érosion d'un sédiment présente une variabilité spatiale.

La remise en suspension/l'érosion des sédiments peut avoir des conséquences sur les écosystèmes aquatiques. En particulier, lorsque le compartiment sédimentaire est pollué, l'érosion des sédiments contribue à dégrader la qualité de l'eau dans le milieu aquatique. Les sédiments constituent alors une source de contamination pour la colonne d'eau.

La remise en suspension/l'érosion des sédiments pollués peut s'accompagner :

- d'un flux particulaire de contaminants associés aux particules sédimentaires : polluants organiques (Fitzgerald *et al.*, 2001) et inorganiques (Haag *et al.*, 2000) ;
- d'un flux dissous de contaminants par dilution des eaux porales chargées dans l'eau sus-jacente : métaux dissous (Krein et Symader, 2000) et nutriments (Giffin et Corbett, 2003) contenus dans les eaux porales ;
- d'une remobilisation des contaminants associés aux sédiments : l'eau oxygénée va généralement augmenter la biodisponibilité des contaminants (*e.g.* Calmano *et al.*, 1993 ; Simpson *et al.*, 1998).

## ***1.3.2 Les traceurs radioactifs environnementaux***

### **1.3.2.1. Différentes origines**

En général, une distinction est faite entre les radionucléides présents naturellement sur Terre et les radionucléides artificiels (produits par les activités civiles et militaires).

La figure 1.18 présente les principaux modes de transfert des radionucléides d'origine naturelle et artificielle dans un système aquatique (rivière).

#### **Radionucléides naturels primaires**

La Terre contient une vingtaine de radionucléides primaires, c'est-à-dire qu'ils sont présents depuis la formation de la Terre ( $T_{1/2} > 10^8$  ans). La plupart se désintègrent directement en un élément stable ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ). Trois d'entre eux, le thorium-232 ( $^{232}\text{Th}$ ) et les isotopes de l'uranium ( $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ ) génèrent par décroissance radioactive ( $\alpha$ ,  $\beta^-$ ) successives une dizaine de radionucléides pour aboutir à un isotope stable de plomb. Ils forment les trois grandes familles radioactives naturelles constituées par un élément générateur et ses produits de filiation. La figure 1.19 représente de manière schématique les trois grandes familles radioactives. Une famille radioactive est constituée d'un parent générateur et de ses produits de filiation.

L'uranium et le thorium sont présents dans toutes les roches de l'écorce terrestre, le plus souvent à l'état de trace. A l'échelle du globe en moyenne, le thorium est trois à quatre fois plus abondant que l'uranium ( $0,01-0,02 \text{ mg.kg}^{-1}$  d'U avec  $\frac{Th}{U} = 3,5-3,8$  dans les chondrites carbonées). La teneur en radioéléments dans les roches terrestres dépend de leurs conditions de formation. A titre d'exemple, les granites sont particulièrement riches en Th ( $8-33 \text{ mg.kg}^{-1}$ ) et U ( $2,2-6,1 \text{ mg.kg}^{-1}$ ), par rapport aux roches sédimentaires. Le rapport isotopique  $\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}$  vaut 0,72 %, soit un rapport d'activité 0,046.

Chaque famille radioactive conduit à la formation d'un isotope de radon (Rn), seul produit de filiation à l'état gazeux dans les conditions environnementales. Le radon est un radionucléide à vie courte qui donne naissance, par émanation, à un dépôt actif constitué de radionucléides à vie très courte dont la plupart sont émetteurs  $\alpha$ . L'émanation est le processus physique correspondant à la production de Rn au sein des roches crustales suivie de l'exhalaison du Rn depuis les roches vers l'atmosphère. Les faibles teneurs en  $^{235}\text{U}$  dans la croûte terrestre induisent une production de  $^{219}\text{Rn}$  restreinte. La courte période radioactive du  $^{219}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 3,96 \text{ s}$ ) limite la distance parcourue avant sa désintégration. Le  $^{219}\text{Rn}$  est par conséquent, pratiquement absent de notre environnement. Même s'il est produit en grande quantité, la désintégration rapide du  $^{220}\text{Rn}$  ( $T_{1/2} = 55,6 \text{ s}$ ) induit le plus souvent des activités volumiques faibles en cet isotope dans l'atmosphère. En revanche, des quantités significatives de  $^{222}\text{Rn}$  peuvent migrer jusqu'à l'air libre ( $T_{1/2} = 3,82 \text{ jours}$ ). Les activités en radon  $^{222}\text{Rn}$  sont généralement comprises entre  $10^4$  et  $4.10^5 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour les terrains granitiques dans le Massif Central ou le Massif Armoricain alors qu'elles ne dépassent pas  $5.10^4 \text{ Bq.m}^{-3}$  dans les régions sédimentaires.

La source principale du radon est le sol (production de  $9.10^9 \text{ Bq.an}^{-1}$ ). Le  $^{222}\text{Rn}$  est l'isotope le plus abondant dans l'atmosphère et produit par décroissance radioactive du  $^{210}\text{Pb}$  qui est très réactif vis-à-vis des particules. Le  $^{210}\text{Pb}$  est le premier descendant à vie « longue » dans la chaîne de décroissance de l' $^{238}\text{U}$ . Le  $^{210}\text{Pb}$  se fixe aussitôt sur les aérosols avant d'être lessivé lors des précipitations (Krishnaswami *et al.*, 1980).

Le radon est relativement soluble dans l'eau ( $0,5 \text{ g.L}^{-1}$ ). Dans les environnements aquatiques, le  $^{222}\text{Rn}$  se trouve souvent en excès par rapport à son père le radium  $^{226}\text{Ra}$  (Lowri *et al.*, 1987).

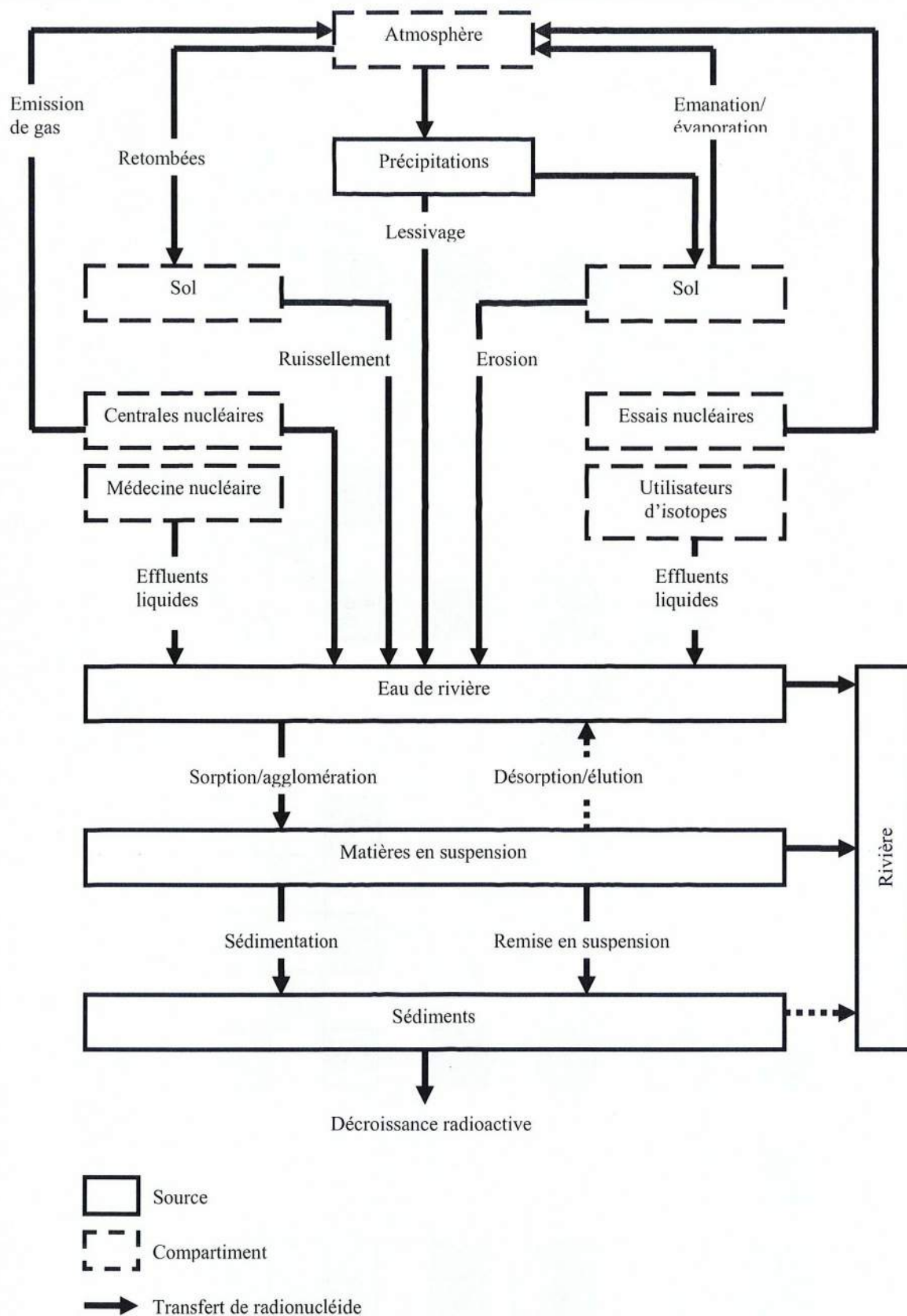


Figure 1. 18 : Modes de transfert des radionucléides d'origine naturelle et artificielle dans une rivière. Adapté d'après Mundschenk (1995).

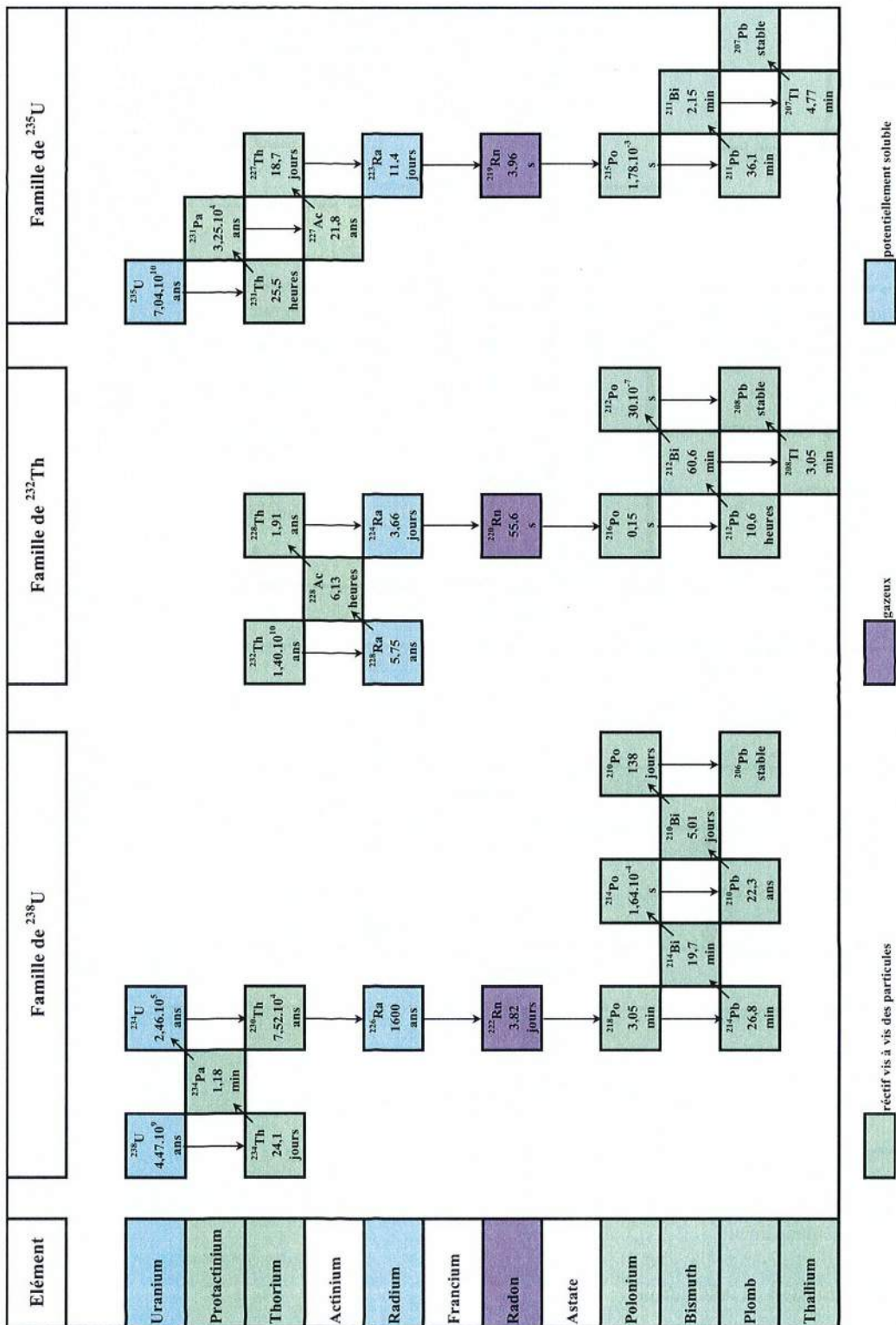


Figure 1. 19 : Les trois grandes familles radioactives :  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{235}\text{U}$ . Les différentes couleurs sont attribuées aux propriétés des isotopes dans les conditions environnementales (oxydées).

### Radionucléides naturels induits

Le rayonnement cosmique primaire interagit avec les noyaux présents dans la partie supérieure de l'atmosphère (au-dessus de 15 km) et produit ainsi des noyaux radioactifs et des particules secondaires qui, à leur tour, peuvent générer des radionucléides par leurs interactions. Une douzaine de radionucléides ( $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  par exemple) sont produits par interaction entre les rayons cosmiques (flux de protons de forte énergie, jusqu'à 1017 eV) et l'azote  $^{14}\text{N}$ , l'oxygène  $^{16}\text{O}$  ou l'argon  $^{40}\text{Ar}$  dans la stratosphère.

Le béryllium-7 ( $^7\text{Be}$ ) est produit par spallation nucléaire (éclatement en plusieurs particules du noyau d'un atome sous l'effet d'un bombardement) dans la stratosphère. Il a une période de 53 jours et se désintègre en  $^7\text{Li}$ . Il est introduit dans les environnements superficiels terrestres qu'après passage dans la troposphère (transfert à travers la tropopause) où il se fixe aux aérosols qui sont ensuite lessivés par les eaux météoriques et dans une moindre mesure par retombées sèches. Les retombées de  $^7\text{Be}$  ne sont pas constantes au cours de l'année et atteignent un maximum au printemps, c'est-à-dire quand le passage à travers la tropopause est le plus favorable.

### Radionucléides artificiels

Les radionucléides artificiels sont produits par réaction nucléaire. Les radionucléides artificiels sont produits lors des explosions de bombes nucléaires (bombes A et H) et sont également générés dans l'industrie nucléaire pour la production d'énergie.

Le césium  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30$  ans) est issu des retombées atmosphériques des essais nucléaires militaires aériens (Etats-Unis et Union Soviétique principalement, Royaume-Uni, France et Chine). Il est introduit dans les environnements superficiels après lessivage des aérosols par les précipitations (ou encore par retombées sèches). Il est présent dans les sols depuis les années soixante. Depuis, en Europe, le seul apport notable vient de l'accident de Tchernobyl (avril 1986) : entre 20 et 50 % du stock total encore présent, le reste étant dû aux bombes nucléaires (Bonté *et al.*, 1998).

La figure 1.20 présente les activités en  $^{137}\text{Cs}$  mesurées dans les sols en Europe en 1986.

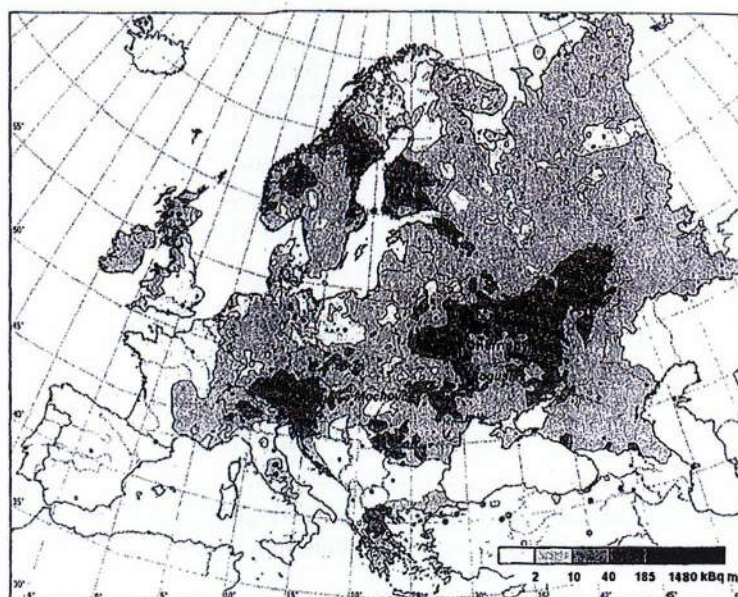


Figure 1. 20 : Activités du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols en Europe en Mai 1986. D'après Van der Perk *et al.* (2000).

### 1.3.2.2. Détermination des activités dans les matrices naturelles

On distingue deux méthodes d'analyse quantitative selon que les radionucléides contenus dans les échantillons naturels sont émetteurs  $\alpha$  ou  $\gamma$  : la spectrométrie alpha (chambres à grilles, semi-conducteurs) et la spectrométrie gamma (semi-conducteurs de germanium hyper pur). Afin de déterminer les activités (ou concentrations) en radionucléides émetteurs  $\alpha$ , les échantillons naturels doivent faire l'objet au préalable d'un traitement radiochimique. En effet, le rayonnement  $\alpha$  est peu pénétrant (une simple feuille de papier suffit à arrêter les particules  $\alpha$ ) et il est nécessaire de séparer les éléments émetteurs  $\alpha$  des constituants majeurs du sédiment (Al, Si, Ca, Fe...) qui absorberaient les particules  $\alpha$ . Il faut également séparer les radioéléments émetteurs  $\alpha$  entre eux car ils sont susceptibles d'émettre à des énergies voisines. Les activités des radionucléides sont déterminées en relatif et il est indispensable de quantifier le rendement d'une extraction chimique à l'aide d'un isotope radioactif de l'élément analysé qui va servir d'étalon. L'inconvénient lié à la spectrométrie alpha est qu'elle est destructive vis à vis de l'échantillon. En comptage gamma, le conditionnement des échantillons solides s'affranchit du traitement radiochimique ; il s'agit d'une méthode analytique non destructive. Le rayonnement gamma est suffisamment pénétrant et énergétique (plusieurs centimètres de plomb sont nécessaires pour absorber les photons  $\gamma$ ). Les échantillons naturels solides sont simplement séchés puis broyés afin d'homogénéiser la source d'émission.

### 1.3.2.3. Notion de traçage

Un traceur radioactif désigne toute substance introduite dans un système biologique ou physique qui permet d'étudier son comportement et son évolution. La première condition que doit remplir un traceur est de posséder un comportement conservatif dans une large palette de conditions environnementales, c'est-à-dire qu'il ne doit pas être affecté par des variables extrinsèques. Le tableau 1.8 recense quelques exemples de radionucléides utilisés dans les systèmes aquatiques en tant que traceurs environnementaux.

Mode de production	Traceur pour :				
	Datation des eaux souterraines	Mélange des eaux de surface	Transport des particules	Echanges de gaz	Activité biologique
Décroissance de U/Th		$^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ , $^{228}\text{Ra}$ , $^{224}\text{Ra}$	$^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ , $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ , $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ , $^{210}\text{Pb}/^{222}\text{Rn}$ , $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$	$^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$	
Rayonnement cosmique	$^3\text{H}$ , $^{14}\text{C}$ , $^{39}\text{Ar}$ , $^{85}\text{Kr}$ , $^{32}\text{Si}$	$^3\text{H}/^3\text{He}$ , $^{14}\text{C}$ , $^{39}\text{Ar}$ , $^{85}\text{Kr}$ , $^7\text{Be}$	$^7\text{Be}$	$^{39}\text{Ar}$	
Essais nucléaires	$^3\text{H}$ , $^{14}\text{C}$	$^3\text{H}$ , $^{14}\text{C}$ , $^{90}\text{Sr}$ , $^{137}\text{Cs}$	$^{55}\text{Fe}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{241}\text{Am}$ , $^{239,240}\text{Pu}$	$^3\text{H}/^3\text{He}$ , $^{14}\text{C}$	
Réacteurs et accélérateurs	$^3\text{H}$ , $^{85}\text{Kr}$	$^3\text{H}$ , $^{22}\text{Na}$	$^{54}\text{Mn}$ , $^{59}\text{Fe}$ , $^{60}\text{Co}$ , $^{65}\text{Zn}$ , $^{113}\text{Sn}$ , $^{228}\text{Th}$ , $^{134}\text{Cs}$	$^{85}\text{Kr}$	$^{14}\text{C}$ , $^{32,33}\text{P}$

Tableau 1. 8 : Exemples de radionucléides utilisés en tant que traceurs dans les systèmes aquatiques, pour des processus se déroulant sur quelques jours jusqu'à plusieurs siècles. Adapté d'après Santschi (1986).

Dans un milieu aquatique, les particules sédimentaires en transit constituent le principal vecteur de transport des contaminants métalliques (*e.g.* Westrich, 1986 ; Horowitz,

2000) et le compartiment sédimentaire est souvent considéré comme un lieu de stockage pour ces éléments.

D'une manière générale, les paramètres du milieu n'affectent pas ou peu les activités des radionucléides utilisés en tant que traceurs ; les radionucléides sont donc représentatifs des processus physiques et non des variations géochimiques et environnementales (e.g. Yeager et Santschi, 2003).

Les radionucléides naturels (d'origine lithogénique, atmosphérique, cosmique) et les radionucléides artificiels constituent des outils efficaces dans l'estimation des processus physiques en fonction du temps dont ceux pouvant affecter la distribution des polluants associés aux particules dans différents milieux aquatiques (Santschi *et al.*, 1980 ; Santschi, 1984 ; Hawley *et al.*, 1986 ; Baskaran et Santschi, 1993 ; Feng *et al.*, 1999).

Les radionucléides constituent des traceurs des particules dans les environnements aquatiques dès lors qu'ils présentent une forte affinité vis-à-vis du matériel particulaire, c'est-à-dire que le coefficient de partage est élevé (i.e.  $K_d > 10^4$ ) et que la fixation sur les particules n'est pas réversible.

### 1.3.2.4 Applications

Le devenir d'un contaminant associé aux particules est intimement lié à celui des particules sédimentaires dans un système aquatique. La compréhension des mécanismes et processus affectant les associations contaminant-particule et la dynamique est essentielle à l'étude du devenir de la plupart des contaminants dans un système aquatique (Olsen *et al.*, 1982). Dans l'étude des processus sédimentaires affectant le devenir des particules dans un système aquatique, les traceurs radioactifs environnementaux constituent de formidables outils. Dans la mesure où les traceurs radioactifs et les contaminants sont réactifs vis-à-vis des particules sédimentaires, il est possible de tracer le devenir des contaminants à l'aide des traceurs radioactifs dans les milieux aquatiques (Santschi *et al.*, 1980 ; Hawley *et al.*, 1986 ; Olsen *et al.*, 1989 ; Schuler *et al.*, 1991 ; Baskaran et Santschi, 1993 ; Feng *et al.*, 1999) ou au couplage de la signature radioactive et chimique (en métaux) des particules (Hirschberg *et al.*, 1996 ; Feng *et al.*, 1997 ; Feng *et al.*, 1998). Ils permettent de caractériser des processus sur des échelles de temps et d'espace variables. De plus, le couplage de différentes méthodes radioactives permet une meilleure compréhension des processus se déroulant dans un système aquatique (colonne d'eau, compartiment sédimentaire).

Ci-dessous est présentée une revue non exhaustive des processus sédimentaires qui peuvent être caractérisés à l'aide des traceurs radioactifs environnementaux : sédimentation, remise en suspension/érosion, temps de résidence des particules dans l'eau, mélange dans les sédiments.

#### Sédimentation

Les analyses de laboratoire sur des carottes sédimentaires peuvent mener à la détermination des vitesses de sédimentation et permettent de dater les différentes couches sédimentaires en profondeur.

La distribution des espèces radioactives naturelles ou artificielles dans des carottes fournit une histoire chronologique des sédiments (Krishaswami *et al.*, 1971 ; Robbins et Edgington, 1975 ; Jeter, 2000) mais aussi des contaminants qui leur sont associés (Santschi, 1986 ; Grousset *et al.*, 1999 ; Jeter *et al.*, 2000 ; Audry *et al.*, 2004b). Les données chronologiques sont très utiles pour déterminer si les substances enfouies dans le sédiment migrent ou sont dégradées (Jeter, 2000 ; Garcia-Bravo *et al.*, 2007).

Bien que le devenir ultime des particules sédimentaires est de sédimenter et constituer le lit sédimentaire, les particules sont soumises à des événements de remise en suspension et de re-



dépôt avant de se déposer définitivement. Ces événements épisodiques peuvent être de grande amplitude et de durée variable (Val Klump *et al.*, 2003).

Les traceurs radioactifs environnementaux présents dans les milieux aquatiques se caractérisent par des périodes radioactives et des origines différentes. Ils permettent de quantifier des vitesses de sédimentation sur des échelles de temps variables : le  $^{210}\text{Pb}$  et le  $^{137}\text{Cs}$  fournissent des vitesses de sédimentation sur des échelles de temps pluri-décennal à séculaire, tandis que le  $^7\text{Be}$  et le  $^{234}\text{Th}$  (en excès par rapport à  $^{238}\text{U}$ ) donnent accès à des vitesses de sédimentation mensuelle à pluri-mensuelle (saisonnière).

Le couplage des différents outils radioactifs permet de tracer des processus d'accumulation sédimentaire sur des échelles de temps différentes (Dibb et Rice, 1989 ; Clifton *et al.*, 1995 ; Hirschberg *et al.*, 1996 ; Sommerfield *et al.*, 1999 ; Reide Corbett *et al.*, 2004). L'utilisation de traceurs radioactifs de périodes et d'origines différentes permet en outre de s'affranchir des incertitudes liées au comportement géochimique d'un traceur radioactif (Santschi, 1986).

### **Remise en suspension/érosion**

La remise en suspension/l'érosion des sédiments est un processus sédimentaire se déroulant sur des échelles de temps relativement courtes dont les paramètres clefs sont accessibles grâce aux traceurs radioactifs environnementaux (quantité de sédiment affecté, échelle spatiale, échelle temporelle).

Sont recensés ci-dessous les différents outils radioactifs présentés dans la littérature pour caractériser la remise en suspension/l'érosion des sédiments dans une variété de milieux aquatiques.

En milieu lacustre, Val Klump *et al.* (2003) et Waples *et al.* (2004) ont mis en évidence la remise en suspension des sédiments induite par des événements climatiques majeurs (orages, vents forts) à partir de la mesure du rapport de déséquilibre radioactif  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ .

Cornett *et al.* (1994) ont déterminé la proportion relative de matériel sédimentaire remis en suspension à partir des mesures du  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et du rapport  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  dans le Lac Erie (Etats-Unis).

Moore *et al.* (1995) ont déterminé les flux des isotopes du radium  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  et  $^{224}\text{Ra}$  depuis les sédiments de fond afin d'étudier la remise en suspension du sédiment à travers le plateau continental de l'Amazonie.

Santschi *et al.* (1999) ont déterminé la profondeur de sédiment remis en suspension dans la Baie de Lavaca à partir des mesures de  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , et  $^{239,240}\text{Pu}$  dans des carottes de sédiments.

Giffin et Corbett (2003) ont étudié la dynamique du sédiment à court terme (mensuel) pendant des événements naturels de remise en suspension dans des estuaires peu profonds. Ils ont déterminé les vitesses de sédimentation à partir des profils de  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{234}\text{Th}$  dans des carottes de sédiment. A l'aide de ces trois radionucléides, ils ont mis en évidence les zones d'accumulation et de déplacement (« removal ») sédimentaire.

En milieu continental, Bonniwell *et al.* (1999) ont mesuré les concentrations en  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{137}\text{Cs}$  dans les matières en suspension d'un cours d'eau à l'aval d'une montagne ainsi que dans des carottes de sols. Ils ont mis en évidence la fraction de sédiment en suspension « récent » (fraîchement issu de l'érosion des sols) et ont dressé un schéma du transport des particules fines (distance moyenne parcourue, temps de résidence, flux d'érosion, vitesse de migration des sédiments fins). Leur raisonnement est basé sur la différence des signatures radioactives enregistrées dans les sédiments : le sédiment récent issu de l'érosion des sols se distingue du sédiment issu de la remise en suspension des berges ou du lit de la rivière et plus âgé.

Fitzgerald *et al.* (2001) ont déterminé les flux de dépôt et de remise en suspension sur des échelles de temps mensuelles à partir des mesures de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments superficiels et les matières en suspension d'un cours d'eau. Ils montrent une alternance de périodes d'accumulation sédimentaire et d'érosion liée aux variations saisonnières (crue, décrue).

A l'aide des activités du  $^7\text{Be}$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{131}\text{I}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  mesurées dans le matériel particulaire en suspension dans la Seine, Bonté *et al.* (2000) ont pu estimer la fraction des particules sédimentaires en suspension dans l'eau provenant de la remise en suspension du compartiment sédimentaire. En outre, les auteurs suggèrent l'utilisation du déséquilibre  $^{210}\text{Pb}/^{210}\text{Po}$  qui pourrait fournir un outil supplémentaire dans le marquage des processus sédimentaires à court terme.

### **Temps de résidence des particules dans l'eau**

A l'aide des traceurs radioactifs, il est possible d'accéder au temps de résidence, ou temps de séjour, d'une particule dans la colonne d'eau dans les systèmes aquatiques superficiels (*e.g.* Dominik *et al.*, 1989 ; Baskaran et Santschi, 1993). Typiquement, il s'agit du temps que la particule a mis pour séjourner dans la colonne d'eau avant d'être enfouie dans le compartiment sédimentaire. Dans le cas d'une espèce réactive vis à vis des particules et introduite dans le système aquatique sous forme dissoute, le temps de résidence d'une espèce comprend le temps que l'espèce a mis pour être « capturée » (« scavenged »), c'est-à-dire fixée sur une particule de sédiment en transit dans la colonne d'eau, et le temps que l'espèce une fois fixée à la particule met pour disparaître (« remove ») de la colonne d'eau, c'est-à-dire quand la particule finit par se déposer. Or, le transport et la mobilité des contaminants réactifs vis-à-vis des particules dans un système aquatique sont dépendants des processus d'adsorption. Ainsi, le temps de résidence d'une particule dans l'eau peut avoir des conséquences sur la cinétique d'adsorption des espèces chimiques en solution dans l'eau et sur la mobilité des contaminants dans l'eau.

Le temps de résidence d'une particule dans l'eau peut être déterminé à l'aide du déséquilibre radioactif entre le  $^{234}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=24$  jours) et son père  $^{238}\text{U}$  ( $T_{1/2}=4,47.10^9$  ans). Dans les systèmes aquatiques superficiels, le  $^{234}\text{Th}$  peut ne pas être à l'équilibre radioactif avec son père  $^{238}\text{U}$  car ces deux radionucléides ont des comportements géochimiques et des origines différents. Dans les milieux aquatiques, le  $^{234}\text{Th}$  est continuellement produit *in situ* dans l'eau par la décroissance de son père  $^{238}\text{U}$ . Dans les eaux de surface, l'uranium est présent à l'état dissous, tandis que le thorium est fortement réactif vis-à-vis des particules (*e.g.* Murphy et Shock, 1999). Dans la colonne d'eau, en raison de sa courte période radioactive et de son affinité pour les particules en suspension, le  $^{234}\text{Th}$  est largement utilisé pour estimer les temps de résidence et taux de « capture » (« scavenging rate ») sur des échelles de temps allant de quelques jours à quelques semaines (*e.g.* Schmidt *et al.*, 2002 ; Waples *et al.*, 2006).

De même, la production *in situ* du  $^{234}\text{Th}$  à partir de la décroissance de  $^{238}\text{U}$  dissous permet de quantifier les cinétiques d'adsorption des espèces réactives vis à vis des particules (Moore *et al.*, 1995). En effet, le temps de résidence des éléments traces présents dans les systèmes aquatiques est une fonction inverse de leur affinité pour les particules (*e.g.* Santschi, 1986).

Pendant trois décennies, le déséquilibre  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  a été déterminé dans les systèmes marins/océaniques. Sauf exceptions, ce rapport n'a pas été mesuré dans les eaux continentales car les teneurs en  $^{238}\text{U}$  (et donc  $^{234}\text{Th}$ ) sont extrêmement faibles et se trouvent souvent sous les limites de détection des compteurs (Waples *et al.*, 2004). Les mesures de  $^{234}\text{Th}$  dans les eaux douces sont difficiles et sont inférieures de plus d'un ordre de grandeur par rapport à celles rencontrées dans les milieux marins. Néanmoins, certains auteurs ont proposé une méthodologie pour déterminer les faibles teneurs en  $^{234}\text{Th}$  dans l'eau en spectrométrie bêta (Waples *et al.*, 2003) et gamma (Cazala *et al.*, 2003).

### **Taux de mélange à l'interface eau-sédiment**

L'activité biologique et/ou le mouvement physique à l'interface eau-sédiment peuvent conduire au mélange et au remaniement des sédiments superficiels (quelques cm de profondeur) et donc modifier la distribution des contaminants et affecter la mobilité des contaminants à l'interface eau-sédiment.

Les processus physiques peuvent être générés par des courants de fond qui vont provoquer la formation de « nuages » de particules dans l'eau. D'autres perturbations affectent les sédiments superficiels et correspondent à une modification continue, induite par l'activité biologique, de la couche de surface dans la colonne sédimentaire (bioturbation). Très souvent, il est difficile de distinguer la cause biologique et la cause physique (Yokoyama *et al.*, 1985).

Les flux de mélange ont largement été déterminés en milieu océanique et côtier, où les vitesses de sédimentation sont beaucoup plus lentes. Les radionucléides sont susceptibles de fournir des mesures quantitatives des taux de bioturbation ainsi qu'une estimation de la profondeur maximale où ont lieu les remaniements biologiques. Les radionucléides à vie longue, tels que le  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2}= 5\,730$  ans) et le  $^{230}\text{Th}$  ( $T_{1/2}= 8.10^4$  ans) sont utilisés dans l'estimation des profondeurs de mélange, tandis que les radionucléides à vie plus courte tel que le  $^{234}\text{Th}$  ( $T_{1/2}= 24,1$  jours) (Cochran et Aller, 1979 ; DeMaster *et al.*, 1985 ; Santschi *et al.*, 2001 ; Schmidt *et al.*, 2002 ; Schmidt *et al.*, 2007), le  $^7\text{Be}$  ( $T_{1/2}= 53$  jours) (Schmidt *et al.*, 2007), le  $^{228}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=1,91$  ans) (*e.g.* Legeleux *et al.*, 1994) et le  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2}= 22$  ans) (Benninger *et al.*, 1979) permettent la détermination des taux de mélange. D'autres traceurs ont été utilisés afin d'évaluer les taux de bioturbation, tels que les radionucléides artificiels  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{137}\text{Cs}$  (Yokoyama *et al.*, 1985), produits par l'explosion des bombes nucléaires, ou encore les radionucléides d'origine cosmique comme le  $^7\text{Be}$  (Krishnaswami *et al.*, 1980 ; Santschi *et al.*, 1999).

L'utilisation couplée de plusieurs radionucléides permet en outre une meilleure estimation des taux de mélange/bioturbation dans les sédiments (DeMaster *et al.*, 1985 ; Yokoyama *et al.*, 1985 ; Legeleux *et al.*, 1994 ; Clifton *et al.*, 1995 ; Santschi *et al.*, 2001).

## **1.4 Conclusions**

Dans les milieux aquatiques, les particules sédimentaires constituent le principal vecteur de transport des contaminants métalliques. Le devenir ultime des particules sédimentaires est de s'accumuler à la surface des sédiments. Les sédiments constituent ainsi un réservoir de stockage des contaminants métalliques. Le devenir des contaminants métalliques associés aux sédiments reste une question d'actualité scientifique :

- Les sédiments se comportent-ils comme une source ou un piège vis-à-vis des contaminants métalliques ?
- La contamination des sédiments a-t-elle un impact sur la qualité d'un écosystème aquatique ?

La sédimentation et la remise en suspension/érosion des sédiments sont les deux processus majeurs affectant le transport des particules sédimentaires dans un milieu aquatique. Dans la littérature, les termes de remise en suspension et d'érosion sont rarement différenciés. La différenciation semble liée à l'importance spatio-temporelle des processus physiques susnommés.

Les sédiments de surface peuvent être soumis à une alternance de dépôt et d'érosion avec des processus sédimentaires se déroulant sur des échelles de temps variables.

Afin de caractériser la dynamique sédimentaire sur des échelles de temps variables, les traceurs radioactifs environnementaux constituent de formidables outils. Les traceurs radioactifs permettent en outre d'étudier le transport des particules sédimentaires *in situ*.

A l'issue de ce chapitre, il apparaît que l'étude des échanges des métaux à l'interface eau-sédiment est interdisciplinaire par définition. L'interface eau-sédiment est un milieu où les variations chimiques, physiques et biologiques sont les plus importantes. Le transport physique des particules conditionne les propriétés du milieu affectant les réactions chimiques se déroulant à proximité de l'interface eau-sédiment.

La dynamique sédimentaire est responsable du transfert des contaminants métalliques à l'interface eau-sédiment par voie particulaire et par voie dissoute. Le dépôt/l'érosion des sédiments de surface s'accompagne :

- D'un flux sédimentaire de dépôt des particules contaminées à la surface des sédiments ;
- D'un flux sédimentaire d'érosion des particules contaminées ;
- D'une diffusion des contaminants à travers l'interface eau-sédiment ;
- D'un flux d'advection des eaux interstitielles chargées en métaux ;
- D'une remobilisation des contaminants métalliques suite à une perturbation des paramètres biogéochimiques des sédiments.

Dans ce travail, nous suggérons de déterminer les profils des concentrations en métaux dans les eaux interstitielles à l'aide d'une méthode de diffusion sur gel (*i.e.* DET). Une partie du travail repose sur l'utilisation des traceurs radioactifs afin de caractériser la dynamique sédimentaire. A partir du couplage avec la dynamique sédimentaire, nous chercherons à déterminer les flux particulaires de dépôt et d'érosion des contaminants métalliques, ainsi que les flux d'advection des métaux contenus dans les eaux porales. L'extraction sélective constitue un bon outil pour l'étude de la spéciation particulaire des métaux dans les sédiments. Enfin, l'étude des paramètres physico-chimiques (*e.g.* Eh, pH) dans les sédiments devrait nous permettre d'identifier les mécanismes diagénétiques en cours.



## 2 MATERIELS ET METHODES

### 2.1 Contexte de l'étude

La région Nord-Pas de Calais se caractérise par un réseau dense de rivières canalisées (680 km) soumis à une importante accumulation de matériel sédimentaire. La sédimentation est favorisée par les faibles débits liés à la topographie plane. Les sédiments marqués par le lourd passif industriel et urbain de la région présentent des concentrations élevées en polluants métalliques et organiques. Les systèmes aquatiques sont soumis, encore actuellement, à des rejets urbains ou industriels qui continuent en partie à « alimenter » les sédiments de fond en polluants métalliques et/ou organiques. La région Nord-Pas-de-Calais renferme 30 % des sédiments dits contaminés en France.

Dans un souci croissant de la qualité des écosystèmes aquatiques, la question du devenir des contaminants associés au sédiment se pose :

- Les sédiments se comportent-ils comme des puits, des « absorbeurs » de la pollution dissoute? Dans le souci d'une gestion cohérente des cours d'eau, le stock de contaminants doit alors être caractérisé.
- Les sédiments agissent-ils en tant que sources de contaminants vers la colonne d'eau sus-jacente ? Les modalités et les cinétiques de transfert des polluants vers la colonne d'eau doivent alors être étudiées.

Cette réflexion est à mener sur un système aquatique soumis à des perturbations naturelles (événements climatiques, variations saisonnières des paramètres physico-chimiques) et/ou d'origine anthropique (opérations de curage, navigation). Après perturbation, les sédiments peuvent migrer à l'aval et entraîner avec eux leur lot de pollution.

Dans le cadre de sa thématique « sédiments » le CNRSSP a mené à partir de 1998 un projet intitulé « Migration de polluants métalliques et organiques à l'échelle d'un bassin hydraulique » (CNRSSP 01/23). Le site d'étude est une portion du bassin versant de la Scarpe Inférieure située dans le Nord. Le secteur sélectionné fait partie des principales zones de contamination métallique du bassin Artois-Picardie pour les sédiments de cours d'eau. L'étude a montré que les sédiments de cette rivière canalisée se caractérisent par des teneurs très élevées en polluants métalliques, notamment en zinc, cadmium et plomb. Si les sources historiques expliquent la majorité des fortes concentrations, un apport conséquent existe encore actuellement. Il a été montré que cet apport était dû en majeure partie aux stations de relevage qui rejettent dans le cours d'eau les eaux issues des réseaux de drainage des sols du bassin versant. Dans le cadre de ce précédent travail, le devenir dans le cours d'eau de cet apport de polluants essentiellement sous forme particulaire n'a pu être complètement compris. Le bilan du zinc a montré une balance entrée/sortie déficitaire impliquant un stockage de cet élément dans le système aquatique. La sédimentation est un paramètre important à considérer dans la quantification des bilans globaux des polluants métalliques dans un système aquatique.

La remise en suspension des sédiments peut constituer en outre une source de polluants dans le milieu aquatique. Le bilan réalisé pour le plomb met en évidence un flux entrant inférieur au flux sortant : la remise en suspension des sédiments pourrait être la source « manquante ». La remise en suspension/érosion des sédiments contaminés est un facteur à considérer dans la détermination des bilans globaux, facteur qu'il est cependant difficile de quantifier.

L'impact de la remise en suspension des sédiments sur la perturbation des conditions physico-chimiques à l'interface eau-sédiment et sur la remobilisation des polluants métalliques associés au matériel sédimentaire a été abordé par l'analyse des teneurs en métaux dans l'eau interstitielle des sédiments juste après une opération de dragage. Cette étude, réalisée dans le cadre de conventions FEDER et DIREN Nord-Pas-de-Calais, a été menée au cours d'une

action de curage de la Scarpe Moyenne, rivière canalisée caractérisée par des teneurs importantes en métaux dans ses sédiments (CNRSSP 01/28). Ce travail a montré que les polluants métalliques transférés dans la colonne d'eau pendant le curage étaient associés aux particules et que la phase dissoute était peu influencée. Cependant, une perturbation profonde, après curage, des conditions physico-chimiques du compartiment sédimentaire s'accompagne d'une remobilisation dans la phase dissoute des métaux initialement associés au sédiment. Ces modifications perdurent plusieurs mois. En effet, des conditions physico-chimiques à l'interface eau-sédiment similaires à celles avant curage sont observées seulement huit mois après curage (CNRSSP 01/28).

Cette expérience qui consistait à suivre *in situ* le devenir des polluants métalliques pendant et après une opération de curage n'a pas permis d'aborder la dynamique de transfert des polluants dans l'eau et de dépôt des particules suite à leur remise en suspension. L'influence des processus physiques sur les processus chimiques n'est donc pas connue.

Le projet MESDERIC, dans lequel s'inscrit la thèse s'intéresse au « Devenir des polluants métalliques associés aux sédiments contaminés : Impact des phénomènes de dépôt et de remobilisation sur le transfert des métaux dans la colonne d'eau ». Ce projet est proposé pour trois années avec deux niveaux d'investigations : à l'échelle de l'écosystème aquatique et au laboratoire. Le projet a été financé par la DIREN et l'Europe (fonds FEDER). Trois laboratoires français sont associés au projet : le CNRSSP (Centre National de Recherche sur les Sites et Sols Pollués) à Douai, le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement) à Gif-sur-Yvette, et le BRGM (Bureau de Recherche Géologique et Minière) à Orléans.

Dans le système aquatique, le devenir des polluants associés au sédiment est dépendant des processus non seulement chimiques (diminution/augmentation du pH/Eh etc., mécanismes de précipitation, d'adsorption, de désorption, etc.) mais aussi physiques (dépôt/remise en suspension des particules, intensité des flux dissous et particulaire) qui ont lieu dans le compartiment sédimentaire, la colonne d'eau et à l'interface eau-sédiment. L'ensemble de ces processus est donc à prendre en compte dans l'étude de la dynamique des polluants. En s'appuyant sur ce constat, on propose d'aborder le transfert des éléments polluants dans un écosystème aquatique en intégrant deux niveaux d'observation : à l'échelle du cours d'eau et au laboratoire. Deux axes sont développés :

- Au sein d'un écosystème aquatique caractérisé par un compartiment "sédiment pollué", on souhaite quantifier les vitesses de sédimentation et de remobilisation du matériel particulaire à partir de la mesure des traceurs radioactifs environnementaux ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{137}\text{Cs}$ ). L'objectif est de quantifier l'impact de la dynamique sédimentaire sur le transfert et le devenir des polluants métalliques dans le cours d'eau. C'est précisément dans cet axe que s'inscrit le travail mené en thèse.
- Au sein d'un système sédiment/colonne d'eau reconstitué en laboratoire, on souhaite aborder conjointement la dynamique physique des particules (sédimentation, consolidation et compaction) et les mécanismes de transfert des éléments polluants de la phase solide (sédiment/matériel en suspension) vers la phase dissoute (eau interstitielle / colonne d'eau). L'objectif est d'évaluer le rôle des paramètres physiques (telles que décantation, cohésion, coagulation) sur la remobilisation des polluants métalliques associés au sédiment et leur (re)distribution entre phases dissoute, colloïdale et particulaire.

En résumé, le projet MESDERIC est centré sur l'étude des modalités de transfert des polluants métalliques ainsi que de leurs temps de résidence dans la colonne d'eau et le compartiment sédimentaire en relation avec la dynamique des particules dans les rivières canalisées. Le but est d'apporter *in fine* de nouveaux éléments de réponse aux questions suivantes:

- Les sédiments sont-ils des sources ou des pièges pour les polluants métalliques ?
- Quel peut être l'impact d'une remise en suspension de sédiment pollué sur le cours d'eau ?
- Faut-il curer les cours d'eau ?

## 2.2 Présentation de la Scarpe

### 2.2.1 Situation géographique

La Scarpe est une rivière située dans la région Nord-Pas-de-Calais qui prend sa source à Berles-Monchel (101 m) dans l'Artois, à l'ouest d'Arras (figure 2.1). Son parcours linéaire est de 102 km, dont 66 km sont canalisés. Elle se divise en trois parties :

- la Scarpe Supérieure entre Arras et Corbehem,
- la Scarpe Moyenne à Douai,
- la Scarpe Inférieure entre Douai et Mortagne du Nord.

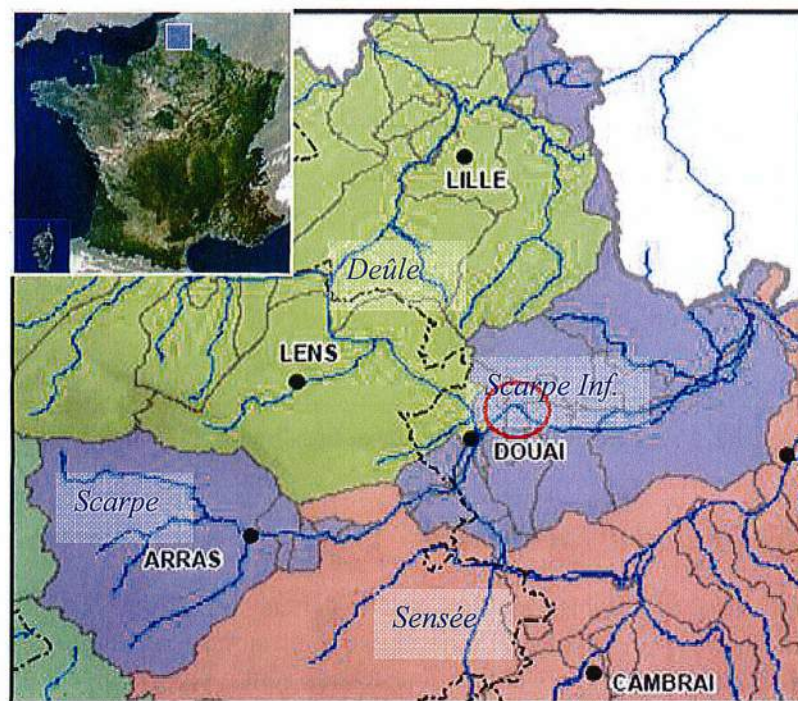


Figure 2. 1 : Localisation du bassin versant de la Scarpe (en violet) et de la section de canal étudiée. Adapté d'après l'Agence de l'Eau Artois-Picardie.

Le secteur d'étude correspond à une section de la Scarpe Inférieure (figure 2.1). Le territoire concerné doit en premier lieu être restitué dans un contexte plus large.



Les communications de la Scarpe Inférieure avec les cours d'eau situés en amont et en aval sont (figure 2.2) :

- La Scarpe Supérieure rejoint la Sensée. Le débit de ces deux canaux s'écoule vers le canal de la Deûle et vers la Scarpe Moyenne.
- La Scarpe Moyenne traverse ensuite Douai, avant de se diviser en deux. Une partie du débit va vers la Deûle et l'autre alimente la Scarpe Inférieure au niveau de l'écluse « Fort de Scarpe ».
- La Scarpe Inférieure parcourt ensuite une quarantaine de kilomètres avant de trouver sa confluence avec l'Escaut à Mortagne-du-Nord.

Les principales communications avec la Scarpe Inférieure se font :

- par l'amont, de manière directe avec la Scarpe Moyenne, donc indirectement avec la Scarpe Amont et la Sensée,
- par l'aval, avec l'Escaut.

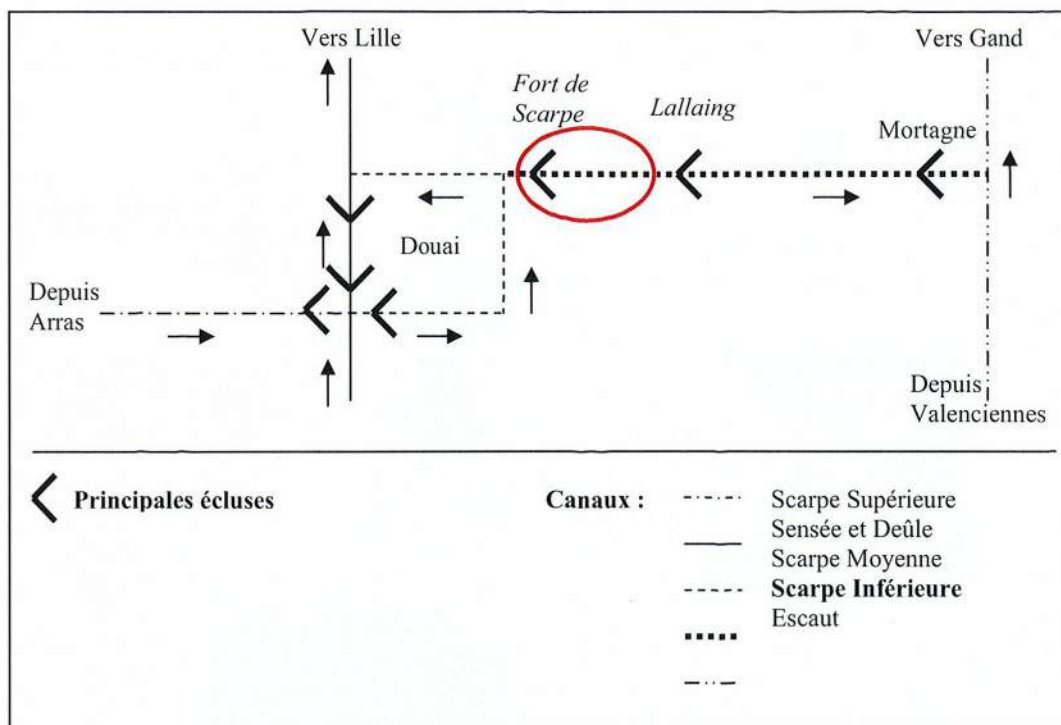


Figure 2.2 : Schéma simplifié des canaux. Localisation du secteur d'étude.

### 2.2.2 Description du bassin versant

Situé dans le Nord entre le Douaisis et le Valenciennois (figure 2.1), le bassin versant de la Scarpe Inférieure s'étend sur 624 km<sup>2</sup>. Il est déterminé par les régions de la Pévèle au nord et de l'Ostrevent au sud. Trois entités paysagères sont représentées : la Pévèle, la plaine alluviale de la Scarpe et le bassin minier/Ostrevent.

Le bassin minier français s'étend de la Lys à l'ouest, à la frontière belge à l'est sur 100 km de long et un maximum de 15 km de large. Il est orienté Nord Ouest / Sud Est. Cette zone topographiquement basse et plate, est drainée par un réseau chevelu et dense de rivières moyennes (Sensée, Scarpe, Escaut, Deûle...) fortement artificialisées, de même que les affluents. La toponymie (« frais-marais » par exemple) atteste du caractère naturellement humide de la zone avant l'exploitation du charbon.

Le sol et le sous-sol sont caractérisés par une pédologie complexe et quatre types de formations géologiques. Quatre aquifères de productivité et de qualité inégale sont présents : les aquifères superficiels, l'aquifère de la craie, l'eau du houiller et l'aquifère carbonifère. Il existe des communications entre ces aquifères par des phénomènes d'infiltration et de remontée de nappe, et le long des failles.

Le bassin versant de la Scarpe se compose d'une cuvette centrale de 40 km de long et de 25 km de large, d'altitude comprise entre 16 et 20 m. Cet axe central, vaste plaine alluviale marquée par une quasi absence de pente (0,2 % en moyenne), est bordé par des zones en pente douce, perturbées par des dépressions. Le débit moyen de la Scarpe est faible, de l'ordre de  $4,5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . Les contreforts du bassin présentent une altitude comprise entre 25 et 50 m avec des pentes de l'ordre de 3 %. L'eau a tendance à stagner dans la plaine.

Géologiquement, la basse plaine de la Scarpe est un graben tectonique rempli d'alluvions. Il s'agit d'une vaste plaine d'épandage fluviale (3000 ha) avec des successions de transport et de dépôt des sédiments.

Du point de vue climatique, la Scarpe Inférieure est au sein de la zone climatique intermédiaire, avec des hivers froids et des étés chauds. Elle est donc à la fois sous influence océanique et semi-continentale. Les précipitations moyennes annuelles sont de 677 mm à Douai (DIREN, Météo France, 1976-1998, Douai).

Il n'existe pas d'historique des crues et des étiages du bassin versant de la Scarpe Inférieure. Les données sont assez récentes. La crue la plus importante est celle de 1993-1994.

Le bassin versant actuel de la Scarpe est le résultat des nombreuses interventions menées par l'homme au cours du temps. Avant le X<sup>ème</sup> siècle, la Scarpe n'existait pas. Deux cours d'eaux se distinguaient : le Scarbus (maintenant l'Escrebieux) au Nord et la Satis au sud. Au X<sup>ème</sup> siècle, le Comte de Flandres, afin de favoriser le développement de la ville de Douai, fit creuser le seuil de Vitry-en-Artois. Le cours de la Satis (venant d'Arras) fut détourné et rejoignit celui du Scarbus, pour devenir le cours actuel de la Scarpe. Une deuxième dérivation est creusée à la fin du XI<sup>ème</sup> siècle pour former la « Petite Sensée » et augmente les volumes d'eau en transit dans la Scarpe Inférieure. L'élévation du niveau d'eau de la Scarpe Inférieure entraîne une augmentation de l'envolement de la vallée. Durant l'ère monacale, les terres riches d'une plaine alluviale étant convoitées pour la production agricole, des travaux considérables sont réalisés afin d'assainir la plaine. De nombreux canaux de drainage sont créés par les moines dès le XII<sup>ème</sup> siècle.

Depuis 1830, la Scarpe est définitivement canalisée et a globalement l'aspect qu'on lui connaît aujourd'hui.

En 1936, le canal de dérivation de la Scarpe Moyenne a été réalisé. La majeure partie des débits en amont est utilisée pour les besoins en eau du canal de la Deûle aux dépens de la Scarpe Inférieure (figure 2.2).

Longue de 37 km, la Scarpe Inférieure est canalisée dans sa totalité : son parcours actuel est le résultat de plusieurs siècles d'interventions humaines. Sa largeur est d'environ 20 m et son gabarit de type Freycinet.

Le réseau hydrographique, très dense et très hiérarchisé, est presque entièrement artificialisé :

- la Scarpe canalisée est une rivière endiguée et perchée (son niveau est plus élevé que les terres avoisinantes) sur une majorité de son parcours ;
- le réseau principal comprend deux contre-canaux (le Décours et la Traitoire) ;
- le réseau secondaire est composé de courants et fossés chargés d'évacuer les eaux collectées dans les parcelles ainsi que les eaux usées des habitations et communes encore non raccordées à un réseau d'assainissement ;
- le réseau tertiaire est constitué par le réseau de fossés de drainage des parcelles.

Le réseau hydrographique est indépendant de la Scarpe canalisée et est directement alimenté par la nappe superficielle, les ruissellements et les rejets des zones urbanisées. Le caractère dynamique du réseau hydrographique dans la plaine est largement lié aux fluctuations du niveau de la nappe alluviale.

### 2.2.3 Les eaux de surface

Le réseau hydrographique possède certaines spécificités qui conditionnent un fonctionnement particulier, basé sur une gestion originale des écoulements. La Scarpe canalisée étant perchée, les écoulements gravitaires des affluents vers la Scarpe sont très difficiles. De plus, une partie du bassin versant est située dans une zone d'affaissement minier, vulnérable aux inondations, qui nécessite un pompage de l'eau vers la Scarpe *via* les stations de relevage. Enfin, la plaine alluviale regroupe un réseau de zones humides (d'intérêt national).

Les ouvrages hydrauliques présents dans la Scarpe canalisée sont :

- Les écluses (6 biefs) qui permettent la gestion des niveaux d'eau.
- Les stations de relevage des eaux qui permettent soit de transférer l'eau depuis le réseau hydrographique vers la Scarpe canalisée, soit de pomper l'eau provenant des remontées de nappe du bassin minier. Il existe 39 stations dans le bassin versant.
- Des passages en siphon ont été créés afin de gérer les écoulements.
- Des vannes et clapets anti-retour permettent de gérer les communications entre différents cours d'eau ou zones humides.
- Des lames déversantes qui ont pour rôle de maintenir un certain niveau dans certains cours d'eau.
- Des bassins de rétention des eaux et des zones d'expansion de crue permettent de stocker des volumes d'eau plus ou moins importants en période de crue.
- Des coursiers hydrauliques ont été créés afin de court-circuiter une partie des eaux en période de crues.

D'après l'Agence de l'Eau, la qualité de l'eau de la Scarpe canalisée est considérée moyenne au niveau de Douai (Scarpe Moyenne) en 2007. Dès la commune de Râches et jusqu'à la confluence avec l'Escaut la qualité de l'eau devient très mauvaise. En 2002, est constatée une pollution chronique et massive des cours d'eau par l'ammonium et le phosphore. Les concentrations en macropolluants (matières organique et matières en suspension) sont fortes sur l'ensemble du territoire : c'est un indicateur de la dynamique sédimentaire naturelle d'une plaine alluviale. La pollution est d'origine urbaine (phosphates, ammoniac) et agricole (nitrates, nitrites).

Dans les sédiments, les sources potentielles de la pollution sont les activités industrielles et urbaines, agricoles et les pollutions accidentelles. C'est surtout l'activité industrielle passée et actuelle (*e.g.* métallurgie, carbochimie) qui est responsable de la pollution par les métaux lourds et les hydrocarbures retrouvés dans les sédiments. Parmi les activités industrielles et urbaines, les rejets industriels et les stations d'épuration apportent des sédiments. D'autres rejets issus des activités urbaines ou industrielles ne sont pas classés et donc non suivis par la DRIRE. Il s'agit des rejets d'activités industrielles ou artisanales diffuses.

Le ruissellement sur les surfaces urbanisées et notamment les voiries contribue à la pollution par certains métaux (plomb, zinc) et en hydrocarbures. Les eaux de ruissellement urbaines (voiries/parking) jouent un rôle dans les flux de pollution arrivant dans les canaux car elles sont chargées en polluants tels que plomb, cadmium, zinc, cuivre, hydrocarbures.

### 2.2.4 Secteur étudié

Le secteur étudié est situé à l'aval de Douai, dans un bief, entre l'écluse « Fort de Scarpe » (à l'amont) et l'écluse de Lallaing (à l'aval) (figure 2.2). Il mesure environ 5km de longueur. Dans cette partie du canal, les berges sont espacées de 20-25 m. La hauteur d'eau varie entre <1 et 3 m.

Actuellement, le niveau normal de navigation est maintenu par le gestionnaire d'ouvrage hydraulique (Voies Navigables de France), mais le canal n'est plus utilisé pour la navigation depuis juillet 2003. Il s'apparente à un bras mort qui a par le passé fait l'objet de curages épisodiques (Voies Navigables de France) :

- 1975 : dragage de la Scarpe Inférieure de Fort de Scarpe à Warlaing (30 000 m<sup>3</sup>) ;
- 1987 : dragage ponctuel de Fort de Scarpe à Râches (5 000 m<sup>3</sup>).

#### 2.2.4.1 Sources de pollution locales

Dans la section de canal étudiée, le cours d'eau sert d'exutoire à de nombreux rejets, ainsi qu'à l'affluent « La Cunette » parfois nommée « Cunette des Pestiférés », lui-même alimenté par d'autres rejets (canalisation d'eaux pluviales et station de relevage) (figure 2.3). Les rejets arrivant dans cette partie du canal contribuent à l'alimentation en eau et en sédiments dans le canal et sont de nature différente (figure 2.3) :

- rejets industriels, avec Saprotec et Air Liquide ;
- rejets urbains, avec la Station d'EPuration (=STEP), l'eau de ruissellement du réseau routier (route) et les Stations de Relevage (=SR).

Les eaux rejetées par les trois stations de relevage présentées se déversent directement (Vallée et ED11) ou indirectement dans le canal (GC35).

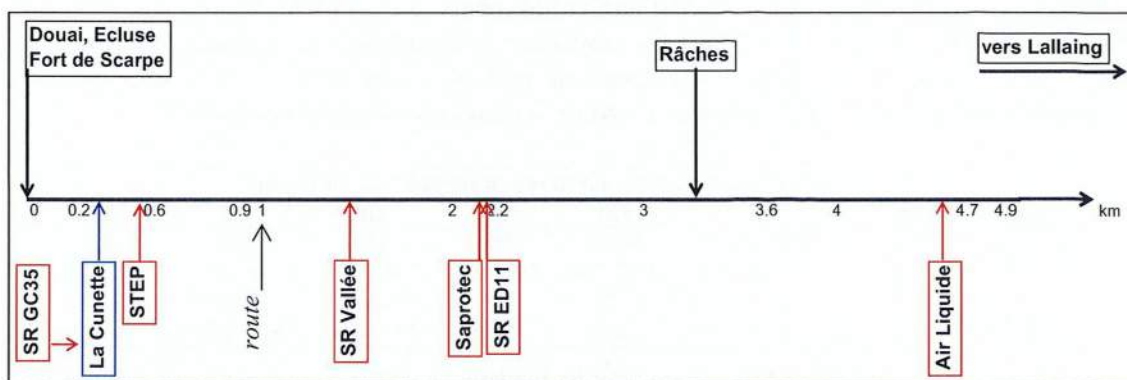


Figure 2. 3 : Représentation schématique de la section de canal étudiée.

Le tableau 2.1 recense les différentes sources d'apport en eau arrivant dans cette partie du canal. La plupart des rejets se fait sous la surface de l'eau, excepté les deux rejets industriels et le rejet de la Station de Relevage (= SR) « Vallée de Scarpe ».

Type	Données	Organisme/Activité
Précipitations atmosphériques	Durée de l'épisode pluvieux et quantité de pluie	Société des Eaux de Douai
Ecluse « Fort de Scarpe »	Mesure de débit toutes les 15 min	Voies Navigables de France
Affluent « La Cunette »	Pas de données directes	
Station d'épuration de Douai (capacité : 160 000 équivalents/habitants).	Débit mensuel	Sogea
Station de Relevage « Vallée de Scarpe »	Débit mesuré toutes les 5min	Société des Eaux de Douai
Station de Relevage « ED11 »	Données sporadiques	Société des Eaux de Douai
Rejet industriel 1	Pas de données	Electro-zingage
Rejet industriel 2	Pas de données	Industrie du gaz

**Tableau 2. 1 : Apports en eau dans la section de canal étudiée.**

Les rejets identifiés sont autant de sources de matières en suspension plus ou moins riches en métaux (Zn, Cd, Pb, Mn, Cr, Cu) et métalloïde (As) dans la section de canal étudiée. Le tableau 2.2 présente les concentrations en métaux dans les matières en suspension issus des rejets de la station d'épuration, du ruissellement de routes et de la station de relevage « ED11 ». Ces valeurs ont été obtenues pendant le travail de thèse. Les matières en suspension ont pu être ponctuellement prélevées.

Rejet	Concentrations dans les matières en suspension, en mg.kg <sup>-1</sup>						
	As	Zn	Cd	Pb	Mn	Cr	Cu
STEP	66	2 574	<4	261	226	110	317
Route	147	3 389	37	2 009	971	224	1 129
SR ED11	<4	5 203	<4	254	316	<4	446

**Tableau 2. 2 : Concentrations en métaux dans les matières en suspension des rejets.**

Les rejets industriels de Saprotec (électro-zingage) et urbains de la station de relevage « Vallée de Scarpe » ont fait l'objet d'une étude menée en parallèle dans le cadre du projet MESDERIC. Le tableau 2.3 présente les moyennes et la gamme des concentrations en métaux rencontrées dans les matières en suspension prélevées toutes les 4 à 6 semaines entre novembre 2004 et août 2005 (données C. Alary, communication personnelle).

Rejet	Concentrations dans les matières en suspension, en mg.kg <sup>-1</sup>						
	As	Zn	Cd	Pb	Mn	Cr	Cu
SR Vallée	54	14 510	2 091	589	542	86	336
	26-102	1 251-39 350	51-7 770	38-2 926	210-1 792	38-147	97-873
Saprotec	<5	50 738	<4	67	466	5 590	3 464
	<5	13 018-104 790	<5	<266	61-1 414	683-14 471	478-10 252

**Tableau 2. 3 : Concentrations en métaux dans les matières en suspension des rejets de la station de relevage et de Saprotec.**

Le charbon a été découvert en 1730 à Anzin ; il a été exploité jusqu'en 1990<sup>1</sup>. L'extraction a entraîné l'apparition de vides sous terre et d'affaissements en surface. Lors de l'exploitation, il a été nécessaire d'une part, de pomper les eaux du fond, de diverses origines, et d'autre part de pomper les eaux de surface, pour éviter l'ennoisement des dépressions topographique créées suite à l'exploitation minière et souvent urbanisées. Les stations de

<sup>1</sup> 2,4 milliards de tonnes nettes ont été extraites dans le Nord-Pas-de-Calais. 600 puits de mines ont été construits. Le volume de vide a été estimé à plus de 850 millions de mètres cube. Des affaissements d'une dizaine de mètres en surface ont été relevés.

relevage des eaux de surface<sup>2</sup> sont, pour la plupart, installées à demeure, sauf dans les secteurs non ou très peu urbanisés, et devront continuer à fonctionner, à la différence des pompages d'exhaure, arrêtés avec l'exploitation minière. De plus, l'exploitation du charbon s'est accompagnée au XIX<sup>ème</sup> et XX<sup>ème</sup> siècles d'un développement rapide de l'urbanisation et d'activités industrielles polluantes dans le bassin minier<sup>3</sup>.

Les eaux relevées dans les stations de relevage ont plusieurs origines :

- les eaux de ruissellement générées par l'imperméabilisation des surfaces (habitat, voiries),
- les eaux de nappes superficielles, permanents ou temporaires, lorsque la surface du sol est descendue sous le niveau piézométrique,
- les eaux de drainage en provenance des fossés en zones agricoles, souvent connectés aux collecteurs pluviaux ou unitaires structurants en zones urbaines,
- les eaux usées provenant des déversements temporaires ou continus, dus aux insuffisances des réseaux unitaires.

La figure 2.4 est une illustration de la station de relevage « Vallée de Scarpe », située dans le secteur d'étude de la Scarpe Inférieure.



**Figure 2. 4 : Station de relevage « Vallée de Scarpe ». A gauche : arrivée des eaux dans la station. A droite : rejet dans la Scarpe Inférieure.**

Le schéma d'alimentation d'une station de relevage peut être complexe ; en témoigne celui de la station « Vallée de Scarpe » présenté dans la figure 2.5. La station de relevage récupère les eaux de ruissellement drainant les sols, les eaux des collecteurs urbains d'eau pluviale, le surplus d'eau dans les agglomérations, le trop plein des marais, l'eau des petits cours d'eau, et l'eau provenant d'autres stations de relevage.

Les sols situés aux alentours des différentes stations de pompage refoulant l'eau vers la station de relevage « Vallée de Scarpe » sont contaminés en métaux. La figure 2.6 illustre la cartographie de la contamination en plomb dans les sols situés en rive gauche de la Scarpe Inférieure.

<sup>2</sup> 80 stations de relevage des eaux permettent aujourd'hui l'évacuation d'eaux qui sinon s'accumuleraient dans les zones affaissées.

<sup>3</sup> 900 cités minières, 110 000 logements dans 160 communes, 230 terrils d'un volume total estimé à 450 millions de mètres cube sur 2 500 hectares, 40 cokeries aujourd'hui abandonnées...

### Station de Relevage des Eaux Charbonnages de France

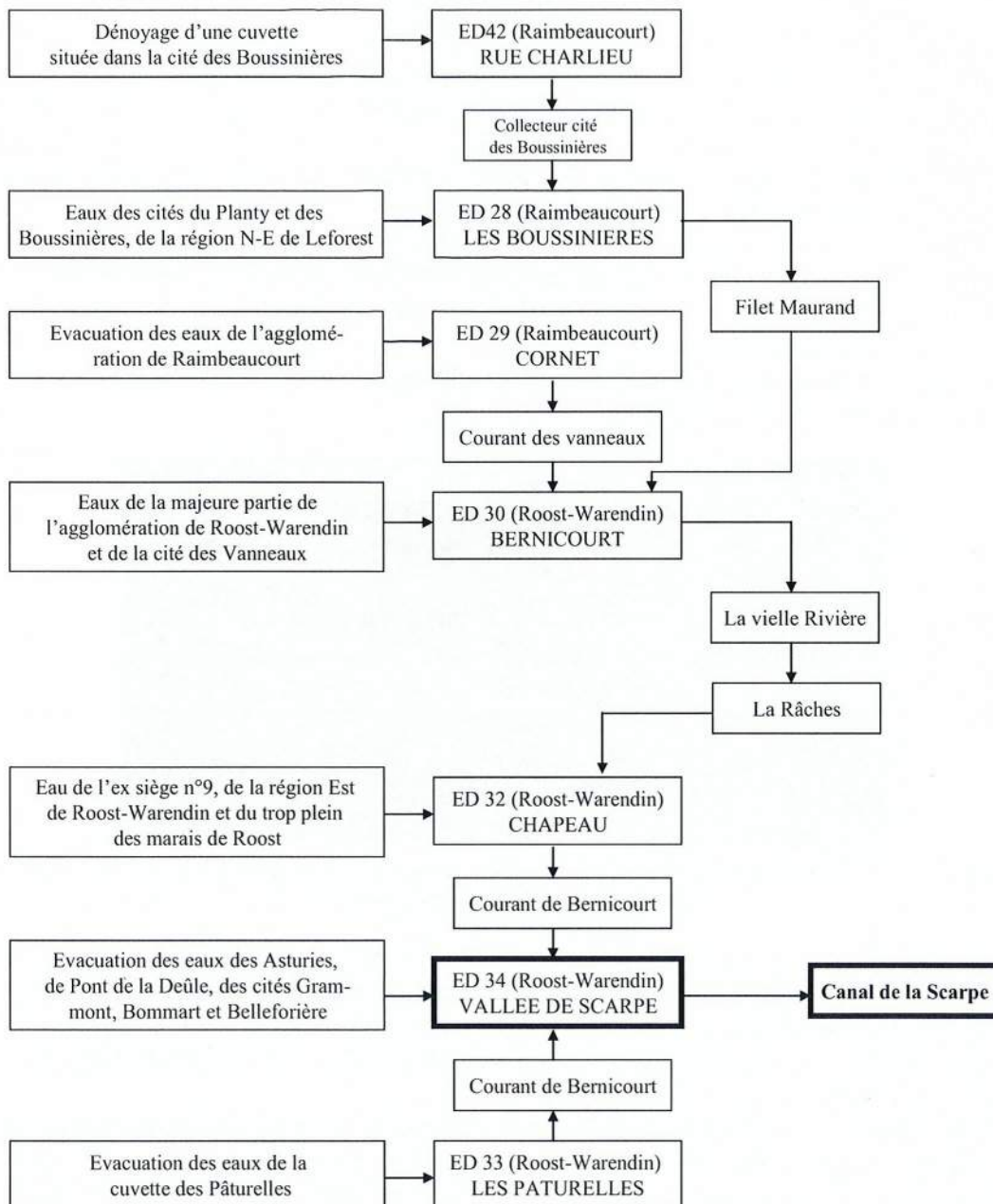


Figure 2. 5 : Schéma d'alimentation de la station de relevage « Vallée de Scarpe ». Source : Charbonnages de France.

Il s'agit d'une pollution historique liée aux activités de deux usines de production de métaux non ferreux implantées à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle :

- Metaleurop (fonderie de plomb et de zinc) à Noyelles-Godault en activité entre 1894 et 2003,
- la Compagnie Royale des Mines devenue Union Minière puis Umicore (métallurgie du zinc et fabrication d'acide sulfurique) à Auby existe depuis 1869.

Avant 1970, ces usines utilisaient des procédés thermiques d'extraction du plomb et du zinc très polluants qui engendraient des émissions importantes de particules dans l'atmosphère. Les poussières émises riches en métaux (plomb, zinc, mais aussi cadmium, cuivre, antimoine, bismuth...) se sont déposées sur les sols environnants, provoquant une contamination significative des sols.

Pour exemple, en 2001, l'usine Metaleurop a émis dans l'air 18 395 kg de Pb, 26 152 kg de Zn et 823 kg de Cd (DRIRE, IRE 2001).

La contamination des sols par dissémination des poussières atmosphériques affecte jusqu'à 20 cm d'épaisseur (CNRSSP 07/01) et pas seulement en plomb. Les concentrations en métaux rencontrées dans les parcelles situées aux alentours de l'usine Metaleurop valent en moyenne 442 mg.kg<sup>-1</sup> pour le Zn et 6 mg.kg<sup>-1</sup> pour le Cd, et sont comprises entre 115 et 1985 mg.kg<sup>-1</sup> pour le Zn et entre 1 et 28 mg.kg<sup>-1</sup> pour le Cd (CNRSSP 07/01). Dans ces parcelles, il existe une très bonne corrélation entre les concentrations du Zn et du Pb, ainsi qu'une association préférentielle du Cu, du Pb et du Zn avec le carbone (CNRSSP 07/01).

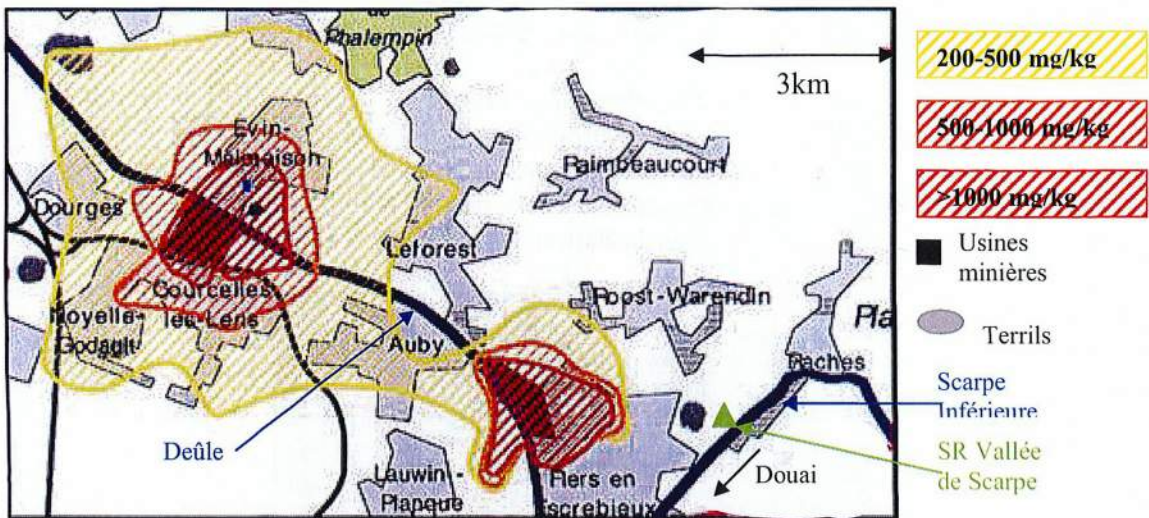


Figure 2. 6 : Contamination des sols en Pb. Localisation de la Station de Relevage (= SR) « Vallée de Scarpe). Adapté d'après Sobanska (1999).

### 2.2.4.2 Hydrologie

Le tableau 2.4 présente les principales données hydriques mensuelles entre mars 2005 et août 2006 : pluviométrie, débits mesurés au niveau de l'écluse « Fort de Scarpe » située à l'amont, de la station d'épuration et de la station de relevage. Le débit au niveau de l'écluse amont « Fort de Scarpe » est donné par les Voies Navigables de France, le débit des rejets de la station d'épuration par la société Sogea, le débit des rejets de la station de relevage « Vallée de Scarpe » et la pluviométrie par la Société des Eaux de Douai. Les données pluviométriques correspondent aux moyennes des mesures effectuées par deux pluviomètres (figure 2.7) situés à proximité du secteur d'étude (1-3 km).



Mois	Pluie, mm	Débit mensuel moyen, m <sup>3</sup> .s <sup>-1</sup>		
		Ecluse "Fort de Scarpe"	Station d'épuration (STEP)	Station de relevage "Vallée de Scarpe" (SR)
mars-05	34		0,23	0,12
avr.-05	88	0,96	0,26	0,20
mai-05	54	0,85	0,22	0,07
juin-05	60	0,88	0,19	0,03
juil.-05	160	1,56		0,26
août-05	70	1,31		0,07
sept.-05	18	0,84		0,02
oct.-05	30	0,64		0,02
nov.-05	35	0,96		0,11
déc.-05	39	1,16		0,12
janv.-06	22	1,11	0,21	0,12
févr.-06	66	1,05	0,27	0,22
mars-06	53	0,99	0,30	0,20
avr.-06	26	0,96	0,21	
mai-06	128	0,90	0,29	
juin-06	63	0,92	0,24	0,12
juil.-06	43	0,84		0,03
août-06	172	0,91		0,11

Tableau 2. 4 : Données hydriques entre mars 2005 et août 2006 (pluviométrie, débits).

L'apport en eau dans le canal est principalement assuré par l'écoulement de l'eau en amont. A l'échelle de l'année, le débit moyen de la Scarpe est de 1 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> au niveau de l'écluse « Fort de Scarpe ». Cependant, à l'échelle d'une journée, les niveaux d'eau peuvent varier (quelques dizaines de centimètres). Le débit des rejets de la station d'épuration est de 0,2 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> pour la station d'épuration, et de 0,1 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> pour la station de relevage « Vallée de Scarpe ».

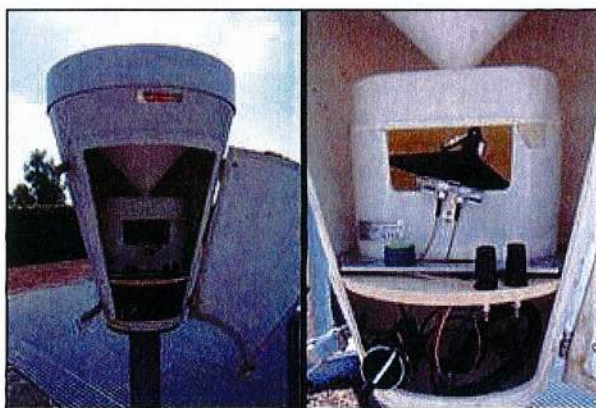


Figure 2. 7 : Pluviomètre à augets basculeurs.

La figure 2.8 présente l'évolution du débit en fonction de la pluviométrie à l'échelle mensuelle. Il n'y a pas de corrélation entre le débit et la pluviométrie.

Le débit de la Scarpe est régulé par la présence des écluses et le fonctionnement hydrologique ne répond pas aux facteurs climatiques. Lorsqu'il y a une montée du niveau de l'eau, l'eau est dirigée vers le canal de dérivation de la Scarpe (figure 2.2).

Le fonctionnement de la station de relevage est lié aux précipitations bien que le débit mesuré au niveau du rejet dans la Scarpe ne dépende pas que de la pluviométrie.

De même, la station d'épuration déverse le « trop plein » par temps de pluie mais le débit de la station dépend d'autres paramètres (traitement des eaux usées).

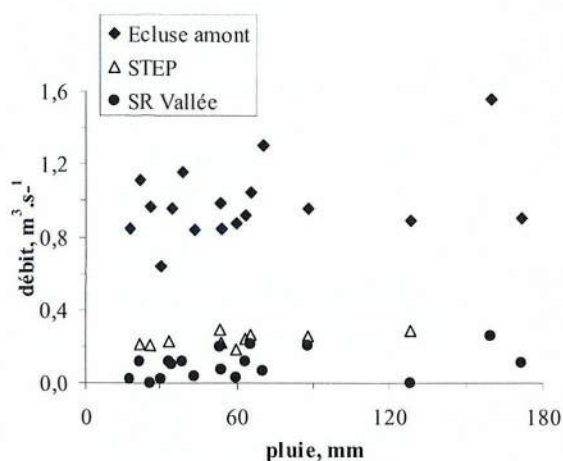


Figure 2. 8 : Relation entre le débit mesuré au niveau de l'écluse « Fort de Scarpe » (Ecluse amont), de la station d'épuration (STEP) et de la station de relevage « Vallée de Scarpe » (SR Vallée), et la pluviométrie.

## 2.3 Choix des sites de prélèvement. Rappel des objectifs

Deux séries de campagnes de prélèvement ont eu lieu dans la Scarpe, en fonction des objectifs de l'étude.

### 2.3.1 Carottage

L'objectif de la première campagne est de caractériser la dynamique sédimentaire et l'évolution de la contamination métallique à long terme (échelle pluri-décennale) dans le réservoir sédimentaire. Pour répondre à cet objectif, des carottes de sédiments ont été prélevées dans la Scarpe, afin de déterminer les profils verticaux des métaux et des traceurs radioactifs à vie « longue » ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ).

Une première campagne de prélèvement a eu lieu les 6 et 7 avril 2004. Le nombre et l'emplacement des sites d'échantillonnage du sédiment ont été définis dans le plan d'échantillonnage du projet MESDERIC. La stratégie d'échantillonnage a été déterminée selon une approche « de jugement ». Six points de prélèvement ont été sélectionnés selon le régime sédimentaire supposé (d'après les profils bathymétriques) et les concentrations en contaminants dans les sédiments (CNRSSP 01/23) : k06, k09, k22, k36, k47, k49 (figure 2.9). Une deuxième campagne de prélèvement a eu lieu le 26 avril 2006 et a permis de compléter la stratégie d'étude de la dynamique sédimentaire à long terme. Les deux sites sédimentaires échantillonnés sont k13 et k16.

Les huit sites sélectionnés ont fait l'objet de prélèvement de « grandes » carottes, afin d'obtenir l'enregistrement sédimentaire sur l'intégralité de la colonne sédimentaire. Dans les carottes de sédiments, ont été mesurées la teneur en eau, la distribution granulométrique, les concentrations en radionucléides, métaux, éléments majeurs, carbone organique, azote et soufre totaux, en fonction de la profondeur.

### 2.3.2 Suivi de terrain

Les objectifs de la deuxième campagne de prélèvement sont de déterminer la dynamique du sédiment (dépôt/érosion) et le transfert (dissous/particulaire) des contaminants

métalliques à l'interface eau-sédiment sur une échelle de temps plus courte (mensuelle) dans les sédiments superficiels. La dynamique à court terme a été déterminée à partir des traceurs radioactifs à vie « courte » ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ) dans les sédiments de surface et les matières en suspension. Les échanges des métaux à l'interface eau-sédiment ont été étudiés à partir des concentrations en métaux dans les sédiments (phase particulaire et dissoute). Les mécanismes impliqués dans le transfert des métaux à l'interface eau-sédiment ont été étudiés à partir des propriétés physico-chimiques ( $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , Eh, pH) et chimiques (concentrations en métaux) dans les sédiments de surface.

Pour répondre à ces objectifs, une campagne de prélèvement de type « suivi de terrain » a été mise en place. L'établissement d'un suivi permet de déterminer l'influence saisonnière sur la dynamique sédimentaire et les échanges des métaux à l'interface eau-sédiment.

Le « suivi de terrain » s'est déroulé entre avril 2005 et août 2006, à raison d'une campagne toutes les 4 à 6 semaines, soit au total 15 campagnes d'échantillonnage (tableau 2.5). Le délai entre deux campagnes successives a été déterminé en fonction des méthodes radioactives à tester *in situ* et de considérations bibliographiques (utilisation du  $^7\text{Be}$ ).

Trois sites d'échantillonnage ont été sélectionnés en fonction du régime sédimentaire « supposé » et du degré de contamination déterminé auparavant (CNRSSP 01/23) : k13, k16 et k36 (figure 2.9). Les sites k13 et k16 sont respectivement situés à l'amont et à l'aval du rejet de la station de relevage « Vallée de Scarpe ». Le point k16 se trouve dans une région sédimentaire où l'interface eau-sédiment est potentiellement soumise à l'influence des rejets de la station de relevage avec pour conséquence probable des processus d'érosion. Le point k36 est situé dans une région de forte accumulation sédimentaire et de contamination. Tous les points sont situés en rive droite du canal. En chacun des points, de « petites carottes » ont été prélevées, ainsi que les matières en suspension.

La teneur en eau, la distribution granulométrique, les concentrations en radionucléides, métaux et éléments majeurs ont été déterminées dans « petites carottes » et les matières en suspension.

Le nombre de sites échantillonnés dont dépend le nombre d'échantillons à analyser a été établi en accord avec la capacité analytique de chaque laboratoire impliqué (LSCE pour la spectrométrie gamma).

En k36, des carottes à « grand diamètre » ont été collectées entre décembre 2005 et août 2006 et dédiées à l'étude des eaux interstitielles : détermination des concentrations en métaux et des paramètres physico-chimiques en fonction de la profondeur.

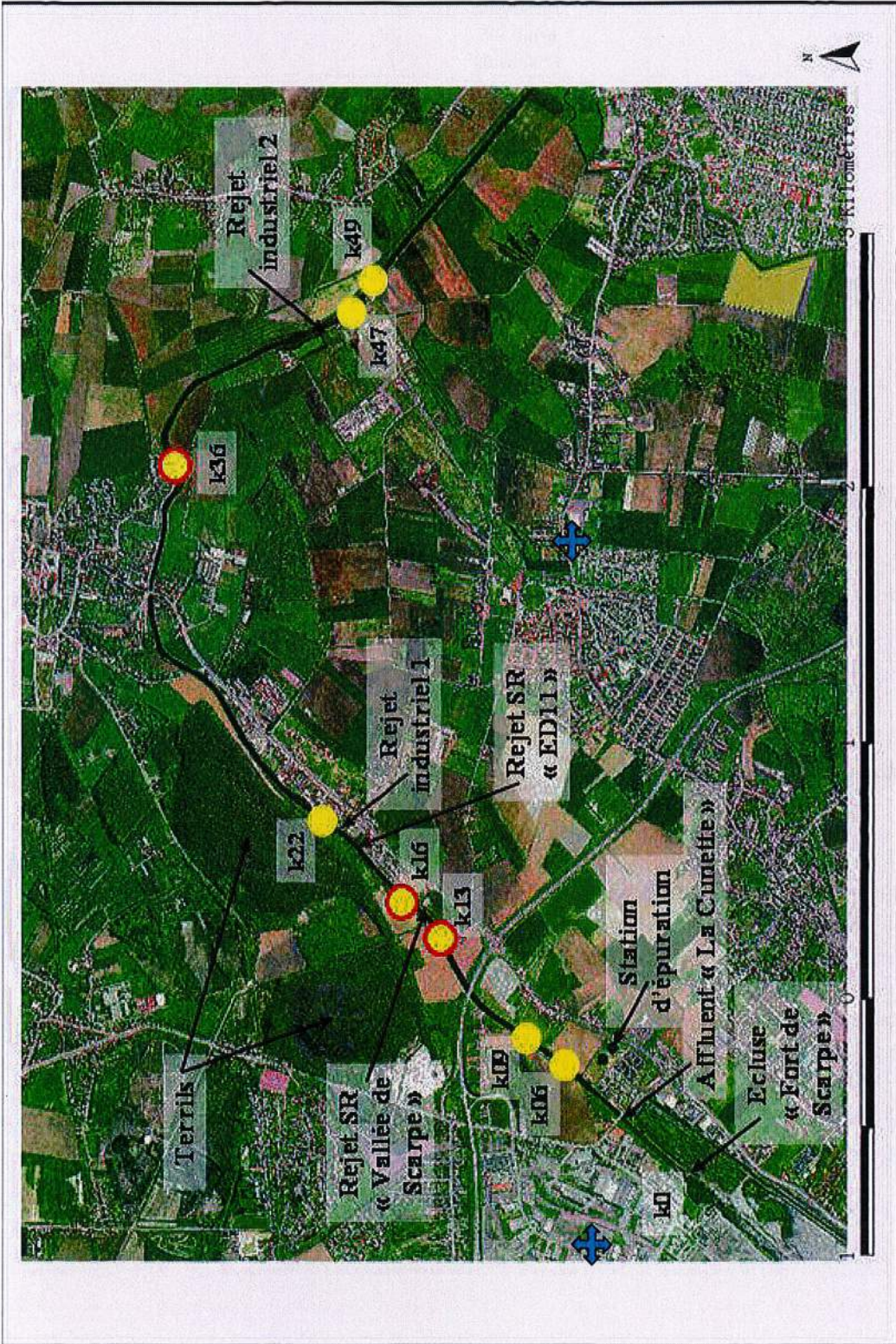


Figure 2. 9 : Section de Scarpe Inférieure. Localisation des rejets, affluent, pluviomètres (croix), et sites de prélèvement (ronds).

n° campagne	date	
	campagne de prélèvement	$\Delta t$ , jours
1	19-avr.-05	
2	19-mai-05	30
3	16-juin-05	28
4	6-juil.-05	20
5	17-août-05	42
6	29-sept.-05	43
7	2-nov.-05	34
8	1-déc.-05	29
9	10-janv.-06	40
10	16-févr.-06	37
11	22-mars-06	34
12	26-avr.-06	35
13	31-mai-06	35
14	5-juil.-06	35
15	17-août-06	43

Tableau 2. 5 : Dates des campagnes de prélèvement lors du « suivi de terrain » et délai séparant deux campagnes successives.

## 2.3 Prélèvement et échantillonnage des solides

Notons que le secteur d'étude est situé à proximité du laboratoire (CNRSSP) situé à quelques kilomètres. Cette proximité permet de limiter les perturbations des échantillons dues au transport et de traiter les échantillons rapidement.

Sur le terrain, différents types d'échantillons sédimentaires ont été prélevés : carottes de sédiment et matières en suspension.

### 2.3.1 Sédiments

Les sédiments ont été prélevés sous forme de carotte. Deux carottiers ont été utilisés avec des diamètres différents (cf. figure 2.10) :

- un carottier à « petit » diamètre (section 25 cm<sup>2</sup>) permettant l'extraction des « grandes » et « petites » carottes,
- un carottier à « grand » diamètre (section : 191 cm<sup>2</sup>) permettant l'extraction des carottes à « grand diamètre ».

La taille des carottes de sédiment est fonction des objectifs de l'étude. Les « grandes » carottes ont permis d'échantillonner l'intégralité de la colonne sédimentaire. Les « petites » carottes ont suffi pour prélever les sédiments de surface. Les carottes à « grand diamètre » ont été dédiées à l'étude des eaux interstitielles.

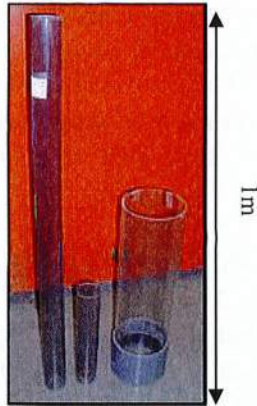


Figure 2. 10 : Tubes pour prélèvement de carottes. De gauche à droite : grand (H : 1 m) et petit (H : 30 cm) tubes, carotte à grand diamètre (H : 60 cm).

Les « grandes » et les « petites » carottes de sédiments ont été prélevées à l'aide d'un carottier manuel de marque Eijkelkamp et de type Becker, de diamètre 57/63 mm (section 25 cm<sup>2</sup>), qui a la propriété de préserver l'interface eau-sédiment. La tête coupante est équipée d'une membrane qui se gonfle sous l'effet de la pression et qui fait office de bouchon (figure 2.11).

Chaque carotte a été extrudée à l'aide d'un système d'extrusion à pression hydraulique de marque Eijkelkamp et de type Becker (figure 2.12) et d'une spatule. En surface, lorsque le sédiment est trop liquide, l'échantillon est prélevé avec une cuiller.

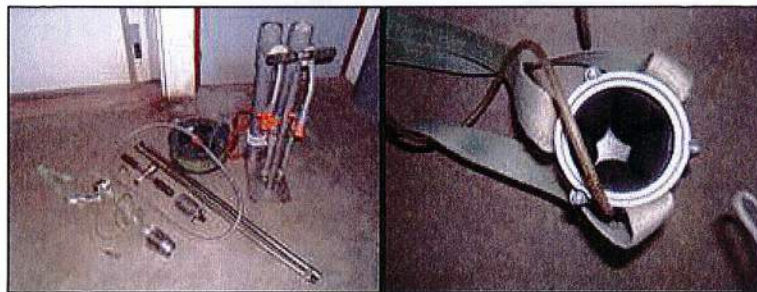


Figure 2. 11 : A gauche : accessoires du carottier petit diamètre (57/63 mm). A droite : tête coupante du carottier avec membrane.



Figure 2. 12 : Système d'extrusion à pression hydraulique. Prélèvement à la spatule et à la cuiller.

Dans le cadre de la première série de campagnes de prélèvement (carottage), une « grande » carotte de sédiment a été prélevée en chacun des huit points d'échantillonnage : k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49 (figure 2.9). Les « grandes » carottes obtenues ont

des longueurs variables : entre 16 cm (k16) et 56 cm (k47). La longueur de la carotte dépend des conditions de pénétration du carottier dans le lit sédimentaire du canal.

Chaque carotte a été découpée en échantillons tous les 2-4 cm sur toute la longueur le jour ou le lendemain du prélèvement (conservation à 4 °C à l'abri de la lumière) (figure 2.12).

Chaque échantillon est ensuite placé à l'étuve à 40 °C pour séchage. L'échantillon est ensuite broyé et conditionné pour l'analyse.

Dans le cadre de la deuxième série de campagnes de prélèvement (suivie de terrain), en chacun des trois sites échantillonnés, k13, k16 et k36 (figure 2.9), trois « petites » carottes (réplicats) ont été prélevées dans le but d'estimer la dispersion spatiale (figure 2.13). Les « petites » carottes prélevées mesurent entre 10 et 20 cm en général.

Chaque carotte a été découpée en deux échantillons le jour ou le lendemain du prélèvement (conservation à 4 °C à l'abri de la lumière) : 0-3 cm et 3-5 cm (figure 2.15).

Chaque échantillon est ensuite placé à l'étuve à 40 °C pour séchage. L'échantillon est ensuite broyé et conditionné pour l'analyse.

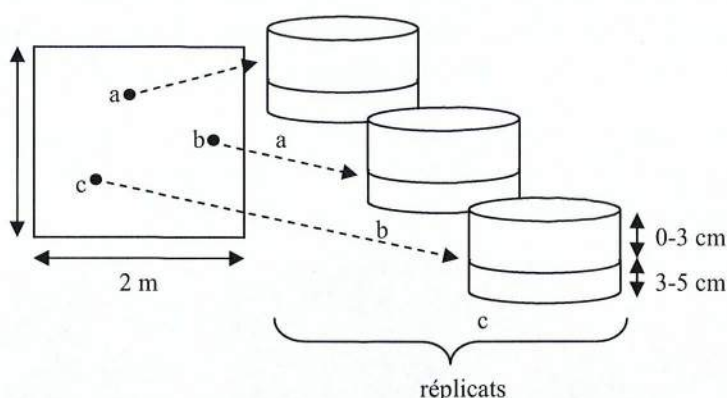


Figure 2. 13 : Représentation schématique du prélèvement d'une carotte en 3 exemplaires (ou répliquats) et du découpage de chaque carotte.

En k36, des carottes de sédiment à « petit diamètre » ont été échantillonnées entre mars et juillet 06 (cf. tableau 2.5) dans le but d'estimer la fraction potentiellement disponible des métaux (extractions sélectives) dans les sédiments de surface (cf. § 2.4.5.4).

Seule la tranche de surface (0-1 cm) est prélevée, placée à l'état humide dans des boîtes scellées à l'abri de l'oxygène (figure 2.15) et conservée à 4 °C à l'abri de la lumière.

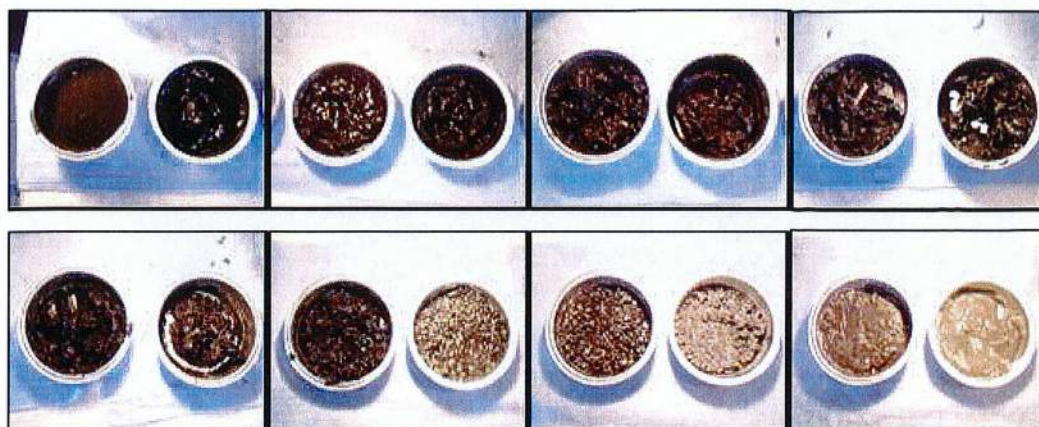


Figure 2. 14 : Echantillons de la carotte k13. De gauche à droite : tranches 0-2 cm à 30-32 cm, par tranche de 2 cm d'épaisseur.



**Figure 2. 15 : Echantillons dédiés à l'extraction de la fraction potentiellement disponible des métaux dans les sédiments. A gauche : échantillon de profondeur. A droite : échantillon de surface. La différence de coloration est nette et témoigne des conditions oxydée (en surface) et réduite (en profondeur) du milieu.**

En k36, entre décembre 2005 et août 2006 (cf. tableau 2.3), des carottes à « petit diamètre » ont été prélevées pour l'analyse des paramètres physico-chimiques à l'interface eau-sédiments, à l'aide de microélectrodes (cf. paragraphe 2.5). Au total, 7 carottes ont été prélevées.

Les carottes à « grand diamètre » ont été prélevées en k36 (figure 2.9) entre décembre 2005 et août 2006 dans le but d'étudier les métaux (Zn, Pb, Cd, Cu, Mn) présents dans les eaux interstitielles à l'aide des sondes DET (cf. § 2.5). Une carotte supplémentaire a été prélevée en août 2006 dans le but doser les métaux (Zn, Pb, Cd, Cu, Mn) et le Fe. Au total  $7 + 1 = 8$  carottes ont été prélevées.

Les carottes ont été prélevées à l'aide d'un carottier manuel à piston (clapet anti-retour). Les carottes ont une longueur de 40 cm en moyenne. Le carottier présente un diamètre de 156/160 mm (section :  $191 \text{ cm}^2$ ). Il a été spécialement conçu et réalisé pour permettre l'étude des eaux interstitielles. En effet, l'obtention de profils verticaux à haute résolution spatiale des teneurs en métaux présents dans les eaux interstitielles nécessite l'introduction d'une sonde DET dans une carotte (figure 2.27). Or l'introduction d'un DET de 4 cm de largeur dans une carotte de 57 mm de diamètre aurait provoqué des effets de bords non négligeables s'accompagnant d'une perturbation de l'interface eau-sédiment.

### **2.3.2 Matières en suspension**

Les Matières En Suspension (= MES) ont été collectées dans le cadre du suivi de terrain entre avril 05 et août 06 en k13, k16 et k36. Les matières en suspensions ont collectées dans un piège à sédiment placé dans l'eau du canal à mi-hauteur en aplomb de chaque site d'échantillonnage. Dans l'eau, le piège est lesté d'un parpaing et maintenu en position verticale à l'aide d'un flotteur (figure 2.16). Le piège reste dans l'eau du canal entre deux campagnes successives pour permettre aux matières en suspension de se déposer.

Les pièges à sédiment ont pour dimension 60 x 15 cm et présentent un rapport hauteur/surface de 4 : 1 compris dans l'intervalle permettant un échantillonnage efficace des matières en suspension (Gardner, 1980).

Les matières en suspension en transit dans l'eau se déposent dans le piège en raison de la chute de vitesse à proximité des parois du cylindre. Les matières en suspension déposées sont récupérées lors de chaque campagne au cours du suivi terrain. Le piège vidé est aussitôt replongé dans l'eau.

Les matières en suspension récupérées dans les pièges à sédiments sont mises à décanter en chambre froide durant les 15 jours suivant la campagne de prélèvement. Cette période permet aux matières en suspension de se déposer en fond de jerrycan afin de faciliter leur extraction.

Après 15 jours de décantation, l'eau sus jacente est pompée par un système de siphon. Le mélange MES-eau restant au fond est ensuite centrifugé à 2500 G pendant 30 min. Le



surnageant est évacué à l'aide d'une seringue et le culot est placé à l'étuve à 40 °C. Lorsque le matériel est sec, il est broyé puis conditionné en vue des analyses à faire.



Figure 2. 16 : Piège à sédiments. Dispositif permettant la récupération des MES.

Les matières en suspension de l'eau s'écoulant dans la station de relevage « Vallée de Scarpe » ont été collectées entre juillet 05 et août 06. Le piège à sédiment est placé dans l'eau à l'entrée de la station (figure 2.17). Le piège se compose d'une bouteille d'eau en plastique de contenance 1,5 L dont les parois sont percées de deux trous de 5cm de diamètre. Le piège est fixé en position verticale à l'aide d'une corde passant par une poutre en surface et un parpaing. Lors de chaque campagne, le piège est vidé et aussitôt remplacé dans l'eau.



Figure 2. 17 : Emplacement du piège à sédiment installé à l'entrée de la station de relevage « Vallée de Scarpe ».

Les matières en suspension ont été prélevées aussi souvent que possible et les aléas du terrain (vandalisme, détérioration du matériel) ont été les facteurs limitant la fréquence et la régularité des prélèvements.

## 2.4 Traitement et analyse des échantillons solides

### 2.4.1 Mesure de masse volumique

Dans les sédiments de surface (0-5 cm), la masse volumique a été mesurée à l'aide d'un pycnomètre à hélium. Le pycnomètre ACCUPYC 1330 a été mis à disposition au département Génie Civil de l'Ecole des Mines de Douai. Le pycnomètre détermine les masses

volumiques et les volumes réels par mesure d'une variation de pression d'hélium dans un volume calibré. Le schéma de fonctionnement du pycnomètre est décrit sur la figure 2.18.

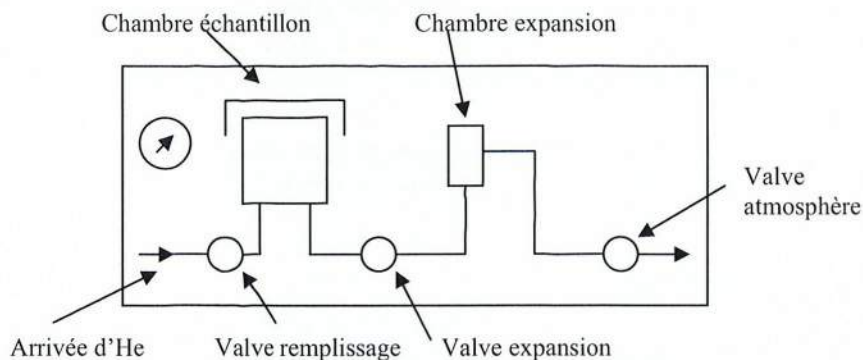


Figure 2. 18 : Schéma de fonctionnement du pycnomètre à hélium.

L'analyse permet de mesurer le volume de l'échantillon, la masse volumique est automatiquement calculée si la masse de l'échantillon a été renseignée. L'échantillon doit être exempt d'humidité. Le sédiment est préalablement séché et broyé ( $< 100 \mu\text{m}$ ). L'échantillon de sédiment est placé dans un creuset rempli aux deux tiers. Les pulvérulents sont tassés. Le creuset est mis au four de séchage, puis placé dans un dessiccateur jusqu'à refroidissement. Le creuset est ensuite placé dans la chambre du pycnomètre.

Les mesures de masse volumique ont été déterminées dans les sédiments de surface ( $\leq 5 \text{ cm}$ ) prélevés dans la Scarpe dans le cadre du suivi de terrain (entre avril 2005 et août 2006) et séchés. En moyenne, la masse volumique dans les sédiments secs est de  $2,3 \text{ g.cm}^{-3}$ .

## 2.4.2 Distribution granulométrique par granulométrie laser

Afin de déterminer la distribution granulométrique dans les sédiments et les matières en suspension, un granulomètre laser a été utilisé. Le granulomètre est mis à disposition au département du Génie Civil de l'Ecole des Mines de Douai.

### 2.4.2.1 Principe

Le granulomètre laser modélise les particules sous forme de sphères en mesurant leur diamètre théorique. Les données obtenues sont la taille des particules et leur fréquence (en pourcentage) dans un ensemble. L'appareil employé est le granulomètre laser LS 230 Beckman Coulter. La gamme d'analyse de ce modèle s'étend à des diamètres compris entre  $0,04$  et  $2000 \mu\text{m}$ . Ce granulomètre possède le dispositif optique breveté du PIDS (= Polarization Intensity Differential Scattering) pour l'analyse des particules sub-microscopiques. Pour les mesures de l'ordre du micron jusque  $2000 \mu\text{m}$ , la correction de Mie et la théorie de Fraunhofer sont appliquées.

La mesure repose sur le principe de l'interaction de la lumière laser et des particules; la réflexion, la réfraction et la diffraction provoquent une diffusion lumineuse dans toutes les directions. La géométrie des détecteurs dépend notamment de la gamme angulaire souhaitée, de la sensibilité et de la résolution. Ces détecteurs possèdent deux spécificités:

- L'espacement entre les détecteurs aux petits angles est beaucoup plus petit qu'entre les détecteurs aux grands angles, afin de conserver la même résolution sur toute la gamme ;
- La surface de chaque détecteur augmente en fonction de l'angle, afin de garder pour les petites particules une sensibilité similaire à celle des grosses particules.

### 2.4.2.2 Manipulation

Le granulomètre laser se trouve dans le département Génie Civil de l'Ecole des Mines de Douai. Les mesures granulométriques ont porté sur les sédiments bruts (humides) et les matières en suspension. Les échantillons ont été conservés dans des flacons scellés en chambre réfrigérée (4 °C) en attendant l'analyse. Chaque échantillon est ensuite mis en agitation dans une solution de défloculant (eau + hexamétophosphate de sodium) avant d'être introduit dans le granulomètre à l'aide d'une pipette (et propipette). Un défloculant est un produit chimique permettant d'éviter l'agglomération des particules solides en amas, c'est-à-dire la formation de "flocons". Le système d'acquisition couplé à l'instrument analytique permet de visualiser la distribution granulométrique pour chaque échantillon (figure 2.19).

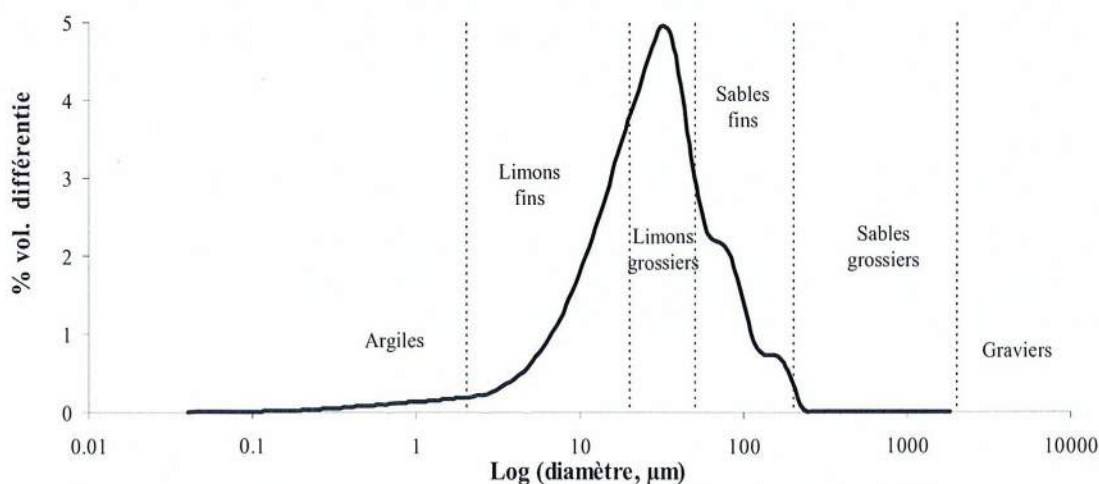


Figure 2. 19 : Exemple de la distribution granulométrique obtenue pour un échantillon de sédiment prélevé en surface en k36 dans la Scarpe.

### 2.4.2.3 Influence des ultrasons

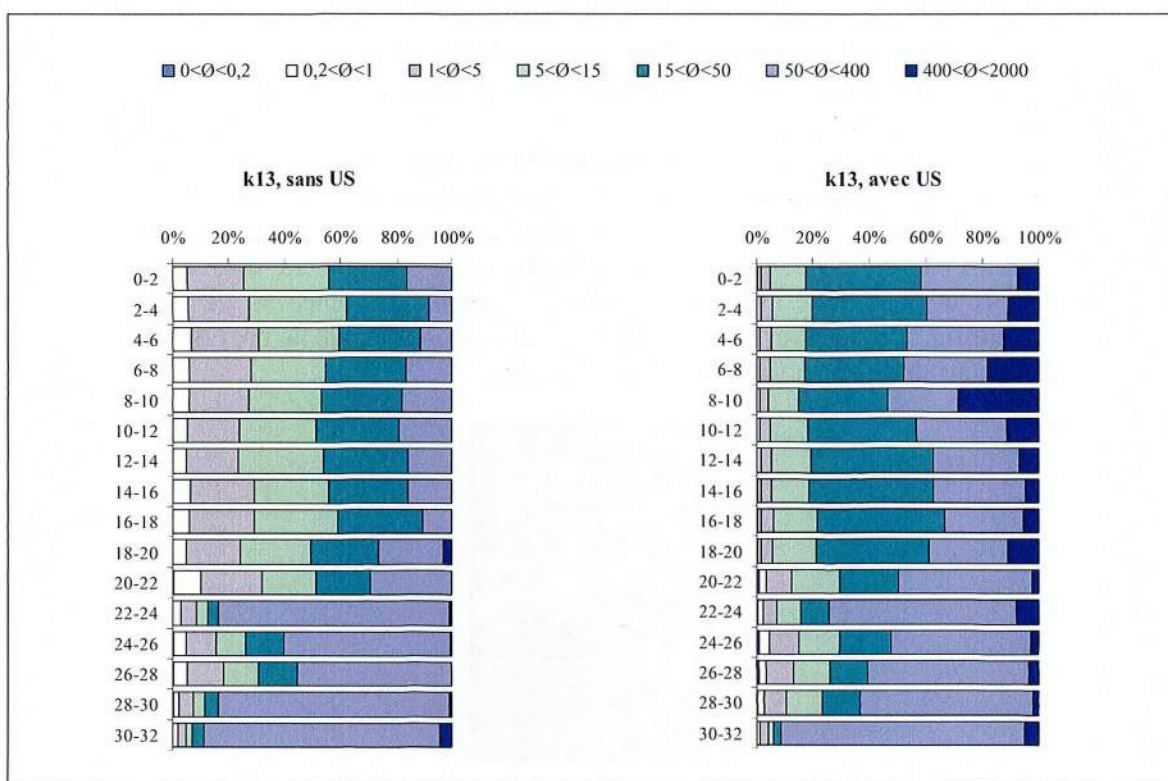
Lors d'une première étape d'optimisation des paramètres analytiques, nous avons analysé les échantillons sédimentaires d'une carotte prélevée en k13, afin de déterminer l'influence des ultrasons sur la distribution granulométrique obtenue. La figure 2.20 illustre la distribution granulométrique des particules parmi les sept familles granulométriques définies ci-dessus dans la carotte k13.

Le profil vertical de la distribution granulométrique montre une variation importante au-delà de 22 cm de profondeur dans les deux cas. A partir de 22 cm de profondeur, la

fraction des particules  $50 < \varnothing < 400 \mu\text{m}$  est largement majoritaire. Le sédiment déposé en k13 présente une hétérogénéité verticale indépendante du conditionnement des échantillons.

Dans la tranche de surface (0-18 cm), l'influence des ultrasons se manifeste par :

- le déplacement vers la gauche de la limite  $15\mu\text{m}$  : la proportion des particules  $< 15 \mu\text{m}$  diminue au profit de la fraction des particules  $> 15 \mu\text{m}$  ;
- l'apparition de la fraction des particules grossières  $> 400 \mu\text{m}$  ;
- l'augmentation de la proportion des particules de diamètre compris entre 50 et  $400 \mu\text{m}$ .



**Figure 2. 20 : Profil vertical de la distribution granulométrique des sédiments prélevés en k13. A gauche, le sédiment a été mis en suspension dans du défloculant. A droite, le sédiment a subi des UltraSons (= US) avant d'être mis en solution dans du défloculant.**

Dans la tranche de profondeur (22-32 cm), l'influence des ultrasons est moins nette. Il n'y a pas ou peu de variation.

L'action des ultrasons provoque probablement des phénomènes d'agrégation/ floculation des particules de sédiment mises en suspension dans le défloculant. Les particules fines ( $< 15 \mu\text{m}$ ) entrent en interaction et forment des agrégats/flocs de diamètre plus important ( $> 50 \mu\text{m}$ ). Ainsi, la fraction des particules grossières est enrichie dans la suspension au détriment des particules plus fines dans les sédiments de surface ( $< 18 \text{ cm}$ ).

Dans les sédiments profonds ( $> 22 \text{ cm}$ ), la fraction des particules  $> 50 \mu\text{m}$  reste majoritaire et les ultra-sons exercent une moindre influence sur la distribution granulométrique.

Pour conclure, l'analyse de la granulométrie dans tous les échantillons sédimentaires se fait à partir d'une suspension de particules sédimentaires dans du défloculant (hexamétaphosphate de sodium) et ne comporte pas de traitement aux ultrasons.

### 2.4.3 Activités des radionucléides émetteurs gamma

L'activité des traceurs radioactifs environnementaux émetteurs gamma présents dans les échantillons sédimentaires a été déterminée à l'aide d'un spectromètre gamma.

### 2.4.3.1 Principe de la spectrométrie gamma

Les détecteurs gamma mis à disposition au LSCE (Gif-sur-Yvette) sont du type coaxial ou N-planaire et composés d'un cristal de germanium hyper pur (semi-conducteur). Les détecteurs gamma fonctionnent grâce aux jonctions réalisées en dopant une seule des faces du cristal quasi-intrinsèque. Le détecteur présente un bruit de fond faible et est couplé à un analyseur multi-canaux (8 000 canaux).

Le cristal de germanium est placé dans un cryostat refroidi en permanence par un bras froid plongeant dans un bain d'azote liquide (figure 2.21). Le détecteur est polarisé en inverse par une haute tension, typiquement de 3500 V. Les électrons sont ainsi attirés par le pôle positif et les trous par le pôle négatif. Ces déplacements vont accroître une zone désertée, électriquement neutre, au niveau de la jonction. Cette zone constitue la jonction détectrice et se comporte comme une diode.

Tout rayonnement traversant la zone désertée d'une jonction « pn » polarisée en inverse va créer de nombreuses paires électrons-trous. Le passage d'un rayonnement sera révélé par l'apparition d'un courant. Le nombre de paires électrons-trous ainsi créés est directement proportionnel à l'énergie cédée par le rayonnement dans la jonction. Le courant délivré aux bornes du détecteur est traité avec une chaîne d'acquisition associée au détecteur puis le signal est amplifié. Le spectre obtenu (figure 2.22) est semblable à un histogramme du nombre de photons détectés en fonction de leur énergie.



Figure 2. 21 : Spectromètre gamma. Cristal de Ge HP apparent et cryostat.

L'énergie du rayonnement gamma est caractéristique d'un radionucléide. Les activités du  $^{234}\text{Th}$  et  $^{210}\text{Pb}$  ou encore  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  et  $^7\text{Be}$  sont directement déterminées alors que les radionucléides  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  et  $^{226}\text{Ra}$  le sont par l'intermédiaire de leurs descendants  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ . Le rendement et le bruit de fond du détecteur sont régulièrement contrôlés avec des standards internationaux de roches. Pour le  $^7\text{Be}$  (477 keV), le rendement du détecteur est obtenu par extrapolation des rendements voisins déterminés pour des standards de référence.

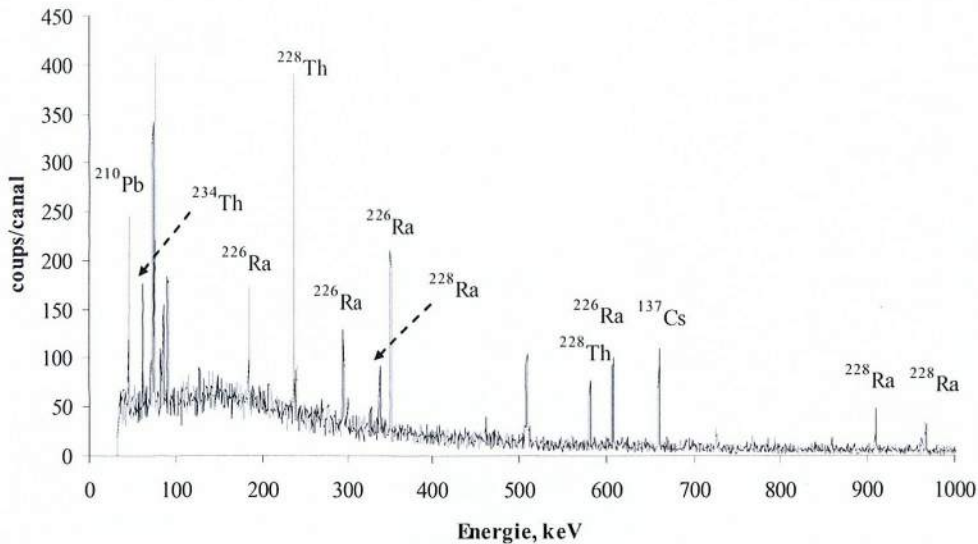


Figure 2. 22 : Exemple d'un spectre gamma obtenu pour un échantillon de sédiment prélevé dans la Scarpe.

### 2.4.3.2 Manipulation

Le rayonnement gamma étant très énergétique (keV) et pénétrant, il n'est pas nécessaire de séparer les radioéléments émetteurs gamma présents dans la matrice environnementale analysée. Cependant la matrice doit constituer une source homogène en émission de rayons gamma. Pour ce faire, les sédiments et les matières en suspension à analyser sont séchés, broyés finement et tamisés à 2 mm pour éliminer les débris (végétaux). L'échantillon est ensuite placé dans une boîte plate cylindrique de contenance 16 mL ( $\varnothing$  : 45 mm, H : 10 mm) pour les sédiments et 61 mL ( $\varnothing$  : 72 mm, H : 15 mm) pour les matières en suspension ; le poids de l'échantillon varie entre 1 et 55 g. La boîte contenant l'échantillon est ensuite placée dans le détecteur pour une durée de 24 h en moyenne de comptage.

### 2.4.4 Activités des radionucléides émetteurs alpha

Les activités (ou concentrations) des traceurs radioactifs émetteurs alpha présents dans les échantillons sédimentaires ont été déterminées par spectrométrie alpha.

#### 2.4.4.1 Principe de la spectrométrie alpha

Les détecteurs mis à disposition au LSCE sont équipés d'un cristal de silicium. Dans ce type de détecteur, le signal électrique est élaboré à partir de la collecte des électrons et des trous créés tout au long de la trajectoire de la particule détectée, la tension entre les électrodes est de l'ordre de 50 V. Afin d'éviter les pertes d'énergie des particules alpha émises, la mesure se fait dans une enceinte sous vide.

La spectrométrie alpha a permis de déterminer les activités du polonium ( $^{210}, ^{209}, ^{208}\text{Po}$ ) contenu dans les sédiments de la Scarpe. La figure 2.23 représente le type de spectre obtenu après analyse.

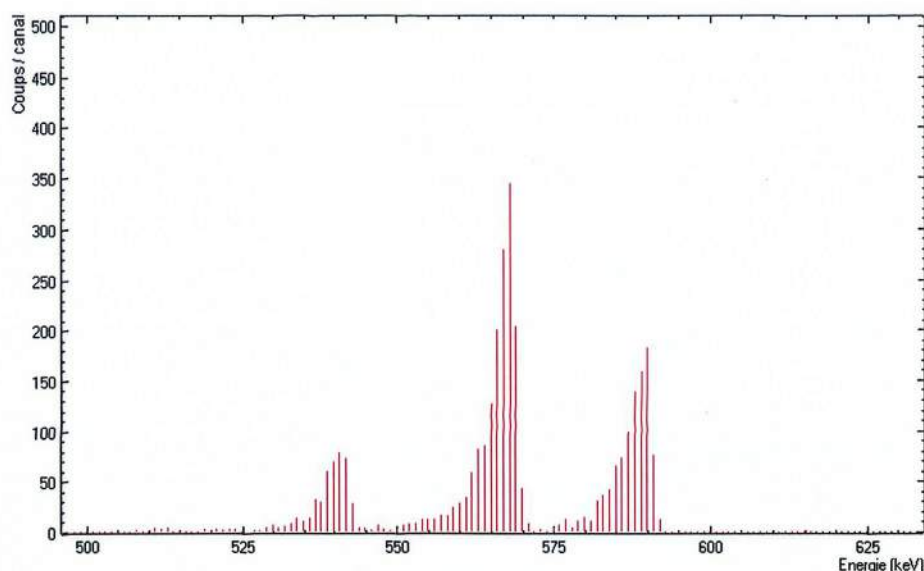


Figure 2. 23 : Exemple d'un spectre alpha obtenu pour un échantillon de sédiment prélevé dans la Scarpe.

#### 2.4.4.2 Manipulation

Les particules alpha sont des noyaux d'hélium. Chargés 2+, ils ont un très faible pouvoir pénétrant et il est nécessaire d'isoler les radioéléments émetteurs alpha à analyser. Les échantillons sédimentaires ont subi un traitement radiochimique qui a permis d'extraire le polonium (Po). Le sédiment est séché puis broyé finement. Le protocole comporte trois étapes importantes :

- ajout d'un étalon interne ( $^{209}\text{Po}$ ),
- dissolution totale de l'échantillon en milieu acide et oxydant avec de l'acide fluorhydrique, perchlorique, nitrique et chlorhydrique,
- dépôt spontané du polonium sur pastille d'argent.

L'extraction du Po est relativement longue (environ 1 semaine) et comporte une série d'attaques chimiques et d'évaporation. La pastille obtenue est ensuite introduite dans la chambre de comptage alpha pendant 1 semaine environ.

#### 2.4.5 Dosage des métaux et majeurs par ICP AES

Les éléments métalliques et majeurs contenus dans les sédiments et les matières en suspension ont été déterminés par spectroscopie d'émission atomique par plasma à coulage inductif. Le modèle de l'ICP AES (Induced Coupled Plasma Atomic Emission Spectrometry) mise à disposition au CNRSSP est Jobin-Yvon 138 Ultrace.

##### 2.4.5.1 Principe

Le principe de cet appareil d'analyse multi-élémentaire est de déterminer les concentrations en éléments contenus dans les solutions en les ionisant dans un plasma d'argon (gaz inerte). Les intensités lumineuses émises par les ions libres sont détectées pour donner des spectres de raies ioniques. L'appareil est composé de quatre parties principales : le nébuliseur, la torche à plasma, le monochromateur et le système de détection (figure 2.24)

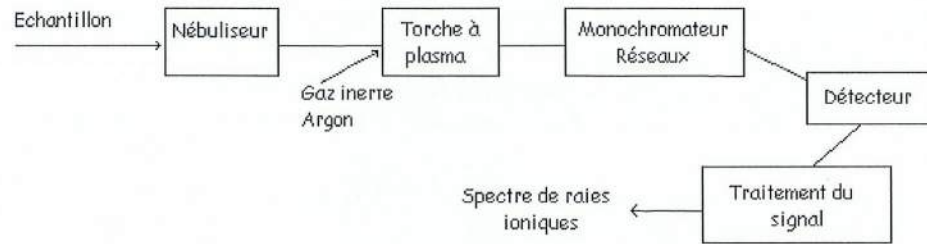


Figure 2. 24 : Schéma de principe de l'ICP AES

L'échantillon à analyser est sous forme liquide ; il est envoyé au moyen d'une pompe péristaltique vers le nébuliseur dont le rôle est de former un brouillard de fines gouttelettes. Ce nuage est pulvérisé dans la torche à plasma où sont ionisés les éléments. Les éléments passent alors à l'état d'ions libres gazeux excités et émettent un rayonnement pour revenir à leur état fondamental. C'est l'émission atomique. Ce rayonnement passe par le monochromateur formé de plusieurs réseaux qui permettent la séparation de la lumière émise en fonction des longueurs d'onde. Ces intensités lumineuses sont détectées par le détecteur (en nombre de coups) puis sont traitées pour obtenir au final des spectres de raies. Un logiciel TEVA (Thermo Elemental) associé à l'appareillage traite les spectres pour donner, après étalonnage, les concentrations en éléments.

### 2.4.5.2 Limite de détection

La limite de détection pour les différents éléments analysés (métaux et majeurs) est donnée dans le tableau 2.6.

élément	LD (mg.L <sup>-1</sup> )	LD (mg.kg <sup>-1</sup> )
Al	0,250	50
As	0,020	4
Ca	0,100	20
Cd	0,020	4
Co	0,020	4
Cr	0,020	4
Cu	0,015	3
Fe	0,075	15
K	0,100	20
Mg	0,050	10
Mn	0,015	3
Na	0,100	20
Ni	0,020	4
Pb	0,020	4
Ti	0,025	5
Zn	0,080	16

Tableau 2. 6 : Limite de détection (= LD) pour l'ICP AES, calculée pour un échantillon solide de 0,5 g.

### 2.4.5.3 Dosage de la fraction pseudo-totale

L'objectif de la minéralisation est de préparer les échantillons sédimentaires à l'analyse sur ICP AES. Il est nécessaire de mettre en solution les éléments métalliques (Cd, Co, Cr, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb, Ti) et les éléments majeurs (Al, Ca, K, Mg, Na) associés aux sédiments et MES.

La détermination des teneurs pseudo- totale en métaux et majeurs dans les échantillons sédimentaires est réalisée après une mise en solution dans l'eau régale (HCl(aq)/HNO<sub>3</sub> : 3/1



en volume). Il s'agit d'une attaque acide et oxydante à haute pression et haute température (utilisation de micro-ondes) menée à partir d'un échantillon sédimentaire (sédiments et MES) séché et finement broyé. Le protocole comporte les étapes suivantes :

- 0,5 g d'échantillon sont placés dans un réacteur en Téflon ;
- ajout d'1 mL d'eau Milli-Q afin d'humidifier le sédiment et le préparer à l'attaque acide ;
- ajout de 2 mL d'acide nitrique (HNO<sub>3</sub> Superpure, Carlo Erba) et 6 mL d'acide chlorhydrique (HCl(aq) Superpure, Carlo Erba) ;
- chaque réacteur est fermé et placé sur un carrousel de capacité 12 réacteurs dont le premier est équipé d'une sonde de pression et température.

Le carrousel est disposé dans un four à micro-ondes programmable (CEM-MARS 5) : montée en température jusqu'à 180°C pendant 15 min, palier de température (180°C, 55,9 bars) pendant 30 min, refroidissement jusqu'à température ambiante pendant 45 min environ.

Chaque échantillon est ensuite filtré sur de l'acétate de cellulose de porosité 0,45 µm et le minéralisât est récupéré dans une fiole jaugée de 100 mL complétée avec de l'eau Milli-Q.

Le carrousel se compose de 3 échantillons sédimentaires prélevés en trois aliquotes (9 réacteurs), un matériau de référence analytique (sédiment) prélevé en deux aliquotes (2 réacteurs), et un blanc constitué d'eau régale (1 réacteur).

Une étude sur l'efficacité de l'extraction des métaux contenus dans les sédiments de la Scarpe a été menée au LSCE (non présentée ici). Différents protocoles ont été testés avec différents réactifs utilisés pour la mise en solution des sédiments. Les résultats montrent que l'absence d'une étape de dissolution des fractions siliceuses dans le protocole du CNRSSP entraîne un déficit de 15-20 % sur les éléments Co, Cr et Ni et un déficit de 10 % au maximum pour le Cu, le Mn et le Pb.

Le protocole mis en place au CNRSSP peut aussi être discuté au vu des résultats obtenus pour certains éléments mesurés dans les sédiments de la Scarpe : c'est le cas du potassium (K). La concentration en potassium a été mesurée par ICP AES après mise en solution et, par spectrométrie gamma sans traitement destructif de l'échantillon. La figure 2.25 présente les concentrations obtenues selon les deux méthodes analytiques dans l'ensemble des échantillons sédimentaires prélevés dans la Scarpe (sédiments et matières en suspension).

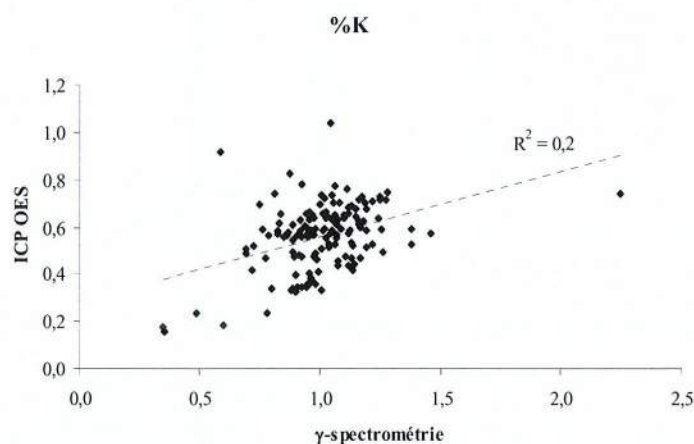


Figure 2. 25 : Comparaison ICP AES et spectrométrie gamma.

Le graphe ne montre pas de relation linéaire directe entre les concentrations du potassium mesurées en spectrométrie gamma et avec l'ICP AES. Il existe un biais analytique qui est attribué au protocole du CNRSSP car la mise en solution des fractions sédimentaires les plus réfractaires (fraction siliceuse, minéraux détritiques argileux) n'est pas totale.

Pour conclure, bien que l'échantillon ne soit pas totalement dissous avec le protocole du CNRSSP, l'attaque à l'eau régale permet une bonne estimation des concentrations en éléments chimiques d'origine anthropique (dont les polluants) mais pas les éléments associés aux fractions plus réfractaires dans les sédiments. Le protocole de mise en solution du CNRSSP présente en outre l'avantage d'être plus simple et moins contraignant (pour des raisons de sécurité) qu'une mise en solution totale.

#### **2.4.5.4 Dosage de la fraction réactive des métaux**

L'attaque de la fraction réactive du sédiment est une attaque acide plus ménagée. Cette minéralisation partielle permet d'extraire les métaux potentiellement disponibles associés au sédiment, c'est-à-dire la fraction des métaux susceptibles de passer en solution (remobilisation) à la suite de la variation des paramètres biogéochimiques du milieu (lors d'une remise en suspension par exemple) (Di Toro *et al.*, 1990 ; Leventhal et Taylor, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1992 ; Cooper et Morse, 1998 ; Simpson *et al.*, 2000). Cette fraction contient les métaux associés aux monosulfures de fer, à certains hydroxydes de fer et manganèse et aux carbonates (Huerta-Diaz et Morse, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1992), et éventuellement liés à la matière organique dans le cas de sédiments riches en matière organique (Huerta-Diaz *et al.*, 1993).

La fraction réactive des sédiments a été obtenue à l'issue d'une extraction sélective sur du sédiment brut, à température ambiante, avec de l'HCl (aq) 1 M (Leventhal et Taylor, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1990 ; Cooper et Morse, 1998). Le protocole est calqué sur celui de Billon (2001) : 0,5 g de sédiment humide prélevés en trois exemplaires pour chaque échantillon ont été placés dans des tubes à centrifuger en polycarbonate dans lesquels sont introduits 15 mL d'HCl (aq) 1 M (HCl(aq) Superpure, Carlo Erba). Le mélange est soumis à agitation pendant 24 h à température ambiante. Le mélange est ensuite centrifugé pendant 10 min à 10 000 G. Deux fractions ont été obtenues :

- le surnageant a été prélevé à la seringue puis filtré à 0,45 µm sur acétate de cellulose puis analysé à l'ICP AES ;
- le résidu solide de sédiment a été placé à l'étuve à 40 °C pour séchage, puis a été mis en solution dans l'eau régale afin d'analyser la fraction résiduelle des métaux à l'ICP AES.

#### **2.4.6 Mesure des teneurs en C, N, S**

Les sédiments ont été analysés au CNRSSP et par l'INRA (= Institut National de la Recherche en Agronomie) d'Arras pour déterminer la teneur en carbone organique total. Les sédiments ont été envoyés à l'INRA pour le dosage du soufre et de l'azote totaux. Les matières en suspension ont été analysées au CNRSSP pour le dosage du carbone organique total. Tous les échantillons sédimentaires ont été séchés, broyés et tamisés à 100 µm.

##### **2.4.6.1 Dosage du carbone organique total**

Le Carbone Total (= CT) et le Carbone Inorganique Total (= CIT) ont été déterminés à l'aide d'un analyseur de carbone : le Shimadzu Total Organic Carbone, modèle TOC/ASI avec un module SSM-5 000 A. Le Carbone Organique Total (= COT) est obtenu par

différence :  $COT = CT - CI$ . La méthode est basée sur l'oxydation du CT présent en dioxyde de carbone ( $CO_2$ ). Cette oxydation se fait au cours de la combustion de l'échantillon broyé. La combustion se fait à :

- 900 °C pour le CT en présence d'un catalyseur d'oxydation mixte à base de cobalt et d'alumine ;
- 200 °C pour le CI après mise en solution dans l'acide phosphorique 1 M (décarbonatation).

Le  $CO_2$  produit est entraîné par un flux d'oxygène pur, est refroidi avant de passer à travers un piège halogène, puis est analysé dans une cellule de détection à Infra-Rouge non dispersive. La cellule génère un maximum d'absorption dont la surface est proportionnelle à la concentration en carbone dans l'échantillon (après étalonnage). Les résultats sont exprimés en pourcentage de carbone. Les limites de détection pour le CT et le CI sont de l'ordre de 0,1 %.

Tous les échantillons sédimentaires n'ont pas été analysés au CNRSSP. Les sédiments prélevés dans la Scarpe en k06, k09, k13 et k16 présentent un caractère hydrophobe incompatible avec la mise en solution dans l'acide phosphorique. L'analyse de ces échantillons problématiques a été réalisée par l'INRA d'Arras. A l'INRA, le dosage du carbone organique total est réalisé selon la norme NF ISO 10694. La méthode repose sur la transformation en dioxyde de carbone de la totalité du carbone présent dans l'échantillon. La réaction s'effectue en portant ce dernier à environ 1000°C en présence d'oxygène. Après séparation chromatographique, la quantité de gaz carbonique formée est quantifiée au moyen d'un catharomètre (conductibilité thermique).

#### **2.4.6.2 Dosage de l'azote**

L'échantillon est mis en suspension dans l'eau dans un rapport de dilution connu. Un volume connu de la suspension est injecté dans un analyseur muni d'un four conduisant à la combustion de la matière organique et la volatilisation des formes minérales de l'azote. L'azote total est déterminé par chimiluminescence après transformation des composés azotés formés en protoxyde d'azote.

#### **2.4.6.3 Dosage du soufre total**

A l'INRA, le soufre total est dosé par combustion sèche. L'échantillon est soumis à combustion à une température voisine de 1 400 °C en présence d'un catalyseur d'oxydation et d'oxygène. Le soufre lié à la fraction organique ou minéral (sulfates ou sulfures) est transformé en dioxyde (dioxyde de soufre). La quantité formée est quantifiée au moyen d'un détecteur infra-rouge.

### **2.5 Analyse des eaux interstitielles**

#### **2.5.1 Echantillonnage des métaux contenus dans les eaux interstitielles : Technique DET**

La technique des DET (= Diffusive Equilibrium in Thin films) a été développée à l'origine pour mesurer les concentrations du Fe et du Mn sur une échelle millimétrique (Davison *et al.*, 1991) dans les eaux interstitielles des sédiments. Depuis, les DET ont été

utilisés afin de mesurer les concentrations en différents métaux traces dans les sédiments (Docekalova *et al.*, 2002 ; Tankere-Muller *et al.*, 2007). La technique des DET est basée sur l'établissement d'un équilibre par diffusion entre les solutés contenus dans les eaux porales et un hydrogel contenant 95 % d'eau (Davison *et al.*, 1990). La technique basée sur la diffusion des espèces à travers un gel est similaire à la dialyse (Davison et Zhang, 1994). Le recours à l'utilisation de la technique DET afin d'échantillonner les concentrations en métaux dissous dans les eaux interstitielles repose sur deux avantages (Harper *et al.*, 1997) :

- le temps nécessaire à l'établissement de l'état d'équilibre est plus court que dans le cas des « peepers » classiques ;
- les profils verticaux des concentrations présentent une haute résolution spatiale (échelle millimétrique).

La méthode d'échantillonnage par les DET nécessite d'être couplée à une technique d'analyse performante telle que l'ICP MS.

Les résultats attendus sont la mise en évidence de gradients de concentrations des métaux dissous à l'interface eau-sédiment (diffusion), à partir desquels les flux de métaux vers le sédiment seront calculés.

### 2.5.1.1 Principe

La méthode du DET est basée sur l'établissement d'un équilibre entre un gel et une solution aqueuse (eau interstitielle) (figure 2.26). L'équilibre est obtenu par diffusion des solutés à travers le gel et s'établit après quelques heures.

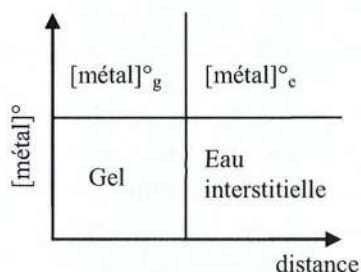


Figure 2. 26 : Equilibre de la concentration en métal dissous entre l'eau interstitielle et le gel.

Une sonde DET se compose d'un support rectangulaire en plastique dans lequel des compartiments ont été creusés afin d'accueillir les pièces de gel. Une sonde DET a pour dimension 24 x 4 x 0,5 cm (figure 2.27) et contient soixante-quinze compartiments de dimension 0,1 x 0,1 x 1,8 cm. Chaque compartiment peut contenir 20-25  $\mu$ L de gel. Le gel utilisé est composé d'eau et d'agarose. Chaque pièce de gel est isolée de ses voisines, ce qui évite les phénomènes de diffusion verticale entre les pièces de gel et permet par conséquent d'obtenir des profils verticaux avec une haute résolution spatiale (mm).

### 2.5.1.2 Manipulation

La sonde DET peut être introduite directement dans le sédiment (Fones *et al.*, 1998 ; Shuttleworth *et al.*, 1999 ; Gabelle, 2006) ou dans une carotte de sédiment (Davison *et al.*, 1994 ; Docekalova *et al.*, 2002 ; Leermakers *et al.*, 2005 ; Gao *et al.*, 2006 ; Tankere-Muller *et al.*, 2007). Pour des raisons pratiques, lors de cette étude, les sondes DET ont été introduites dans une carotte de sédiment à « grand diamètre » prélevée sur le terrain et ramenée au laboratoire.

La sonde DET est positionnée de part et d'autre de l'interface eau-sédiment pendant 24 h dans une carotte de sédiment qui est conservée à température ambiante et à l'abri de la lumière. Le temps nécessaire à l'établissement de l'équilibre est en accord avec les études antérieures similaires (Leermarkers *et al.*, 2005 ; Gao *et al.*, 2006) et les recommandations du fournisseur (Davison *et al.*, 2000 ; www.DGTRResearch.com).

La figure 2.27 représente un DET avant et après introduction dans le sédiment.



Figure 2. 27 : Sonde DET avant (à gauche) et après insertion (à droite) dans le sédiment prélevé en k36.

La préparation et le traitement de la sonde DET sont similaires au mode opératoire de Davison *et al.* (2000), et calqués sur celui de Gabelle (2006) dans la pratique.

Le gel est réalisé à partir d'un mélange d'eau Milli-Q et d'agarose à 1,5 % en masse (BIOFINEX). L'eau est portée à 80 °C dans un bain-marie avant d'introduire le gel en poudre. Lorsque le mélange est homogène, il est refroidi. A température ambiante, le gel polymérise et se solidifie. Le gel obtenu est conservé à 4 °C. Le gel est réchauffé à 80 °C au bain marie pour faciliter son utilisation. A 80 °C, le gel se liquéfie et il est possible de remplir les compartiments d'une sonde DET à l'aide d'une pipette (et propipette). Lorsque tous les compartiments sont remplis de gel (sans jonction entre les différents compartiments), un filtre en acétate de cellulose de porosité 0,45  $\mu\text{m}$  (BIOBOND) est fixé au support pour protéger le gel de l'abrasion du sédiment lors de son implantation. La sonde est ensuite plongée dans un récipient contenant de l'eau Milli-Q soumise à un bullage d'azote pendant 24 h (minimum) afin de chasser l'oxygène dissous présent dans le gel qui pourrait oxyder les espèces réduites présentes dans le sédiment. Après dégazage, la sonde est rapidement introduite dans le sédiment en évitant au maximum l'exposition à l'air (figure 2.27). Une fois la sonde retirée du sédiment, le filtre est ôté et chaque pièce de gel est récupérée à l'aide d'un embout de pipette puis placée dans un tube à centrifuger (1,5 mL). Chaque pièce de gel est pesée avant d'introduire 1 mL d'acide nitrique 1 M ( $\text{HNO}_3$  Ultra Pur, Merck) dans le tube (éluant). Les solutés contenus dans le gel migrent dans la solution acide et l'élué entraîne une dilution d'un facteur 40 environ. La détermination des faibles concentrations en métaux nécessite l'utilisation d'un instrument analytique performant.

### 2.5.2 Dosage des métaux

L'ICP MS (= Induced Coupled Plasma Mass Spectrometry) a été utilisée dans le but de quantifier les concentrations en métaux dans les eaux interstitielles. La technique DET a permis d'échantillonner les métaux contenus dans les eaux interstitielles des sédiments sous forme de pièces de gel. Les concentrations en métaux étant relativement faibles dans les eaux interstitielles et les métaux élués dans l'acide nitrique 1 M ayant déjà subi une dilution d'un facteur 40, l'ICP MS constitue une technique sophistiquée capable de mesurer les concentrations à de faibles valeurs (de l'ordre du  $\text{ng.L}^{-1}$ ).

L'ICP MS mise à disposition se situe dans le département Chimie-Environnement de l'Ecole des Mines de Douai et a permis de déterminer les concentrations en métaux (excepté le Fe).

Les concentrations en Zn, Pb, Cd, Cu et Mn ont été déterminées dans les carottes « grand diamètre » prélevées en k36 entre décembre 2005 et août 2006.

Les concentrations en Zn, Pb, Cd, Cu, Mn et Fe ont été analysées dans une carotte supplémentaire prélevée en k36 en août 2006. Pour cette carotte, les échantillons de gel de la sonde DET ont été séparés : en fonction de la profondeur, un échantillon de gel sur deux a été analysé à l'ICP MS pour le dosage du Zn, Pb, Cd, Cu, et Mn, et l'autre a été envoyé au BRGM pour le dosage du Fe par absorption atomique.

### 2.5.2.1 Principe de l'ICP MS

Cette technique multi élémentaire permet de déterminer les concentrations en éléments à l'état de traces et d'ultra-traces. La concentration en élément ne doit pas excéder les  $50 \mu\text{g.L}^{-1}$  sous peine de détériorer le détecteur. Le schéma de fonctionnement de l'ICP MS est exposé sur la figure 2.28.

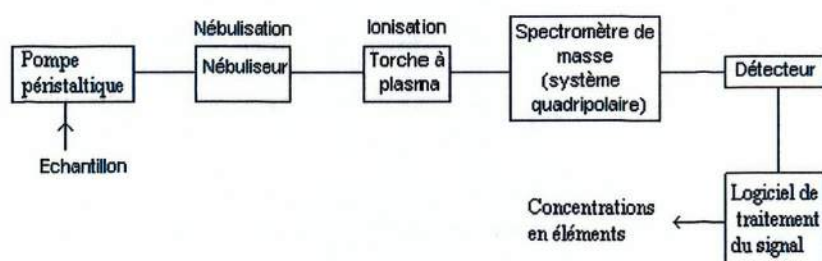


Figure 2. 28 : Schéma de fonctionnement de l'ICP MS.

La solution contenant les éléments constituant l'échantillon est envoyée dans le nébuliseur à l'aide d'une pompe péristaltique. Le nuage de gouttelettes formé est envoyé dans la torche à plasma générée par de l'argon. Les éléments de l'échantillon sont alors atomisés puis ionisés en cations monovalents. Les ions sont focalisés et amenés au quadripôle qui va séparer par un champ électromagnétique les éléments en fonction de leur rapport  $\frac{\text{masse atomique}}{\text{charge}}$ .

L'ensemble du système est relié par informatique (logiciel ELAN, Perkin Elmer) et restitue le résultat analytique sous forme d'intensité (nombre de coups par seconde). Après étalonnage de l'appareil, les résultats obtenus sont sous forme de concentrations, en  $\text{ng.L}^{-1}$ .

### 2.5.2.2 Limite de quantification et reproductibilité

La limite de détection de l'ICP MS a été déterminée à partir de deux types de blancs :

- les blancs d'analyse ou de laboratoire correspondent à la matrice d'éluion des pièces de gel d'une sonde DET, c'est-à-dire une solution d'acide nitrique 1 M. Les blancs d'analyse sont réalisés exclusivement dans le laboratoire d'analyse en conditions contrôlées et à l'abri des sources de contamination ;
- les blancs de terrain correspondent aux pièces de gel d'une sonde DET préparée dans les mêmes conditions que la sonde DET introduite dans le sédiment. Les blancs de terrain sont exposés aux mêmes sources de contamination environnementale auxquelles sont soumises les sondes DET introduites dans le sédiment.

Le tableau 2.7 présente la limite de quantification analytique et les concentrations en métaux obtenues dans les blancs terrains. La Limite de Détection (= LD) de l'ICP MS a été

déterminée à partir de l'analyse des blancs de laboratoire (analyse). La Limite de Quantification (= LQ) s'écrit :

$LQ = 10LD$  avec  $LD = 3\sigma + \frac{\sum C_i}{n}$ , où  $\frac{\sum C_i}{n}$  désigne la moyenne des concentrations  $C_i$  d'un soluté  $i$  dans  $n$  échantillons et  $\sigma$  l'écart-type sur l'ensemble des  $n$  valeurs de concentrations.

Elément	Isotope	Concentrations, $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$												
		Limite de Quantification							moyenne		Blancs terrain			
As	75	0.02	0.3	0.1	0.1	0.1	0	0.2	0.1	0.04	0.004	0.01	0.01	0.01
Ni	58	1	1	3	4	2	1	1	2	0.1	0.2	0.4	2.4	0.8
Ni	60	0.3	1	4	0.1	3	0.3	1	1	0.1	0.2	0	2.3	0.8
<b>Cu</b>	<b>65</b>	0.5	1	3	2	1	1	3	2	0.2	0.1	0.1	0.6	<b>0.3</b>
Cu	63	0.5	1	3	2	1	1	3	2	0.3	0.1	0.1	0.7	0.3
Cr	52	0.7	1	3	10	0.5	1	1	2	0.3	0.2	0.3	0.2	0.3
Cr	53	0.4	0.9	3.0	0.9	0.3	0	1	0.9	0.4	0.02	0.0	0.0215	0.1
Zn	64	4	24	4	4	23	9	23	13	5	16	16	6	11
<b>Zn</b>	<b>66</b>	3	24	4	4	23	8	24	<b>13</b>	5	16	17	6	<b>11</b>
Zn	67	4	24	7	5	24	7	24	13	5	17	17	6	11
<b>Cd</b>	<b>111</b>	0.05	0.2	0.02	0.1	0.3	0.2	0.2	<b>0.1</b>	0.02	0.01	0.02	0.1	<b>0.03</b>
Cd	114	0.05	0.2	0.02	0.1	0.3	0.2	0.2	0.2	0.02	0.01	0.02	0.1	0.03
Pb	206	0.09	2	2	0.1	0.2	0.1	2	0.9	0.26	0.1	0.1	0.1	0.1
<b>Pb</b>	<b>207</b>	0.1	2	2	0.2	0.2	0.1	2	<b>0.9</b>	0.2	0.1	0.1	0.1	<b>0.1</b>
Pb	208	0.1	2	2	0.2	0.2	0.1	2	0.9	0.26	0.1	0.1	0.1	0.1
<b>Mn</b>	<b>55</b>	0.3	2	1	0.3	0.4	1	2	<b>1</b>	0.1	0.1	0.1	0.1	<b>0.1</b>
Al	27	38	61	97	39	27	27	59	50	4	4	2	3	3

Tableau 2. 7 : Limite de Quantification de l'ICP MS et analyse des blancs de terrain.

En moyenne, les concentrations en métaux dans les blancs terrains restent inférieures à la limite de détection analytique.

La principale difficulté dans l'analyse des métaux traces dans les matrices naturelles est liée à la contamination. Elle peut être aléatoire et ponctuelle. Dans les blancs terrains analysés, il n'y a pas de contamination extérieure mise en évidence.

La quantité d'échantillon disponible pour l'analyse des métaux dans les eaux interstitielles ne permet pas de réaliser plusieurs mesures d'un même échantillon. En effet, lorsque les métaux contenus dans le gel d'agarose sont élués dans 1 mL d'acide, le facteur de dilution est de 40 environ. Après dilution, le volume prêt pour l'analyse est de 2 mL après dilution (0,9 de solution mère dans 1,1 mL d'eau Milli-Q). Les paramètres analytiques de l'ICP MS ont été optimisés afin d'analyser un maximum de métaux dans un minimum de volume. En particulier, l'ICP MS a été équipée d'un nébuliseur de 400  $\mu\text{L}$ .

L'erreur sur les concentrations mesurées a été déterminée à partir de l'analyse des solutions de contrôle de la qualité (standard de référence).

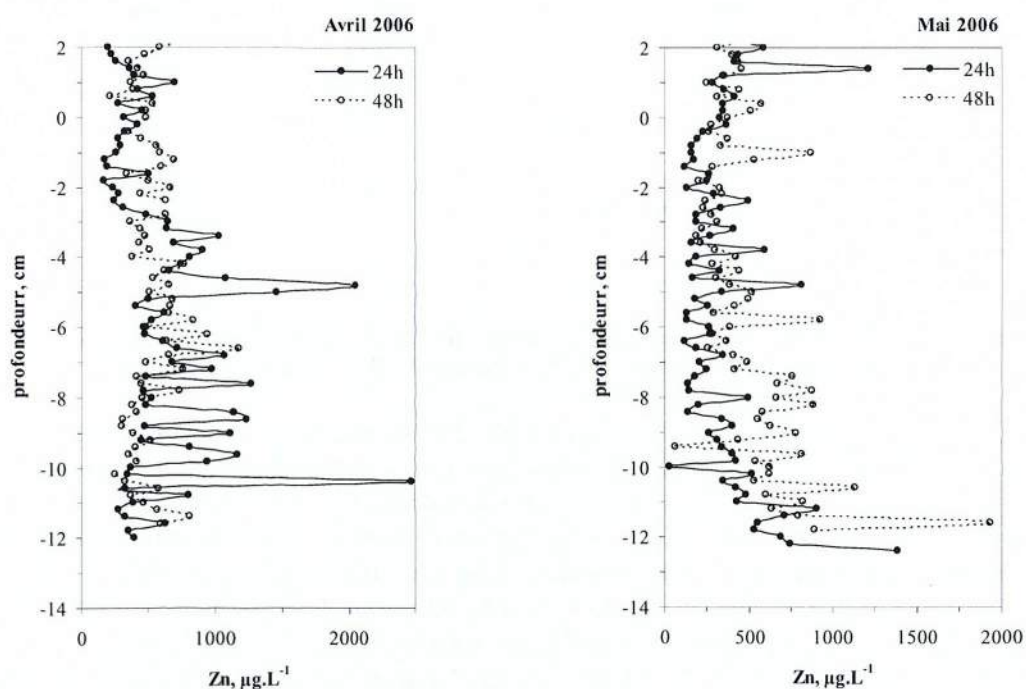
La justesse de l'ICP MS est inférieure à 0,1  $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$  pour tous les métaux analysés. La reproductibilité sur l'ensemble des échantillons ( $n=66$ ) présente une dispersion de 3 % pour le Cu, le Cd et le Pb, et 4 % pour le Zn et le Mn.

### 2.5.2.3 Influence du temps de pose

Le temps nécessaire à l'équilibration dépend des caractéristiques du DET (dimension de la sonde, porosité et tortuosité du gel) et du coefficient de diffusion des espèces dissoutes (le temps d'équilibration est inversement proportionnel au coefficient de diffusion) (Harper *et al.*, 1997 ; Docekalova *et al.*, 2002). Le temps d'équilibration dépend également des paramètres environnementaux dans les sédiments : bioturbation, bioirrigation (Davison *et al.*, 2000).

Nous avons testé l'influence de la période de temps pendant laquelle une sonde DET est introduite dans le sédiment sur les concentrations en métaux dans les eaux interstitielles. Sont présentés les cas du zinc et du manganèse : le Mn est une espèce sensible aux variations du potentiel redox dans les eaux interstitielles, tandis que le Zn représente un des contaminants du système aquatique. Les observations faites pour le Zn sont similaires à celles des autres contaminants : Pb, Cd et Cu.

Lors de cette expérience, deux sondes DET ont été introduites dans une carotte de sédiment prélevée dans la Scarpe en k36 lors de deux campagnes d'échantillonnage sur le terrain : en avril et mai 2006. La première sonde DET a été retirée après 24 h et la deuxième après 48 h de pose. La figure 2.29 présente les profils verticaux du Zn et la figure 2.30 présente ceux du Mn.



**Figure 2. 29 : Profils verticaux des teneurs en Zn dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en avril et mai 2006. Après 24 et 48 h de pose dans le sédiment.**

En avril, les profils verticaux du Zn obtenu après 24 h de pose montrent des variations importantes de la concentration en fonction de la profondeur alors qu'elles sont plus faibles et moins fréquentes après 48 h de pose. Les perturbations enregistrées par le DET après 24 h de pose se sont manifestement atténuées après 48 h. En mai, les deux profils montrent des perturbations locales en fonction de la profondeur. Cependant, les remobilisations locales du Zn n'apparaissent pas à la même profondeur après 24 h et 48 h de pose. Le Zn est localement remobilisé en raison probablement de la déstabilisation des phases auxquelles il est associé (e.g. sulfures métalliques). En profondeur, l'évolution des concentrations entraîne un décalage vers les concentrations plus grandes.



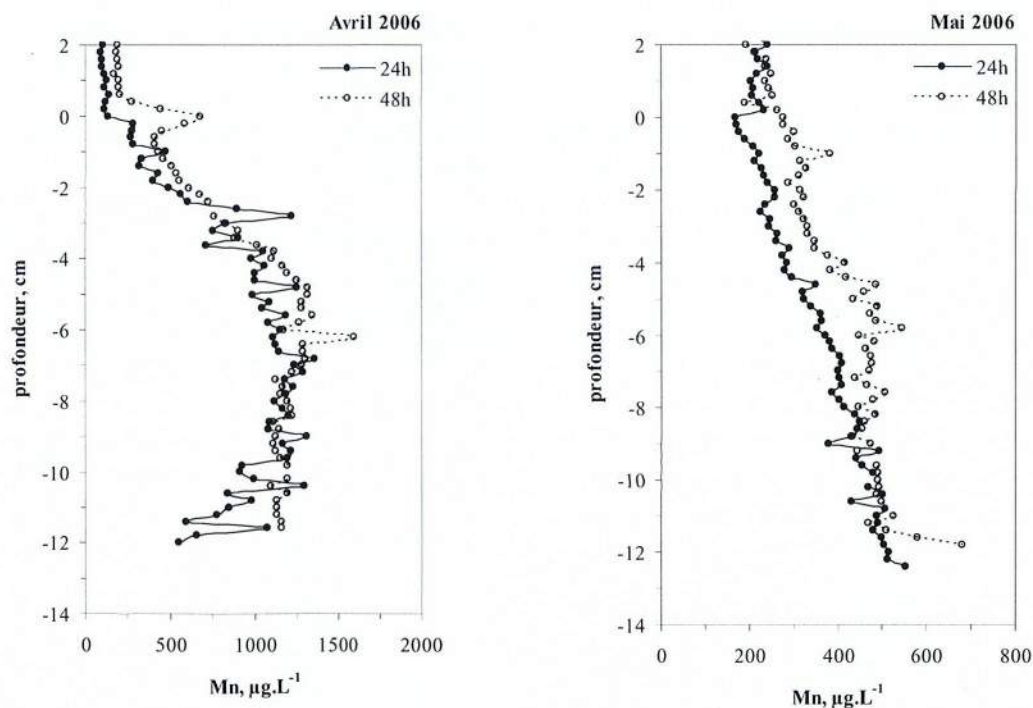


Figure 2. 30 : Profils verticaux des teneurs en Mn dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en avril et mai 2006. Après 24 et 48 heures de pose dans le sédiment.

En mai et en avril, l'évolution des concentrations du Mn avec la profondeur présente la même tendance, c'est-à-dire une augmentation du Mn dissous en profondeur. Les profils de Mn montrent une remobilisation du Mn associée à la réduction des oxy-hydroxydes de Mn dans les sédiments en milieu réduit. En avril, à travers l'interface eau-sédiment, les deux profils mettent en évidence un gradient de concentrations. Le profil obtenu après 48 h montre un pic de remobilisation du Mn dont la variation de concentration est plus importante qu'après 24 h. En mai, le profil vertical est déplacé vers les concentrations en Mn plus élevées.

Lorsque le temps de pose varie, les valeurs des concentrations restent du même ordre de grandeur. Ce résultat est en accord avec la littérature (Docekalova *et al.*, 2005). Le temps de pose pourrait exercer une influence sur l'évolution des concentrations en profondeur se manifestant par un déplacement du profil vers les concentrations plus élevées. Dans ce cas, le système n'est peut-être pas parvenu à saturation (état d'équilibre) après 24 h de pose. Cependant, les concentrations en Zn et Mn dans les sédiments sont contrôlées par des processus diagénétiques pilotés par des réactions d'oxydo-réduction dans lesquelles l'activité microbienne joue un rôle important. Par conséquent, la différence entre les deux profils obtenus dans une même carotte pourrait également illustrer l'évolution de l'activité microbienne au cours du temps. Enfin, l'hétérogénéité de la matrice sédimentaire ne peut être exclue d'autant plus qu'elle peut exister à l'échelle millimétrique (Fones *et al.*, 1998).

Pour conclure, le temps de pose de la sonde DET dans les sédiments prélevés en k36 entre décembre 2005 et août 2006 est fixé à 24 h, en considérant que le système a atteint l'équilibre chimique.

### 2.5.2.4 Comparaison entre deux méthodes d'échantillonnage

Les concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans l'eau de surface de la Scarpe ont été obtenues selon deux méthodes d'échantillonnage des métaux :

- à l'aide des DET introduits dans une carotte de sédiment,
- par prélèvement direct de l'eau dans la rivière (pompage, filtration de la fraction  $\emptyset \leq 0,45 \mu\text{m}$ , acidification à l' $\text{HNO}_3$ ).

Le tableau 2.8 permet de comparer les concentrations obtenues avec ces deux méthodes d'échantillonnage. Les concentrations obtenues à l'aide des DET correspondent à la moyenne des concentrations mesurées dans l'eau sus-jacente à la carotte de sédiment. L'erreur associée correspond à la dispersion des concentrations dans l'eau. Les concentrations mesurées par prélèvement direct dans l'eau du canal sont issues d'une étude menée en parallèle dans le cadre du projet MESDERIC (données C. Alary, communication personnelle).

date	Zn ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )		Pb ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )		Cd ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )		Cu ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )	
	eau du canal	eau de surface carotte	eau du canal	eau de surface carotte	eau du canal	eau de surface carotte	eau du canal	eau de surface carotte
déc.-05	260 $\pm$ 1	274 $\pm$ 56	0.63 $\pm$ 0.03	123 $\pm$ 30	1.87 $\pm$ 0.03	5 $\pm$ 2	3.5 $\pm$ 0.4	108 $\pm$ 89
janv.-06	26 $\pm$ 1	369 $\pm$ 166	2.2 $\pm$ 0.9	33 $\pm$ 18	0.3 $\pm$ 0.2	3 $\pm$ 2	3 $\pm$ 2	27 $\pm$ 21
mars-06	30.0 $\pm$ 0.8	367 $\pm$ 98	1.9 $\pm$ 0.4	16 $\pm$ 12	0.18 $\pm$ 0.01	1.4 $\pm$ 0.6	3.37 $\pm$ 0.08	18 $\pm$ 9
avr.-06	22.0 $\pm$ 0.7	361 $\pm$ 151	1.5 $\pm$ 0.2	26 $\pm$ 33	0.3 $\pm$ 0.1	2 $\pm$ 2	<2	8 $\pm$ 6
mai-06	51.3 $\pm$ 0.5	452 $\pm$ 241	1.0 $\pm$ 0.2	17 $\pm$ 7	0.2 $\pm$ 0.1	2 $\pm$ 2	<2	6 $\pm$ 4
juil.-06	15.0 $\pm$ 0.4	588 $\pm$ 169	5 $\pm$ 6	21 $\pm$ 5	0.15 $\pm$ 0.08	3 $\pm$ 1	2 $\pm$ 1	26 $\pm$ 27

**Tableau 2.8 : Comparaison entre les concentrations de Zn, Pb, Cd et Cu mesurées dans l'eau selon deux méthodes d'échantillonnage des métaux.**

Les résultats montrent que les concentrations de Zn, Pb, Cd et Cu mesurées à l'aide des DET sont systématiquement plus élevées (excepté pour le Zn en décembre 2005) que celles mesurées à l'aide d'une autre méthode de prélèvement. Le facteur de variation maximal vaut 28 pour le Zn (juillet), 4 pour le Pb (juillet), 9 pour le Cd (avril) et 31 pour le Cu (décembre).

Les facteurs responsables de l'enrichissement en Zn mesuré dans l'eau sus-jacente par l'intermédiaire des DET peuvent être de natures différentes :

- manifestation d'un biais analytique liée à la méthode d'échantillonnage ;
- existence d'un phénomène naturel à proximité de l'interface eau-sédiment.

L'enrichissement des concentrations en métaux mesurées dans les eaux interstitielles à l'aide de DET par rapport à d'autres méthodes de prélèvements des métaux dans les eaux interstitielles (DGT, centrifugation) a été observé par d'autres auteurs (Gabelle, 2006), notamment pour le Fe (Leermakers *et al.*, 2005). L'enrichissement des concentrations en métaux observé dans les DET peut être lié à la précipitation d'oxy-hydroxydes de Fe colloïdal à l'intérieur des gels suivie par l'établissement d'un nouvel équilibre entre le gel et l'eau porale (Davison *et al.*, 2000).

Lors de l'introduction des DET dans les sédiments réduits, certaines erreurs systématiques peuvent se manifester si les sondes présentent des traces d'oxygène. Le Fe, et dans une moindre mesure le Mn, peuvent s'oxyder en oxy-hydroxydes insolubles présents sous forme de colloïdes à l'intérieur de la sonde. Ces colloïdes vont s'ajouter aux solutés dont les concentrations sont à l'équilibre. Il est probable que ces colloïdes se dissolvent lors de l'élution des gels en milieu acide. Par conséquent, les concentrations en Fe et Mn seraient surestimées, de même que pour toute espèce adsorbée à la surface des oxy-hydroxydes, tels que les contaminants métalliques (*e.g.* Zn, Pb) (Davison *et al.*, 2000).

Bien que les sondes DET aient été conditionnées sous atmosphère inerte selon les recommandations de Davison *et al.* (2000), l'oxygène est capable de diffuser à partir du support plastique des DET (Carignan *et al.*, 1984) et la brève exposition des sondes à l'air avant pénétration dans les sédiments peut conduire à un biais analytique (Davison *et al.*, 1994). En revanche, s'il s'agit d'un biais analytique, l'erreur induite n'est pas systématique dans la mesure où le facteur d'enrichissement varie.

L'enrichissement des concentrations en métaux observé dans les DET peut être également lié à l'intensification de l'activité bactérienne (réduction du Fe) en raison de l'introduction des sondes à température ambiante (Leermakers *et al.*, 2005).

Enfin, l'observation d'un enrichissement dans l'eau sus-jacente couplée à l'obtention d'un profil plat des concentrations en métaux de part et d'autre de l'interface eau-sédiment pourrait dénoter l'existence d'un processus de diffusion avec un temps d'équilibre inférieur à 24 h (temps de pose du DET dans le sédiment). Les contaminants métalliques diffusent à travers l'interface eau-sédiment. Le gradient de concentrations entre l'eau sus-jacente et les eaux interstitielles diminue jusqu'à obtenir une concentration homogène de part et d'autre de l'interface eau-sédiment.

S'il s'agit d'une diffusion rapide des contaminants métalliques à l'interface eau-sédiment, il est possible, en principe, de calculer un flux diffusif à partir du gradient des concentrations mesurées dans les eaux interstitielles et dans l'eau de surface. On considère alors que l'eau présente des concentrations homogènes en contaminants dissous. Cependant, la détermination du flux présente un côté arbitraire dans la mesure où le flux dépend d'un gradient de hauteur qu'il n'est pas permis de caractériser.

### 2.5.3 Mesure de $O_2$ et $N_2O$ dissous, pH, Eh

Les mesures de l'oxygène et des oxydes d'azote dissous, du potentiel hydrogène (pH) et du potentiel redox (Eh) dans les eaux interstitielles en fonction de la profondeur avec une résolution sub-millimétrique ont été réalisées à l'aide de microélectrodes (Unisense). Les profils verticaux ont été déterminés dans les sédiments prélevés en k36 sur une épaisseur de 1 cm (sédiment de surface).

#### 2.5.3.1 Principe

Le tableau 2.9 présente les microélectrodes utilisées. Le schéma du dispositif est présenté sur la figure 2.31. La mesure du potentiel redox Eh et du pH nécessite le couplage de la microélectrode avec une électrode de référence et un millivoltmètre (Unisense PHM 210). Le signal est traité par une interface d'acquisition informatique équipée d'un logiciel adapté (Unisense Profix version 3.05).

Electrode	Surface ( $\mu\text{m}$ )	Type
$O_2$ (dissous)	20-30	Clark
$N_2O$ (dissous)	20-30	Clark
Eh	20-30	Platine
pH	20-30	Verre
Référence	5000 $\mu\text{m}$	Ag-AgCl

Tableau 2.9 : Microélectrodes utilisées.

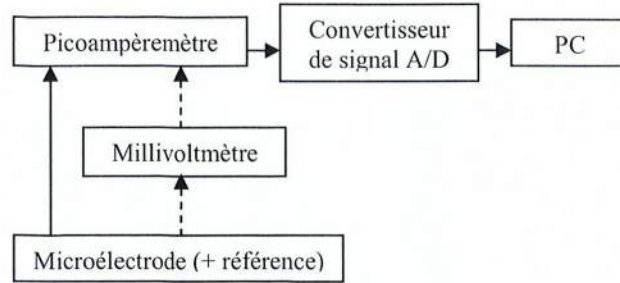


Figure 2. 31 : Schéma du dispositif de mesure.

La mesure du pH et de l'Eh passe par une interface d'acquisition dotée d'un millivoltmètre relié au réseau électrique du laboratoire. La mesure des tensions est sensible aux perturbations de courant électrique associé au fonctionnement des appareils alentours.

### 2.5.3.2 Manipulation

Le montage de mesure est illustré sur la figure 2.32. L'eau de la carotte est soumise à une circulation d'air pour saturer le milieu en oxygène et simuler la perturbation du courant dans la rivière. La microélectrode est plongée dans la carotte de sédiment avec la pointe de la microélectrode placée juste au-dessus de l'interface eau-sédiment. La microélectrode est fixée à un bras manipulateur équipé d'une vis dont la rotation permet de déplacer verticalement la microélectrode tous les 100  $\mu\text{m}$ . L'étalonnage des microélectrodes est décrit dans les manuels d'utilisation fournis par le constructeur (Unisense).

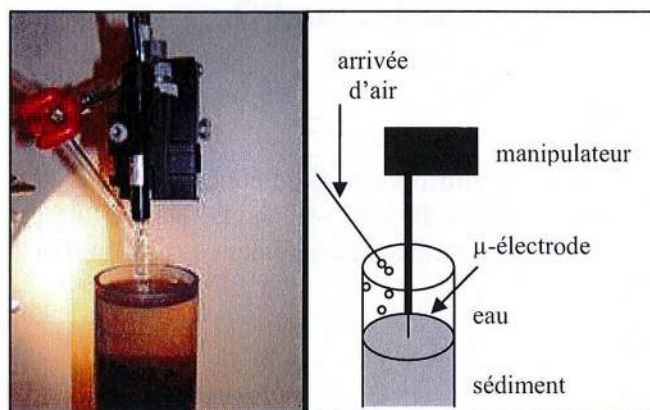


Figure 2. 32 : Dispositif de mesure avec microélectrode dans les eaux interstitielles du sédiment.

Les microélectrodes sont des outils très fragiles. La moindre présence d'un corps solide dans les sédiments peut briser la sonde.

### 2.5.3.3 Test de reproductibilité

Un test de reproductibilité a été effectué dans la mesure de l' $\text{O}_2$  et du pH dans une carotte de sédiment, selon que la microélectrode descende de l'eau vers le sédiment ou qu'elle remonte. La figure 2.33 illustre les résultats obtenus. L'interface eau-sédiment se situe aux alentours de 3000  $\mu\text{m}$  pour l' $\text{O}_2$  et 2000  $\mu\text{m}$  pour le pH.

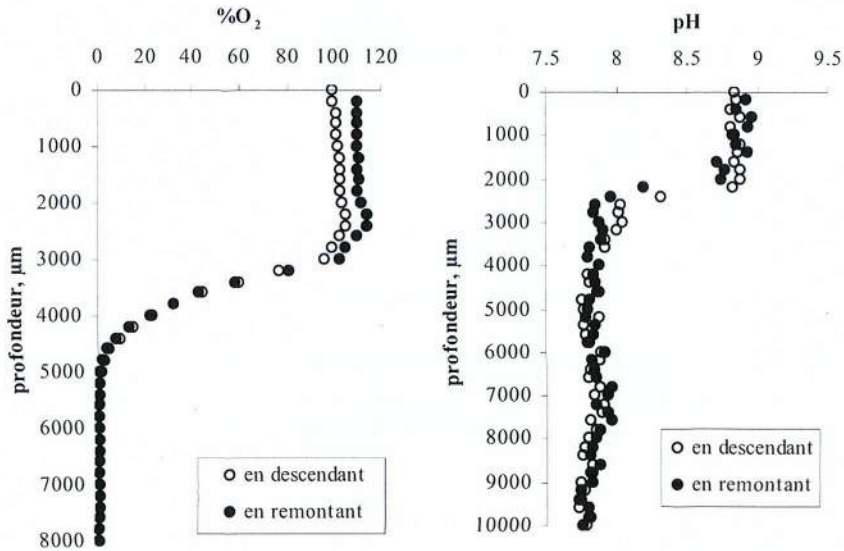


Figure 2.33 : Evolution de l'oxygène et du pH dans une carotte de sédiment. Influence de la montée/descente.

Les profils sont semblables en montée et en descente pour le pH et l'O<sub>2</sub>. La mesure de l'O<sub>2</sub> dans l'eau sus-jacente présente une dérive vers les valeurs faibles lorsque la microélectrode remonte. Ce biais nécessite une calibration constante entre chaque profil mesuré.

### 2.5.3.4 Influence du protocole : cas d'O<sub>2</sub>

#### Influence de la luminosité

La figure 2.34 présente le profil vertical de concentration de l'O<sub>2</sub> dans une carotte de sédiment, selon que la surface du sédiment est éclairée ou non directement par une source ponctuelle de lumière (lampe). L'interface eau-sédiment a été identifiée (profondeur 0).

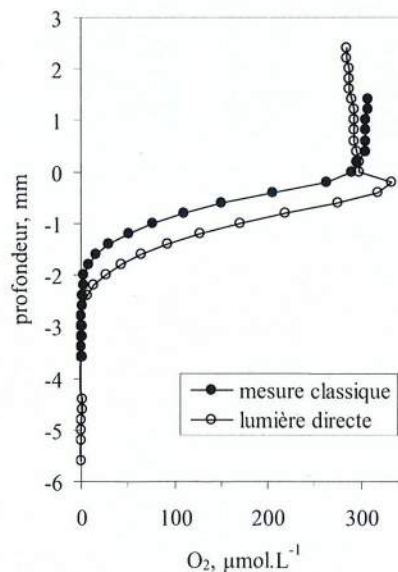


Figure 2.34 : Profil vertical de la concentration en oxygène dissous dans les sédiments de la Scarpe prélevés en k36 en juillet 2006. Mesure réalisée avec/sans éclairage direct de l'interface eau-sédiment.

A l'interface eau-sédiment, l'O<sub>2</sub> est sensible à la luminosité. Juste sous l'interface eau-sédiment, un pic d'oxygène est apparu. La pénétration de l'O<sub>2</sub> est plus profonde lorsque le sédiment est directement éclairé.

L'augmentation de la concentration en O<sub>2</sub> dans les eaux interstitielles est attribuée à celle de l'activité biologique (photosynthèse).

### Influence de l'arrivée d'air

La figure 2.35 présente le profil d'O<sub>2</sub> dans une carotte de sédiment selon que l'eau sus-jacente est soumise à une arrivée d'air (bullage) ou non. L'interface eau-sédiment se situe vers 3500 µm.

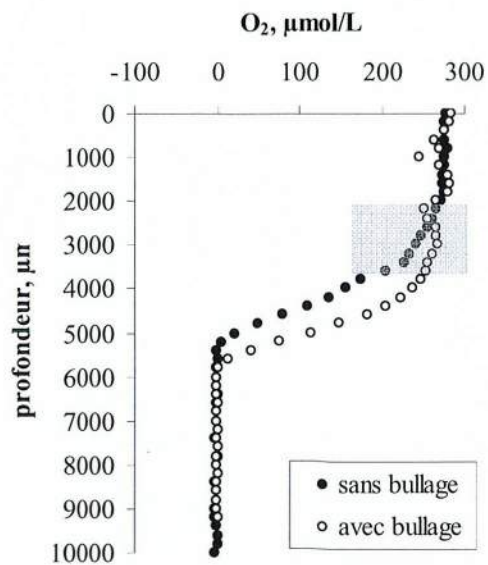


Figure 2. 35 : Profil de l'oxygène dans une carotte de sédiment. Influence de l'arrivée d'air.

Sans arrivée d'air, la pénétration de l'oxygène est moins profonde dans les sédiments. Juste au-dessus de l'interface eau-sédiment (~3500 µm), apparaît une couche limite de diffusion de l'O<sub>2</sub> dans l'eau sus-jacente (en gris sur le graphe). Les concentrations en O<sub>2</sub> dans l'eau ont tendance à présenter une stratification avec établissement de conditions anoxiques.

L'arrivée d'air, en assurant le maintien des conditions oxydantes dans l'eau et en provoquant une circulation de l'eau et des particules sédimentaires à la surface du sédiment, contribue à limiter le flux d'oxygène à l'interface eau-sédiment.

### Conclusion

Les expériences préliminaires ont permis de préciser les conditions d'utilisation des microélectrodes. Durant la mesure des paramètres physico-chimiques, la carotte est maintenue à température constante, dans une pièce climatisée à 20°C, avec une luminosité constante.

La principale source d'erreur liée à l'utilisation des microélectrodes est attribuée au placement de l'interface eau-sédiment. L'erreur verticale sur l'identification de l'interface eau-sédiment dépend surtout de la résolution spatiale du placement de la microélectrode.

Enfin, des tests supplémentaires au laboratoire (non présentés) ont montré que la valeur absolue du pH et de l'Eh varie avec la sonde utilisée. Par conséquent, dans l'interprétation des profils de pH et Eh obtenus avec les microélectrodes, seule la variation du paramètre sera discutée et non pas la valeur (absolue) du paramètre.

## 2.6 Récapitulatif

La figure 2.36 permet de récapituler le déroulement des campagnes en fonctionnement des objectifs de travail. La fréquence de prélèvement, le type de matériel échantillonné, et la nature des analyses sont présentées. La stratégie du travail de thèse repose sur la variation d'échelle temporelle dans l'étude de la dynamique sédimentaire (*i.e.* court et long terme).

**Dynamique sédimentaire et évolution de la contamination métallique à LONG TERME**

**Dynamique sédimentaire et transfert des métaux à COURT TERME**

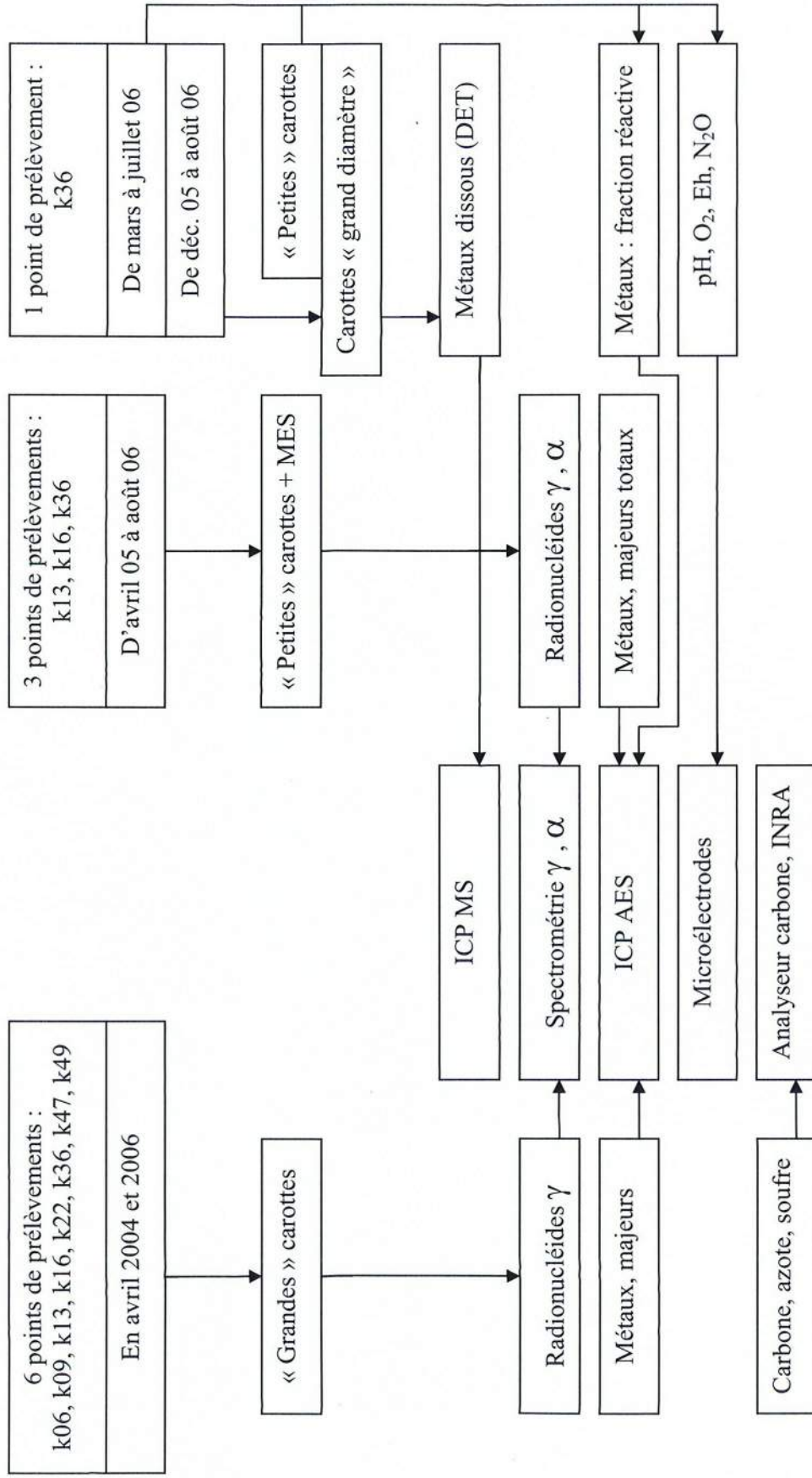


Figure 2. 36 : Déroulement des campagnes, type d'échantillons prélevés dans la Scarpe, éléments analysés, instrumentation analytique.





### 3 DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE A LONG TERME ET CONTAMINATION DES SEDIMENTS

Dans ce chapitre, on se propose d'aborder les modalités de dépôt des sédiments et de discuter ses propriétés physiques et chimiques (degré de contamination et type de polluants). Afin d'apprécier l'hétérogénéité du milieu et d'identifier les facteurs pouvant exercer un contrôle sur la dynamique des sédiments et la distribution des contaminants métalliques, le matériel sédimentaire solide a fait l'objet de nombreuses analyses. Certaines propriétés physiques courantes telles que la teneur en eau et la distribution granulométrique, ainsi que les teneurs en métaux, en majeurs, et en radionucléides ont été déterminées. Le bilan sédimentaire ainsi que l'historique de la pollution dans le secteur d'étude ont pu être établis à l'aide de deux méthodes de datation radioactives basées sur l'utilisation du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}$ . Les facteurs influençant la distribution des métaux dans les sédiments ont été étudiés au regard des propriétés physiques et chimiques des sédiments. Les sédiments ont été prélevés dans la Scarpe en huit points. Les méthodes de prélèvement, de conditionnement et d'analyse sont présentées dans le chapitre 2. La figure 3.1 reprend la localisation des sites d'échantillonnage k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47, k49.

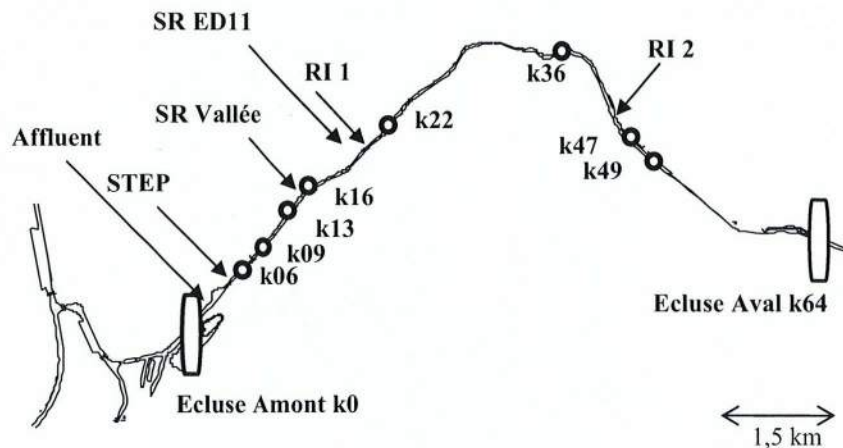


Figure 3. 1 : Représentation du secteur d'étude. Localisation de l'affluent « La Cunette », des rejets de la Station d'Épuration (=STEP), des Stations de Relevage (=SR) et des Rejets Industriels (=RI). Localisation des 8 sites de prélèvements k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49.

#### 3.1 Caractérisation physique des sédiments

##### 3.1.1 Teneur en eau

La teneur en eau en fonction de la profondeur dans les carottes de sédiments prélevées en k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49 est présentée sur la figure 3.2.

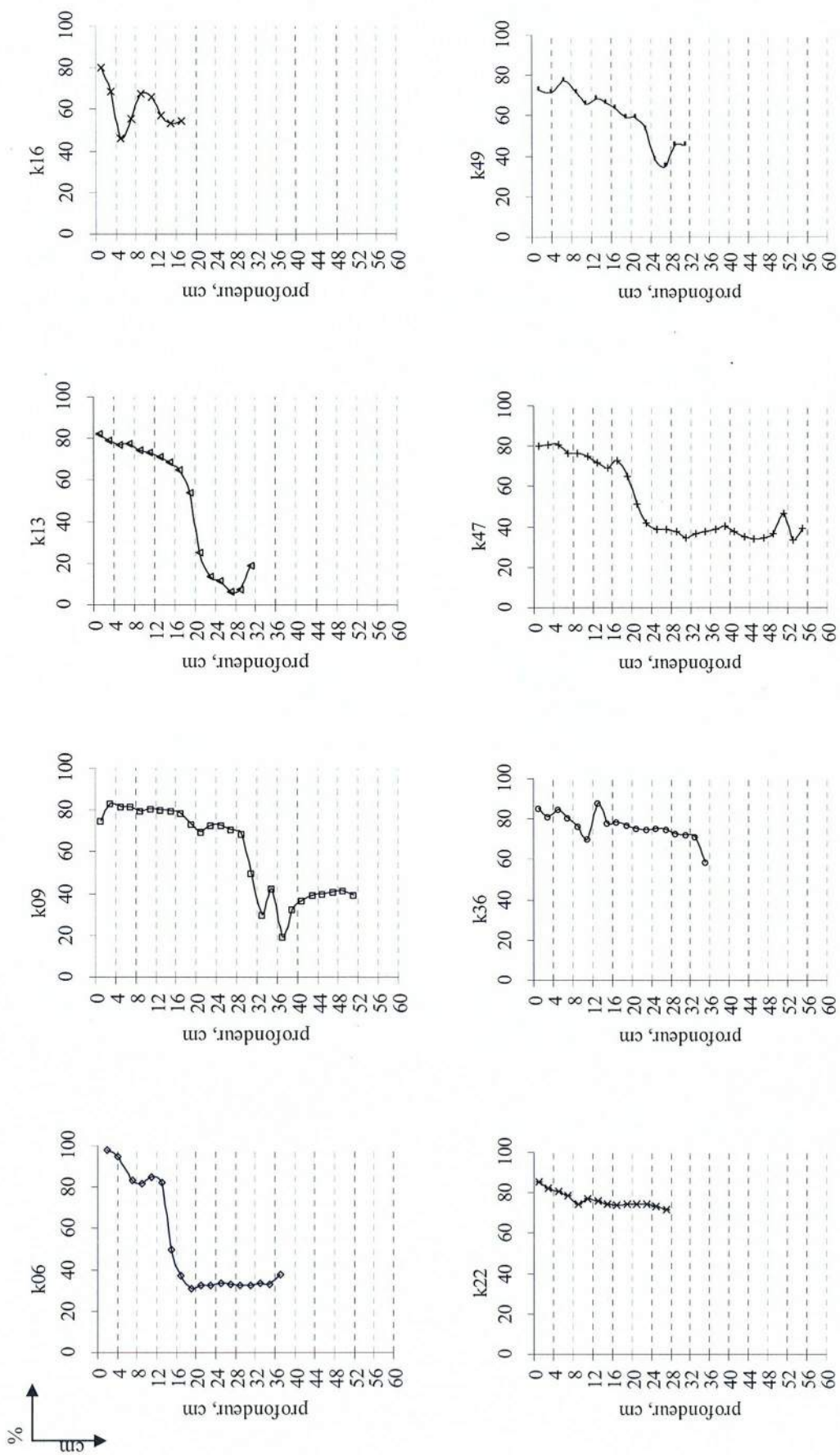


Figure 3. 2 : Teneur en eau en fonction de la profondeur dans les sédiments.

Les sédiments de surface (0-2 cm) sont tous riches en eau avec des teneurs comprises entre 73 % (k49) et 98 % (k06). En profondeur, les profils se distinguent selon que la teneur en eau diminue progressivement ou brutalement avec la profondeur. Pour les sédiments prélevés en k06, k09, k13 et k47, la diminution de la teneur en eau présente un seuil de rupture localisé en profondeur, respectivement à 14, 30, 18 et 20 cm. Pour ces quatre sites, la teneur en eau est capable de diminuer fortement sur un faible intervalle en profondeur : la teneur en eau diminue d'un facteur 2 pour k06 et k09 sur un intervalle de 2 cm d'épaisseur, d'un facteur 2 pour k47 sur un intervalle de 6 cm et d'un facteur 5 pour k13 sur un intervalle de 6 cm. Les sédiments situés au-dessus du seuil de rupture présente en moyenne des teneurs en eau élevées (74 - 88 %) et équivalentes à celles rencontrées dans la tranche de surface des sédiments, tandis que la couche de profondeur est caractérisée par des teneurs en eau plus faibles (< 40 %). Les sédiments prélevés en k22, k36 et k49 présentent une diminution progressive de la teneur en eau avec la profondeur. En k22 et k36, la teneur en eau reste relativement élevée (> 60 %) tout le long de la colonne sédimentaire. Pour ces deux sites, la partie des sédiments pauvres en eau n'a pas été prélevée, soit parce qu'elle n'existe pas, soit parce qu'elle n'a pas pu être prélevée malgré que le carottier ait été enfoncé au maximum dans les sédiments.

L'analyse de la teneur en eau a mis en évidence deux types de matériels sédimentaires différents : le sédiment de surface est riche en eau tandis que certains sites se caractérisent par la présence en profondeur d'une couche sédimentaire pauvre en eau. Pour chaque site sédimentaire échantillonné, les 14 à 36 cm supérieurs de sédiment sont riches en eau (> 60 %), tandis que certains sites se caractérisent par la présence en profondeur d'une couche sédimentaire pauvre en eau (< 40 %). Cette propriété confère un comportement intéressant pour les sédiments de surface par rapport aux sédiments profonds : les sédiments riches en eau et peu consolidés sont susceptibles d'être plus facilement mobilisés lors d'événements érosifs à l'interface eau-sédiment (Haag *et al.*, 2001). La quantité de sédiment meuble et mobilisable est d'autant plus élevée que la couche sédimentaire riche en eau est épaisse.

Pour les sédiments situés en k16, le profil est perturbé : on observe une diminution brutale de la teneur en eau entre 0 et 6 cm, suivie d'une augmentation entre 6 et 12 cm puis à nouveau d'une diminution entre 12 et 18 cm. L'absence de tendance générale suggère une certaine hétérogénéité dans la nature du matériel sédimentaire. De même, en k49, la diminution locale de la teneur en eau entre 24 et 28 cm (< 40 %) suggère la présence d'un matériel différent des sédiments présents dans la colonne sédimentaire.

Parmi les sédiments situés en profondeur pour lesquels la teneur en eau est faible, les sédiments situés en k13 (22-30 cm) se distinguent par des teneurs en eau particulièrement faibles (< 15 %). Cette caractéristique suggère une hétérogénéité de matériel sédimentaire par rapport aux autres sites (k06, k09, k47).

D'une manière générale, la compaction des sédiments résulte du poids de la colonne d'eau qui provoque l'expulsion des eaux porales et contribue ainsi à la consolidation des sédiments. En k22 et k36, l'allure du profil vertical de la teneur en eau illustre une sédimentation régulière tout le long de la colonne sédimentaire avec une succession de dépôts sédimentaires dans lesquels la compaction serait responsable de la diminution de la teneur en eau. En revanche, en k06, k09, k13 et k47, seuls les sédiments situés dans la couche de surface (au-dessus du seuil de rupture) présente une diminution de la teneur en eau attribuée à la compaction sédimentaire. Pour les sédiments situés dans la couche de profondeur (au-delà du seuil de rupture), la teneur en eau reste relativement constante. Dans ces sédiments profonds, la compaction des sédiments ne semble pas ou plus affecter la variation de la teneur en eau. Si effectivement la teneur en eau n'est plus influencée par le phénomène de compaction, il est probable que le dépôt de ces sédiments remonte à des temps anciens. Enfin, la présence d'un seuil de rupture suggère une perturbation dans la succession des dépôts sédimentaires : du matériel sédimentaire peu compacté (riche en eau) se serait déposé sur un substrat sédimentaire plus compacté (pauvre en eau).

Enfin, en k16, le profil vertical est perturbé et suggère également une sédimentation irrégulière.

L'analyse de la teneur en eau a permis de distinguer au moins deux types de matériels sédimentaires (compacté/non compacté) et suggère un historique d'une sédimentation plus ou moins régulière selon le site sédimentaire échantillonné.

### ***3.1.2 Distribution granulométrique***

L'analyse granulométrique permet de différencier les classes granulométriques des particules en fonction de leur taille. La taille des particules (assimilée au diamètre des particules) joue un rôle important dans la dynamique sédimentaire et des contaminants qui leur sont associés. La granulométrie d'un sédiment dépend essentiellement de son origine et des conditions hydrodynamiques de dépôt. Dans la Scarpe, l'analyse granulométrique a porté sur quatre carottes sédimentaires prélevées en k13, k16, k47 et k49. Chaque échantillon a été fragmenté en sept groupes en fonction du diamètre  $\emptyset$  ( $\mu\text{m}$ ) des particules :  $0,04 < \emptyset < 1 \mu\text{m}$ ,  $1 < \emptyset < 5 \mu\text{m}$ ,  $5 < \emptyset < 15 \mu\text{m}$ ,  $15 < \emptyset < 50 \mu\text{m}$ ,  $50 < \emptyset < 400 \mu\text{m}$  et  $400 < \emptyset < 2000 \mu\text{m}$ . Les sédiments prélevés en k06, k09, k22 et k36 n'ont pas été analysés.

La figure 3.3 représente la distribution granulométrique en fonction de la profondeur dans les sédiments prélevés en k13, k16, k47 et k49.

Lorsque l'on compare la distribution granulométrique des sédiments déposés entre 0 et 10 cm entre les sites échantillonnés, la carotte k13 se distingue de k16, k47 et k49. En k13, la proportion des particules fines dont le diamètre est inférieur à  $50 \mu\text{m}$  (limons) représente en moyenne 54% de la distribution totale, tandis qu'elle s'élève jusqu'à 82, 96 et 86%, respectivement pour k16, k47 et k49. Les sédiments déposés à l'aval (à partir de k16) sont plus fins que les sédiments déposés à l'amont (k13). De l'amont vers l'aval, l'évolution du matériel sédimentaire qui se dépose peut être due à différents facteurs, dont la nature des sédiments (source) et/ou les conditions hydrologiques de dépôt (morphologie du cours d'eau).

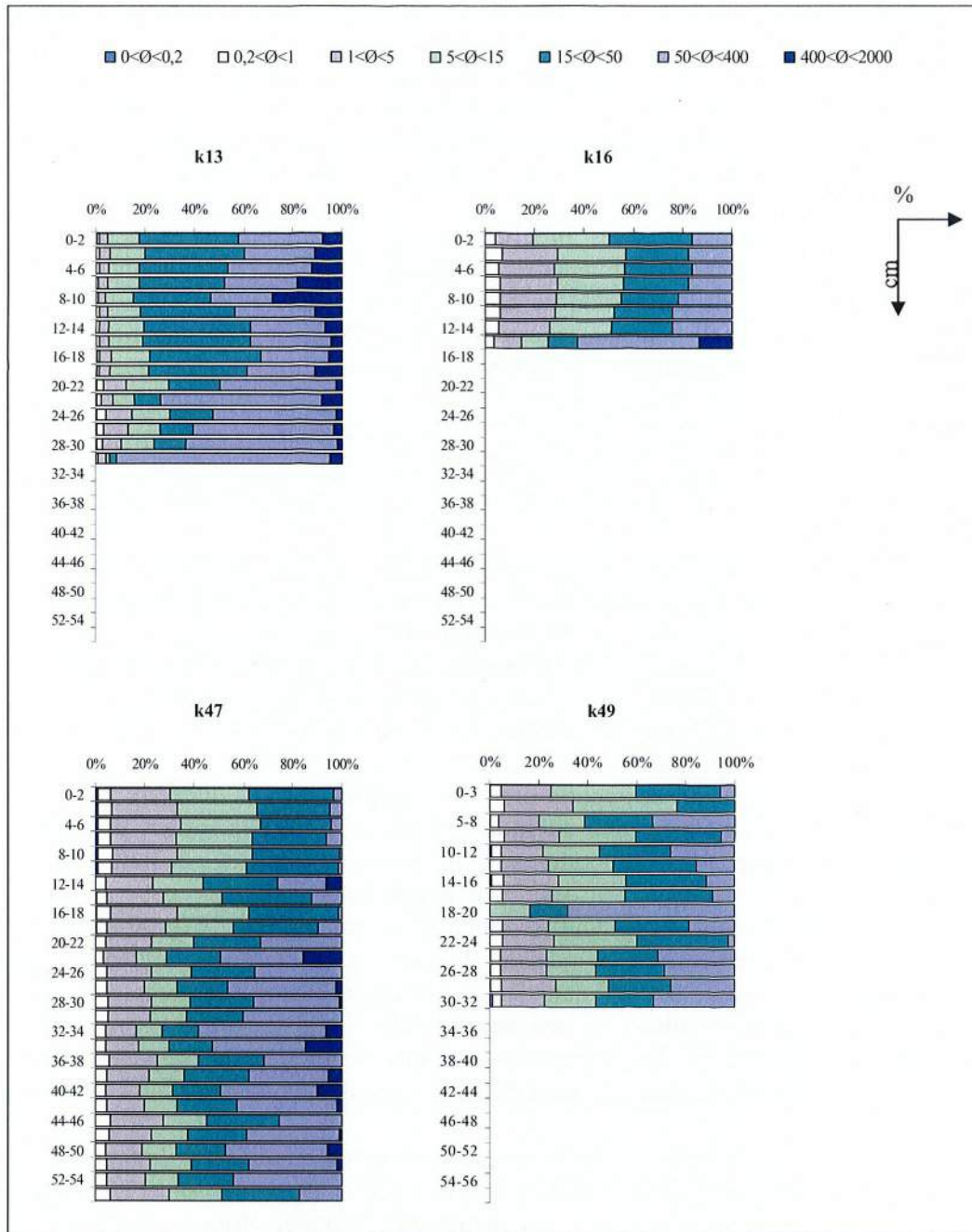


Figure 3.3 : Distribution granulométrique en fonction de la profondeur dans les sédiments.

L'analyse de la teneur en eau dans les sédiments prélevés en k13 et k47 avait mis en évidence une superposition de deux couches sédimentaires de nature différente avec un seuil de rupture situé à 20-22 cm : les sédiments situés en profondeur sont plus compactés que les sédiments situés dans la couche de surface. Or, d'après l'analyse granulométrique, il apparaît que les sédiments profonds se caractérisent par une granulométrie plus grossière en comparaison avec les sédiments de surface. En effet, la proportion de limons ( $< 50 \mu\text{m}$ ) diminue au profit de la proportion de sables ( $> 50 \mu\text{m}$ ) avec la profondeur. Donc, lorsque les sédiments sont situés en surface, ils sont peu compactés et relativement fins, tandis qu'en profondeur, les sédiments sont plus compactés et plus grossiers. De même, en k49, alors que la teneur en eau diminue avec la profondeur, la distribution granulométrique montre une augmentation de la fraction grossière ( $> 50 \mu\text{m}$ ). Par conséquent, dans les sédiments de la

Scarpe, l'évolution en profondeur de la teneur en eau et de la distribution granulométrique présente une corrélation : lorsque la teneur en eau est faible, la fraction grossière des particules sédimentaires augmente. Cette corrélation existe à l'échelle de la colonne sédimentaire et permet d'expliquer l'anomalie observée pour la tranche 30-32 cm en k13, où la ré-augmentation de la teneur en eau avec la profondeur est bien liée à l'apparition de sédiments plus grossiers. La compaction des sédiments diffère entre les couches sédimentaires et entraîne une variation dans la teneur en eau. De plus, la qualité texturale des sédiments est différente.

Cependant, pour les sédiments prélevés en k16, alors que la variation de la teneur en eau suggère une succession de dépôts sédimentaires hétérogènes, la distribution granulométrique reste homogène. L'absence de corrélation ne permet pas de conclure pour cette carotte. De même, en k47, la diminution de la teneur en eau entre 24 et 28 cm de profondeur ne peut être associée à l'évolution de la granulométrie de manière simple. Enfin, notons que la couche sédimentaire située à la base de la carotte prélevée en k16 est différente des couches supérieures : les sédiments situés au-delà de 14 cm se caractérisent par l'apparition de la fraction des particules supérieures à 400  $\mu\text{m}$  (sables grossiers). Les sédiments de cette couche remarquable pourraient être de nature différente en comparaison avec les sédiments des couches situées au-dessus.

La question n'est peut-être pas de savoir pourquoi les sédiments fins sont présents en surface alors que les sédiments profonds sont plus grossiers, mais plutôt de comprendre pourquoi les sédiments grossiers sont encore présents en profondeur. Dans l'hypothèse d'une remise en suspension des sédiments suffisamment importante pour affecter jusqu'à 20 cm de hauteur de colonne sédimentaire, les sédiments grossiers sont plus difficile à exporter, à déplacer. L'origine de la remise en suspension des sédiments peut être liée à des facteurs naturels (crue) ou aux activités humaines (curage).

En k13, entre 0 et 10 cm, la fraction grossière des particules de diamètre supérieur à 400  $\mu\text{m}$  augmente régulièrement jusqu'à atteindre un facteur 4 entre la surface et 10 cm de profondeur, au détriment de la fraction comprise entre 50 et 400  $\mu\text{m}$ . Cette évolution suggère l'existence d'un apport ponctuel et suffisamment important de sédiment pour se déposer jusqu'à 10 cm de profondeur avec une sédimentation par gravité. C'est-à-dire qu'un événement est parvenu à remettre en suspension du sédiment et que les sédiments une fois remis en suspension ont ensuite décanté dans la colonne d'eau. Pendant la décantation, un tri granulométrique s'est opéré résultant en une augmentation de la fraction grossière avec la profondeur au moment du dépôt : les particules sédimentaires plus grosses (sables) et *a priori* plus lourdes se sont déposées plus rapidement que les particules sédimentaires plus fines (limons).

En k47, les 12 cm de surface présentent une distribution relativement homogène avec en moyenne 60% de sédiments inférieurs à 15  $\mu\text{m}$  (limons fins). De même, en k13, entre 10 et 20 cm de profondeur, le sédiment présente une distribution granulométrique assez homogène avec en moyenne 60% de sédiments inférieurs à 50  $\mu\text{m}$  (limons grossiers). En k47 (0-12 cm), bien que la teneur en eau diminue avec la profondeur, la distribution granulométrique n'évolue pas de manière significative. Les sédiments qui se déposent au cours du temps ont une distribution granulométrique relativement homogène. A partir de k16, les sédiments sont essentiellement des sédiments cohésifs (0,24 - 62  $\mu\text{m}$  par définition). Les propriétés électrochimiques des particules élémentaires favorisent leur agglomération pour former des structures plus grosses appelées floes et macro-floes. Contrairement aux sédiments non cohésifs, lorsque les sédiments cohésifs se déposent sur le fond, des liaisons se forment entre chaque particule, floe ou macro-floe, pour former un lit dans lequel la cohésion est importante (Gratiot, 2000).

L'analyse granulométrique a permis de compléter l'analyse de la teneur en eau : les sédiments compactés situés en profondeur sont plus grossiers que les sédiments de surface,

moins compactés et plus fins. L'évolution de la distribution granulométrique en profondeur et d'un site de prélèvement à l'autre suggère que des processus physiques de dépôt/érosion ont probablement affecté de manière différente le matériel sédimentaire au cours du temps et selon le site d'échantillonnage. Bien que le secteur d'étude reste compris dans un tronçon de canal relativement court, les sédiments de la Scarpe manifestent une hétérogénéité certaine.

## 3.2 Age des sédiments

### 3.2.1 Rappels

Le couplage des méthodes de datation radioactives basées sur l'utilisation du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}$  nous permet d'estimer les vitesses de sédimentation sur une échelle pluri-décennale.

Le  $^{137}\text{Cs}$  est un radionucléide artificiel. Il s'agit d'un produit de fission qui est présent dans l'atmosphère depuis le début de l'ère nucléaire. Il est très réactif vis-à-vis des particules, avec un coefficient de partage  $K_d \approx 10^4 - 10^5$  (e.g. Mundschenk, 1996 ; Le Cloarec *et al.*, 2007). Il est souvent utilisé en tant que traceur des particules afin de déterminer les vitesses de sédimentation dans des systèmes aquatiques (Jeter, 2000). Il constitue un marqueur événementiel dans le temps des retombées atmosphériques de  $^{137}\text{Cs}$  ; les profils verticaux de  $^{137}\text{Cs}$  dans les carottes de sédiments prélevées dans les cours d'eau en Europe sont susceptibles d'illustrer quatre « événements » (dans Meybeck *et al.*, 2007) :

- première apparition du  $^{137}\text{Cs}$  détectée et datée des années 1953-1954 ;
- un premier pic d'activité daté de 1959-1960 ;
- un pic maximum d'activité datant de 1963-1964 suivi d'une diminution progressive liée au traité d'arrêt des essais d'armes nucléaires ;
- un autre pic maximal d'activité plus étroit associé à l'accident nucléaire de Tchernobyl en 1986.

Le  $^{210}\text{Pb}$  est un isotope radioactif naturellement présent dans les horizons superficiels. Il provient de la décroissance de  $^{238}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 4,5.10^9$  ans).  $^{238}\text{U}$  décroît en donnant naissance à une série de radionucléides dont le  $^{222}\text{Rn}$  (3,83 jours), seul radionucléide à l'état gazeux dans la chaîne de filiation radioactive dans les conditions environnementales. Une partie du  $^{222}\text{Rn}$  parvient à s'échapper dans l'atmosphère (émanation) où il décroît en donnant naissance à une série de radionucléides à vie courte avant de produire le  $^{210}\text{Pb}$  (22,3 ans). Une partie du  $^{222}\text{Rn}$  produit lors de la décroissance de  $^{238}\text{U}$  ne parvient pas à l'atmosphère et produit du  $^{210}\text{Pb}$  de manière *in situ* : c'est le  $^{210}\text{Pb}$  « supporté ». Le  $^{210}\text{Pb}$  produit dans l'atmosphère est alors lessivé et entraîné à la surface terrestre via les précipitations sèches et surtout humides, et s'ajoute par adsorption rapidement et fortement aux particules, avec un coefficient de partage élevé :  $K_d \approx 10^3 - 10^6$  (e.g. Matisoff *et al.*, 2005 ; Baskaran et Swarzenski, 2007). On parle alors d'« excès » de  $^{210}\text{Pb}$  ( $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ). Par conséquent, l'activité totale en  $^{210}\text{Pb}$  dans les particules issues de l'érosion des sols est égale à la somme du  $^{210}\text{Pb}$  « supporté » et du  $^{210}\text{Pb}$  « en excès ». Le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est souvent utilisé pour quantifier des vitesses de sédimentation dans les milieux aquatiques (e.g. Jeter, 2000). L'apport de  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est continu dans le temps. Lorsque les sédiments sont enfouis, le  $^{210}\text{Pb}$  « en excès » des sédiments n'est plus alimenté par les apports atmosphériques et le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  décroît avec sa propre période (22,3 ans).

La principale différence entre les deux méthodes de datation radioactive ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ) réside dans le mode de production de ces radionucléides. Le  $^{137}\text{Cs}$  est un radionucléide artificiel dont les apports ont été ponctuels dans le temps, tandis que le  $^{210}\text{Pb}$  est un radionucléide naturel et le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est continuellement apporté par les retombées atmosphériques.



### 3.2.2 $^{137}\text{Cs}$

Les activités du  $^{137}\text{Cs}$  ont été déterminées par spectrométrie-gamma dans les carottes de sédiment prélevées en k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49 et sont présentées en fonction de la profondeur sur la figure 3.4.

Pour tous les profils verticaux obtenus, le  $^{137}\text{Cs}$  croît avec la profondeur, passe par une ou deux (cf. k47) valeurs maximales avant de décroître. Dans les sédiments prélevés en k06, k09, k13 et k47, le  $^{137}\text{Cs}$  disparaît dans les couches profondes des sédiments. A priori, ces carottes contiennent l'enregistrement complet des retombées de  $^{137}\text{Cs}$  d'origine atmosphérique dans le milieu aquatique étudié. En revanche, les carottes prélevées en k16, k22, k36 et k49 sont trop courtes avec un enregistrement sédimentaire de  $^{137}\text{Cs}$  incomplet. Dans la Scarpe, les sédiments compactés et grossiers correspondent à des dépôts anciens et antérieurs à 1954 (> 50 ans), année d'apparition du  $^{137}\text{Cs}$  dans les horizons superficiels. En revanche, les sédiments peu compactés et fins contiennent tous du  $^{137}\text{Cs}$ . Si on considère que les activités de  $^{137}\text{Cs}$  mesurables actuellement sont issues uniquement des retombées de l'accident nucléaire de Tchernobyl (1986), alors ces sédiments seraient relativement récents (< 20 ans). L'enregistrement d'une carotte de sédiment prélevée dans un environnement où la sédimentation est régulière permettrait de tracer l'historique des retombées de  $^{137}\text{Cs}$  dans la région (Le Cloarec *et al.*, en préparation) et donc de statuer sur l'identification des pics de  $^{137}\text{Cs}$  observés dans la Scarpe. Une telle carotte de sédiment n'a pas pu être prélevée dans le cadre de ce travail.

Dans la partie peu compactée des sédiments en k06 (< 14 cm) et k47 (< 20 cm), les activités de  $^{137}\text{Cs}$  mesurées sont relativement faibles (*i.e.* < 12 Bq.kg<sup>-1</sup>) et sont du même ordre de grandeur que les activités de surface, comprises entre 3 et 11 Bq.kg<sup>-1</sup> (0-2 cm). La sédimentation s'est déroulée de manière irrégulière car un événement a contribué à effacer l'enregistrement sédimentaire des retombées de Tchernobyl. La présence de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments pourrait correspondre à un dépôt relativement récent (< 20 ans). Pour tous les autres sédimentaires, l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  passe par une valeur supérieure à celle des sédiments de surface et comprise entre 18 et 40 Bq.kg<sup>-1</sup>. En faisant l'hypothèse que les pics d'activité du  $^{137}\text{Cs}$  correspondent aux retombées radioactives de 1986 (accident de Tchernobyl) dans la Scarpe, il est possible de déterminer les vitesses de sédimentation pour ces environnements sédimentaires. Cependant, il existe un doute sur l'identification des pics de  $^{137}\text{Cs}$  en k09 et k13. En effet, l'activité maximale du  $^{137}\text{Cs}$  reste relativement faible (< 20 Bq.kg<sup>-1</sup>), alors qu'elle peut être plus élevée dans les sédiments (jusqu'à 40 Bq.kg<sup>-1</sup> en k36).

Les pics d'activités en  $^{137}\text{Cs}$  sont plus ou moins étalés en profondeur. La largeur des pics peut constituer un indicateur des processus d'enfouissement des sédiments qui ont affecté le dépôt de  $^{137}\text{Cs}$  en surface. Plus le pic est étalé, plus les sédiments ont été perturbés au moment du dépôt en surface. Des processus perturbateurs, telle que la bioturbation, ont contribué à homogénéiser le signal sédimentaire en profondeur. La présence des bombements observés (k22, k36, k47) pourrait être une conséquence. En outre, la présence des bombements peut aussi être associée à une remobilisation significative du  $^{137}\text{Cs}$  postérieure au dépôt sédimentaire. Enfin, les paramètres hydrauliques peuvent jouer un rôle sur la distribution granulométrique (crués) et sur l'association préférentielle du  $^{137}\text{Cs}$  sur les particules fines aux détriments des particules plus grossières (Chillrud *et al.*, 2003). Les processus de mélange affectant les sédiments au cours de leur enfouissement contribuent à sous-estimer les vitesses de sédimentation car ils dilatent le maximum d'activité en profondeur.

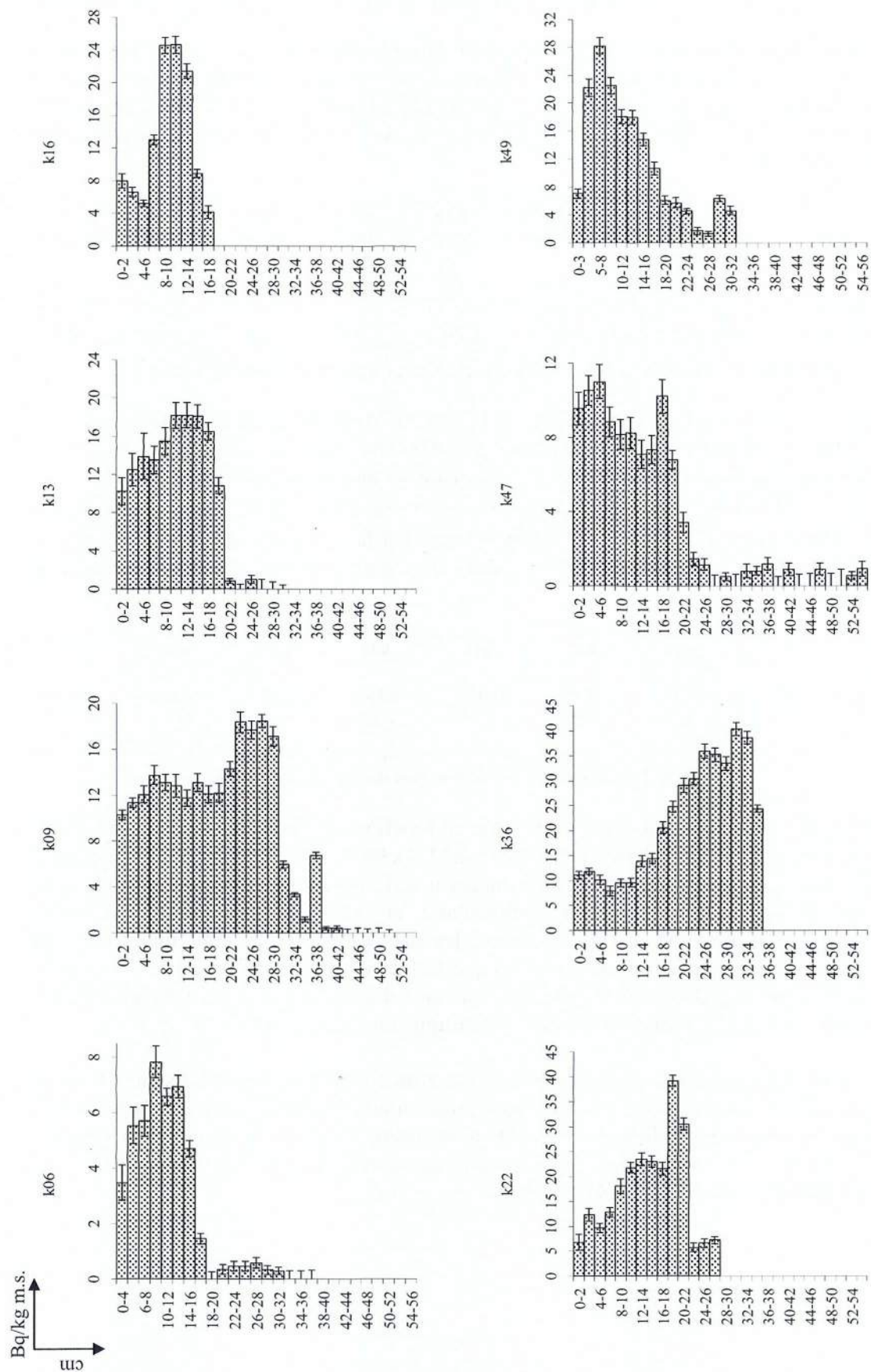


Figure 3.4 : Activités en  $^{137}\text{Cs}$  en fonction de la profondeur dans les sédiments.

La vitesse de sédimentation ( $v$ ) est une fonction de la profondeur ( $z$ ) à laquelle apparaît le pic de Tchernobyl et du délai entre le moment du prélèvement et les retombées de  $^{137}\text{Cs}$  (1986) ( $\Delta t$ ) :  $v = \frac{z}{\Delta t}$ . Le tableau 3.1 présente le calcul des vitesses de sédimentation.

Les vitesses de sédimentation sont déterminés en faisant l'hypothèse que la sédimentation est régulière au cours du temps. Lorsque la vitesse de sédimentation est indéterminée, « IND. » est mentionné. Lorsque la compaction des sédiments est négligée, le flux de sédimentation s'exprime en  $\text{cm.an}^{-1}$ , tandis qu'il s'exprime en  $\text{g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$  lorsque la porosité des sédiments est prise en compte.

site	k06	k09	k13	<b>k16</b>	<b>k22</b>	<b>k36</b>	k47	k49
z (cm)	8-10	22-28	10-16	8-12	18-20	30-32	16-18	5-8
1986	non	?	?	oui	oui	oui	non	oui
$\Delta t$ (ans)		18	20	20	18	18		18
$v$ ( $\text{cm.an}^{-1}$ )	IND.	1,2-1,6 ?	0,5-0,8 ?	0,4-0,6	1,0-1,1	1,5-1,7	IND.	0,3-0,4
$v$ ( $\text{g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ )	IND.	0,3-0,4 ?	0,2 ?	<b>0,2-0,3</b>	<b>0,3</b>	<b>0,5</b>	IND.	0,1

**Tableau 3. 1 : Vitesse de sédimentation dans la Scarpe à partir de la méthode du  $^{137}\text{Cs}$ .**

La vitesse de sédimentation varie entre 0,1 et 1,7  $\text{cm.an}^{-1}$  dans les sédiments de la Scarpe.

Afin de caractériser la dynamique sédimentaire dans la Scarpe, on peut aussi déterminer le stock total  $I$  de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments à l'aide de la formule :

$I(\text{Bq.cm}^{-2}) = \Sigma[A(\text{Bq.kg}^{-1}) \times m(\text{kg}) \div S(\text{cm}^2)]$ , où  $A$  désigne l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  pour un niveau sédimentaire,  $m$  la masse de sédiment sec, et  $S$  la surface de dépôt. Le tableau 3.2 présente les valeurs du stock total de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments. L'incertitude mentionnée est analytique.

Site	k06	k09	k13	k16	k22	k36	k47	k49
$I(^{137}\text{Cs})$ , $\text{Bq.cm}^{-2}$	0,04 ± 0,01	0,14 ± 0,01	0,09 ± 0,01	0,09 ± 0,01	0,18 ± 0,01	0,34 ± 0,02	0,06 ± 0,01	0,15 ± 0,01

**Tableau 3. 2 : Stock  $I$  de  $^{137}\text{Cs}$  en fonction du site échantillonné.**

Le stock total de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments varie en fonction du site échantillonné dans l'ordre croissant  $k06 < k47 < k13 \approx k16 < k09 < k49 < k22 < k36$ . Le stock total de  $^{137}\text{Cs}$  présent dans les sédiments est un indicateur de l'importance de l'accumulation sédimentaire en un site. Par exemple, l'environnement sédimentaire en k36 est plus propice au dépôt sédimentaire que celui situé en k06, tandis que les sites k13 et k16 présente une dynamique sédimentaire équivalente. C'est aussi en k36 que le flux de sédimentation est le plus rapide. Ce constat est en accord avec la morphologie du cours d'eau : k36 est situé dans un méandre, alors que les autres sites sont dans un secteur rectiligne du cours d'eau.

La distribution granulométrique peut exercer un contrôle sur les teneurs en  $^{137}\text{Cs}$  dans la mesure où les fortes activités en  $^{137}\text{Cs}$  sont préférentiellement associées aux particules les plus fines des sols et des sédiments (He et Walling, 1996). La figure 3.5 présente la variation des activités en  $^{137}\text{Cs}$  en fonction de la fraction des particules fines ( $\emptyset < 50 \mu\text{m}$ ) dans les sédiments prélevés en k13, k16, k47 et k49.

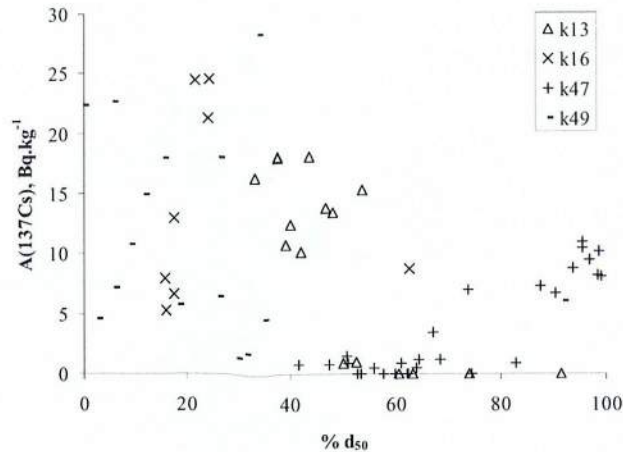


Figure 3. 5 : Variation des activités en  $^{137}\text{Cs}$  en fonction de la fraction des particules fines.

A l'échelle du compartiment sédimentaire, il n'y a pas de corrélation entre l'activité du  $^{137}\text{Cs}$  et la fraction fine des sédiments. Néanmoins, à l'échelle d'un site sédimentaire, il existe des couches de sédiment pour lesquelles une corrélation positive peut être observée : c'est le cas en k13 (<10 cm), k47 et k49. D'une manière générale, la distribution granulométrique n'exerce pas de contrôle sur les activités en  $^{137}\text{Cs}$  mesurées dans les sédiments de la Scarpe, excepté ponctuellement et/ou de manière localisée.

Les disparités observées dans les activités en surface (0-2 cm) suggèrent une hétérogénéité dans la nature des apports particulaires : les particules qui se déposent à la surface des sédiments n'ont probablement pas la même origine. Les particules sédimentaires ne vont pas présenter les mêmes caractéristiques en  $^{137}\text{Cs}$  selon qu'elles proviennent de l'érosion des sols (exempts de  $^{137}\text{Cs}$  en surface), de l'érosion des berges ou de l'érosion des fonds sédimentaires (enrichis en  $^{137}\text{Cs}$ ). En outre, les phénomènes de mélange entre les particules provenant de différentes origines ne sont pas exclus.

L'étude du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments de la Scarpe permet de compléter la caractérisation des sédiments : les sédiments compactés (et grossiers) sont âgés (> 50 ans) tandis que les sédiments peu compactés (et fins) sont récents (< 20 ans). En k06, k09, k13 et k47, la colonne sédimentaire correspond à une superposition de deux couches sédimentaires aux caractéristiques physiques différentes et d'âge différent. Il manque une partie de l'enregistrement du  $^{137}\text{Cs}$  dans ces sédiments. Dans le passé, un épisode important de remise en suspension/érosion a effacé un chapitre de l'historique de la sédimentation. Ce ou ces événements perturbateurs ont eu lieu entre 1954 et 1986 et peuvent être d'origine naturelle (crue) et/ou artificielle (navigation, crue).

### 3.2.3 $^{210}\text{Pb}$

L'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  en fonction de la profondeur a été déterminée par spectrométrie gamma dans les sédiments prélevés en k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49. L'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est déterminée à partir de la différence du  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{supporté}}$  (=  $^{226}\text{Ra}$ ) :  $A(^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}) = A(^{210}\text{Pb}_{\text{total}}) - A(^{226}\text{Ra})$ . La figure 3.6 illustre la variation des activités de  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  et de  $^{226}\text{Ra}$  (=  $^{210}\text{Pb}_{\text{supporté}}$ ) dans les sédiments de la Scarpe.

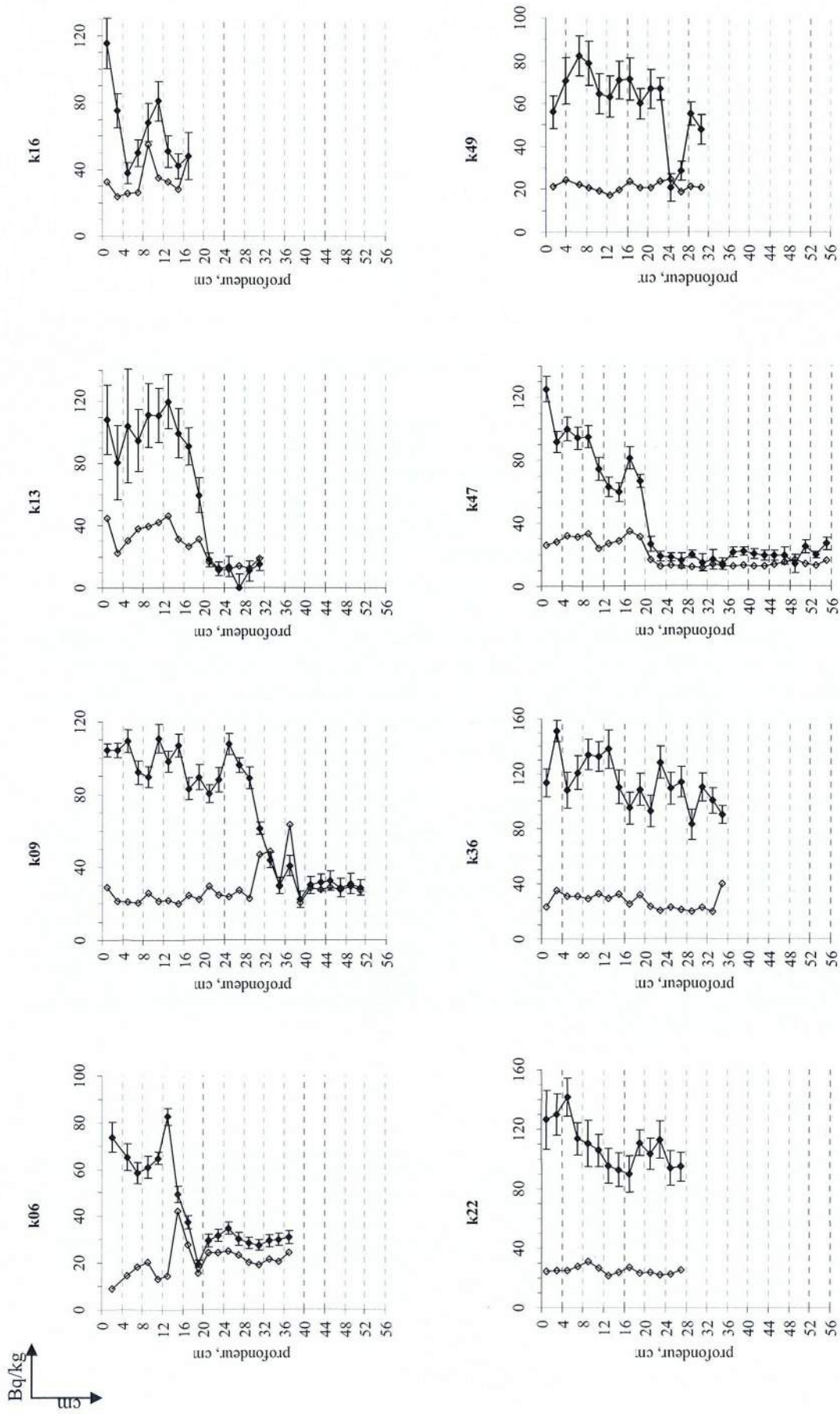


Figure 3. 6 : Activités du  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  et du  $^{226}\text{Ra}$  en fonction de la profondeur dans les sédiments.

Quel que soit le site échantillonné, l'allure du profil vertical montre une décroissance de l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  avec la profondeur dans les sédiments. La décroissance de l'activité en fonction de la profondeur est liée à la décroissance radioactive du  $^{210}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} = 22,3$  ans) issu des retombées atmosphériques ( $= ^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ). Dans la partie compactée des sédiments en k06, k09, k13 et k47, le  $^{210}\text{Pb}$  est à l'équilibre ou quasiment avec le  $^{226}\text{Ra}$ . Il s'agit du  $^{210}\text{Pb}$  « supporté ». Lorsque les activités du  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  et du  $^{226}\text{Ra}$  ne sont pas égales, l'équilibre radioactif entre le  $^{210}\text{Pb}$  et le  $^{226}\text{Ra}$  n'est pas atteint. Soit parce qu'il existe du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  résiduel qui n'a pas encore totalement décré, soit parce qu'il existe un biais analytique due à une mauvaise étanchéité des cellules de comptage (fuite du  $^{222}\text{Rn}$  donc pas de rééquilibrage). Dans la mesure où tout le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  a disparu, l'enregistrement sédimentaire du  $^{210}\text{Pb}$  dans les sédiments peut être considéré complet. Or, l'étude du  $^{137}\text{Cs}$  a mis en évidence l'absence des sédiments déposés entre 1954 et 1986. L'absence d'une partie du signal résulte probablement d'un épisode d'érosion du sédiment accumulé auparavant, lors d'un événement naturel (crue) ou artificiel (navigation, curage). Par conséquent, l'enregistrement sédimentaire de la signature du  $^{210}\text{Pb}$  est de ce fait incomplet. En k22, k36, k49 et k16, l'enregistrement sédimentaire du dépôt des particules est tronqué car le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  n'a pas totalement décré en profondeur. Dans ce cas, l'enregistrement sédimentaire du  $^{210}\text{Pb}$  est incomplet car les sédiments plus profonds n'ont pas pu être prélevés.

Dans les sédiments compactés en k06, k09, k13 et k47, il n'y a ni  $^{137}\text{Cs}$ , ni  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . D'après l'étude du  $^{137}\text{Cs}$ , les dépôts sont antérieurs à 1954. D'après le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ , en tenant compte de la décroissance du  $^{210}\text{Pb}$  (22,3 ans) entre l'activité mesurée en surface ( $77 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en moyenne) et la limite de quantification ( $8 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en moyenne pour k06 et k47), les dépôts sont antérieurs à 1930. Les résultats entre les deux méthodes de datation radioactive sont cohérents. Inversement, dans les sédiments peu compactés, la présence de  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  qui décroît en profondeur est associée à la présence de  $^{137}\text{Cs}$  : les dépôts sont bien récents (< 20 ans).

En k49, la diminution brutale du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  entre 26 et 28 cm de profondeur est corrélée à la diminution de la teneur en eau. De même, en k16, le profil du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est aussi perturbé que celui de la teneur en eau. Ces variations localisées en profondeur suggèrent une hétérogénéité dans la nature des dépôts : du sédiment compacté et ancien se serait ponctuellement déposé sur et sous du sédiment plus récent et peu compacté. Les particules sédimentaires qui se déposent sont plus ou moins marquées au  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  selon qu'elles proviennent de l'érosion des sols (enrichis en  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ) et/ou de l'érosion des fonds sédimentaires plus « âgés » (appauvris en  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ). Pour tous les sites échantillonnés, l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  peut varier d'une tranche de sédiment à l'autre. C'est notamment le cas en k36 où l'enregistrement du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  montre des fluctuations de grande amplitude sur des intervalles étroits : jusqu'à 58 % de variation entre 22 et 24 cm. De même, l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  en surface (0-2 cm) varie entre  $36 \text{ Bq.kg}^{-1}$  (k49) et  $103 \text{ Bq.kg}^{-1}$  (k22). D'autres facteurs sont susceptibles de faire varier l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les sédiments. Le  $^{210}\text{Pb}$  étant principalement apporté par les précipitations humides, ses apports fluctuent avec le temps (Winkler et Rosner, 2000). Les perturbations peuvent aussi être attribuées à des épisodes de dépôt sédimentaire irrégulier et/ou d'érosion d'origine naturelle (Matisoff *et al.*, 2005; Alonso-Hernandez *et al.*, 2006) et/ou humaine (Grousset *et al.*, 1999 ; Klingbeil et Sommerfield, 2005 ; Ruiz-Fernandez *et al.*, 2005 ; Lu et Matsumoto, 2005). D'après l'étude du  $^{137}\text{Cs}$ , le site k36 est favorable à une sédimentation importante. Il est probable que les sédiments déposés en k36 soient capables d'enregistrer toutes les fluctuations des apports en  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les sédiments de la Scarpe. Enfin, la variation de l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$  en surface ( $56\text{-}127 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) suggère une hétérogénéité dans les propriétés intrinsèques des particules sédimentaires et/ou une hétérogénéité dans les apports de  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  à la surface des sédiments.

Dans les sédiments peu compactés, la détermination de la vitesse de sédimentation se fait à partir de la décroissance du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  en profondeur. Lorsque la sédimentation est régulière et homogène, le profil vertical du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  (ou  $^{210}\text{Pb}_{\text{total}}$ ) en fonction de la profondeur montre

une décroissance exponentielle. Bien que dans la Scarpe, les profils verticaux de décroissance soient perturbés et que, par conséquent, l'hypothèse d'une sédimentation homogène est peu valide, le calcul de la vitesse de sédimentation permet néanmoins d'obtenir un ordre de grandeur. La vitesse de sédimentation a été calculée à partir de la variation des activités du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  en fonction de la profondeur dans les sédiments récents et peu compactés. La profondeur est rapportée à une unité de surface (en  $\text{g.cm}^{-2}$ ) afin de s'affranchir des effets de compaction des sédiments<sup>4</sup> (figure 3.7).

L'allure des profils verticaux est semblable à une décroissance exponentielle de l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  avec la profondeur. L'activité du  $^{210}\text{Pb}$  décroît avec le temps et donc avec la profondeur de manière exponentielle ; c'est la base de cette méthode radioactive de datation<sup>5</sup>.

La figure 3.8 présente la variation du logarithme de l'activité en  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  en fonction de la profondeur pour les sédiments non compactés et récents : k06 (0-18 cm), k09 (0-32 cm), k13 (0-20 cm), k47 (0-22 cm), k16, k22 et k36. La régression linéaire a porté sur un maximum de valeurs tout en favorisant un coefficient de corrélation élevé. Le flux de sédimentation qui en résulte n'est certes pas représentatif de la sédimentation sur toute la profondeur considérée mais permet néanmoins de rendre compte des flux de sédimentation s'effectuant sur une portion de sédiment dans laquelle l'accumulation sédimentaire paraît uniforme et donc exploitable. Lorsque les échantillons s'écartant de la tendance principale ne sont pas pris en compte dans le traitement des données (symbolisés par une croix sur le graphique) : c'est notamment le cas pour k06, k09 et k49. En k22, les profils verticaux du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  montrent une sédimentation irrégulière caractérisée par deux périodes d'accumulation avec des vitesses de dépôt différentes. Un coefficient de corrélation faible ( $< 0,8$ ) témoigne de l'hétérogénéité des apports en  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les sédiments. Le tableau 3.3 recense les flux de sédimentation obtenus pour chaque site échantillonné.

<sup>4</sup> La profondeur massique  $R_z$  (en  $\text{g.cm}^{-2}$ ) tient compte de la porosité et de la masse volumique :

$R_z = E_z \times (1 - \phi) \times \rho$ , où  $E_z$  désigne l'épaisseur de la couche sédimentaire considérée,  $\rho$  la masse

volumique du sédiment sec ( $\text{g.cm}^{-3}$ ),  $\phi$  la porosité  $\phi = \frac{\left(\frac{W}{\rho_{\text{eau}}}\right)}{\left(\frac{W}{\rho_{\text{eau}}} + \frac{(1-W)}{\rho_{\text{sédiment}}}\right)}$  avec  $W$  la teneur en

eau (ici, on fait l'hypothèse que les pores du sédiment ne contiennent que de l'eau).

<sup>5</sup> La loi de radioactivité s'écrit  $A_{(t)} = A_{(t=0)} \exp(-\lambda t)$  où  $A$  désigne l'activité d'un radionucléide au temps  $t$ ,  $\lambda$  la constante radioactive. La constante de radioactivité est homogène à une vitesse de désintégration. Le temps  $t$  reste homogène au rapport d'une longueur sur une vitesse  $t = \frac{z}{v}$  où  $z$  désigne la profondeur (en cm) et  $v$  la vitesse de sédimentation (en  $\text{cm.an}^{-1}$ ).

De même,  $A_{(t)} = A_{(t=0)} \exp(-\lambda t) \Leftrightarrow \ln A_{(t)} = \ln A_{(t=0)} - \lambda t$  où  $\lambda t = \lambda \frac{z}{v}$  avec  $z$  la profondeur (en cm ou  $\text{g.cm}^{-2}$ ) et  $v$  la vitesse de sédimentation ( $\text{cm.an}^{-1}$  ou  $\text{g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ ).

Le tracé d'une droite de régression linéaire sur une courbe  $\ln [A(^{210}\text{Pb}_{\text{xs}})] = f(\text{profondeur})$ , la pente de la droite permet de déterminer la vitesse de sédimentation.

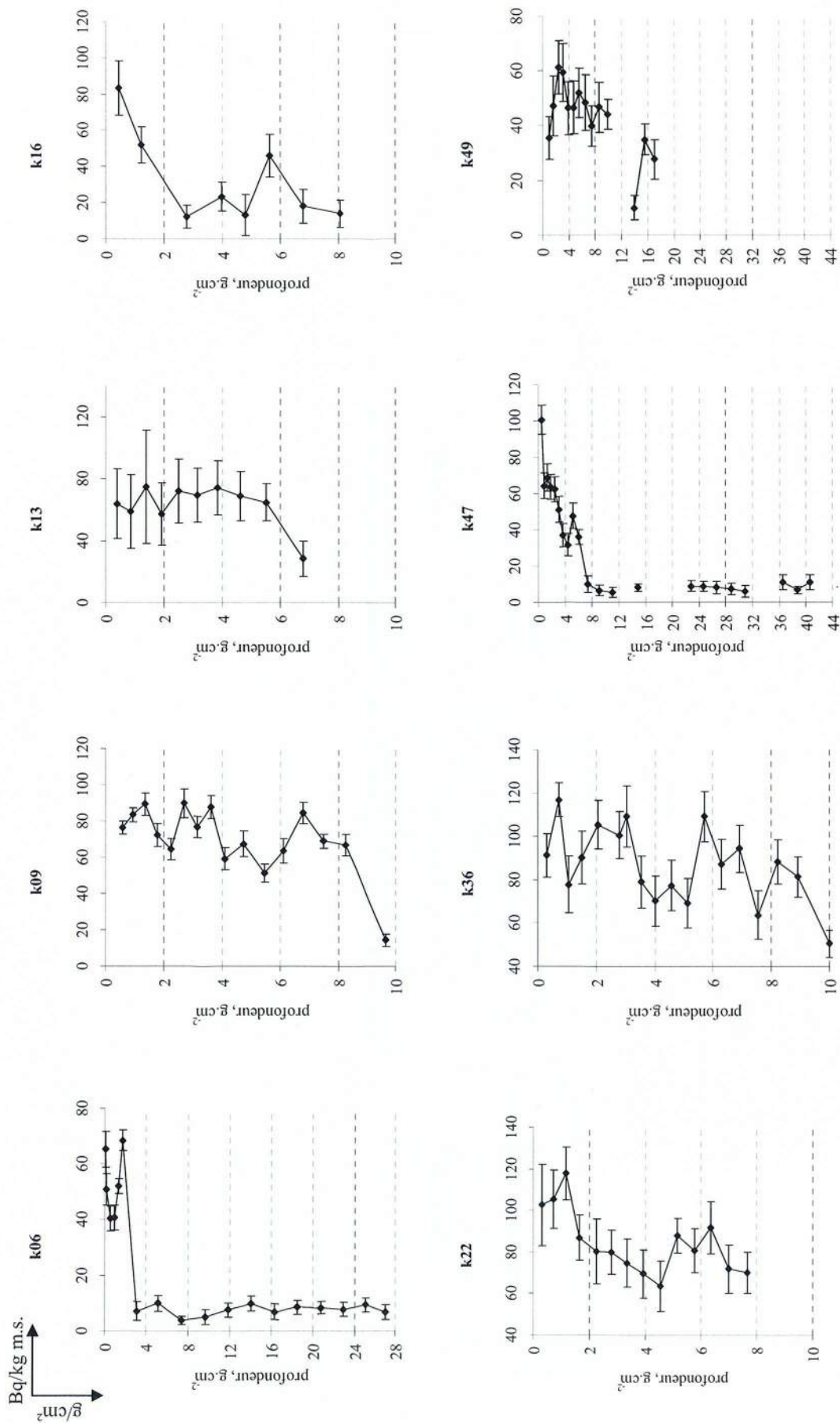


Figure 3. 7 : Variation de l'activité du  $^{210}\text{Pb}_{\text{ss}}$  en fonction de la profondeur dans les sédiments.



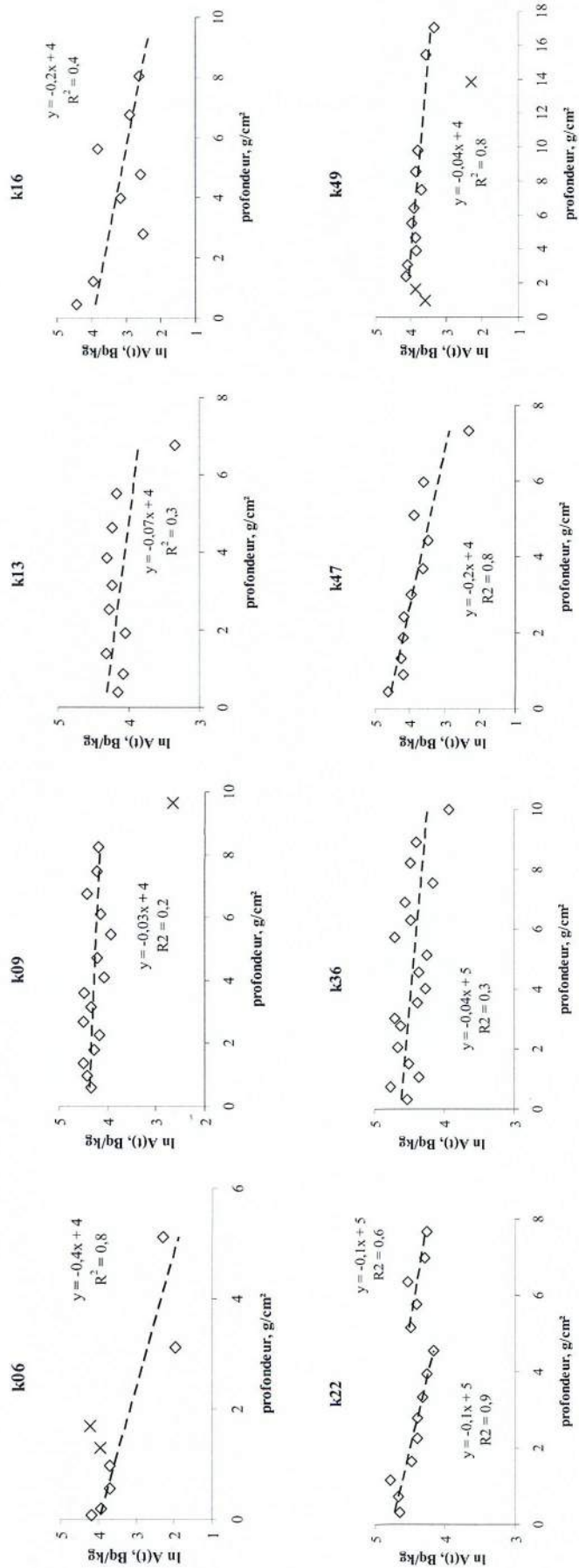


Figure 3. 8 : Variation de  $\ln [A (^{210}\text{Pbxs})]$  en fonction de la profondeur de carotte.

		Vitesse de sédimentation, $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$							
<b>Site :</b>		<b>k06</b>	<b>k09</b>	<b>k13</b>	<b>k16</b>	<b>k22</b>	<b>k36</b>	<b>k47</b>	<b>k49</b>
Couche (cm) :		0-18	0-32	0-20	0-18	0-28	0-36	0-22	0-32
N (points)		6	15	10	8	9-5	18	11	11
$R^2$		0,8	0,2	0,3	0,4	0,9-0,6	0,3	0,8	0,8
<b>V :</b>		<b>0,1</b>	<b>1</b>	<b>0,4</b>	<b>0,2</b>	<b>0,2-0,3</b>	<b>0,8</b>	<b>0,2</b>	<b>0,7</b>

Tableau 3. 3 : Vitesse de sédimentation (en  $\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$ ) dans la Scarpe à partir de la méthode du  $^{210}\text{Pb}$ .

La vitesse de sédimentation varie entre 0,1 (k06) et 1 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup> (k09). L'ordre dans lequel varie le flux de sédimentation obtenu à l'aide du <sup>210</sup>Pb<sub>xs</sub> diffère de celui obtenu à partir du <sup>137</sup>Cs. Il est difficile de conclure avec précision sur l'importance relative de l'accumulation sédimentaire en fonction de la localisation des sites échantillonnés. Cette difficulté reflète celle de caractériser la sédimentation dans une rivière à l'aide des traceurs radioactifs environnementaux. Les environnements propices à l'utilisation des traceurs radioactifs en milieu continental sont généralement des lacs, des réservoirs, où les sédiments sont peu ou pas perturbés. Dans un cours d'eau, la sédimentation est préférentiellement étudiée dans des régions de forte accumulation sédimentaire (à proximité des berges par exemple). Bien que la Scarpe Inférieure soit une rivière canalisée dont le débit est régulé (présence d'écluses) et relativement faible (1 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>), les activités humaines passées ou actuelles contribuent probablement à perturber les dépôts sédimentaires (navigation, curage, présence d'ouvrages hydrauliques, rejets).

En k22 et k16, les vitesses de sédimentation calculées à partir du <sup>210</sup>Pb et du <sup>137</sup>Cs sont équivalentes (0,2-0,3 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>). En k22, la rupture de pente illustre une sédimentation irrégulière où deux périodes de dépôt se succèdent (figure 3.8) : en surface, entre 0 et 5 g.cm<sup>-2</sup>, le sédiment s'est déposé avec une vitesse d'accumulation de 0,2 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>, et en profondeur, entre 5 et 8 g.cm<sup>-1</sup>, le sédiment s'est déposé avec une vitesse d'accumulation de 0,3 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>. Le flux de sédimentation calculé à partir du <sup>137</sup>Cs est du même ordre de grandeur (0,3 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>). D'après la vitesse de sédimentation obtenue à partir du profil de <sup>137</sup>Cs, la couche 18-20 cm daterait de 1988. Or, en 1987, les sédiments de la Scarpe ont été curés dans le secteur d'étude (VNF, communication personnelle). Par conséquent, il est probable que l'enregistrement sédimentaire du <sup>210</sup>Pb ait été perturbé lors de ce curage au niveau de la tranche 18-20 cm (*i.e.* 4,5-5,1 g.cm<sup>-2</sup>) (cf. figure 3.8).

En k36, le flux de sédimentation calculé à partir du <sup>210</sup>Pb (0,8 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>) est supérieur à celui calculé à partir du <sup>137</sup>Cs (0,5 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>). D'après la méthode du <sup>210</sup>Pb, les sédiments se seraient déposés au cours des douze dernières années, entre 1992 et 2004, et n'auraient donc pas pu enregistrer les retombées de Tchernobyl (1986). Or, d'après les données de <sup>137</sup>Cs, les sédiments se seraient déposés entre 1983 et 2004. Il existe un biais entre les vitesses de sédimentation calculées à partir des deux méthodes. L'allure du profil vertical de <sup>137</sup>Cs indique que des phénomènes de mélange ont eu lieu dans la colonne sédimentaire. Les phénomènes de mélange ont nécessairement affecté la distribution du <sup>210</sup>Pb dans les sédiments et auraient ainsi contribué à une surestimation de la vitesse de sédimentation. De plus, l'observation du profil de <sup>210</sup>Pb a montré des fluctuations de plus ou moins grande amplitude qui ont pu entraîner un biais dans le calcul de décroissance.

En k09 et k13, les sédiments peu compactés se sont déposés au cours des 10-15 dernières années d'après les vitesses de sédimentation obtenues à l'aide du <sup>210</sup>Pb<sub>xs</sub>. Les sédiments sont donc trop récents pour avoir pu enregistrer la signature des retombées atmosphériques du <sup>137</sup>Cs provenant de Tchernobyl (1986). D'après l'étude du <sup>137</sup>Cs, un doute subsistait sur l'identification du signal de Tchernobyl car le maximum d'activité du <sup>137</sup>Cs est relativement faible (< 20 Bq.kg<sup>-1</sup>). La méthode du <sup>210</sup>Pb permet d'ôter ce doute : les sédiments n'ont pas enregistré la signature de Tchernobyl car ils sont trop récents. La présence de <sup>137</sup>Cs dans les sédiments peu compactés prélevés en k09 et k13 suggère donc un dépôt récent (< 20 ans). La présence de <sup>137</sup>Cs dans les sédiments postérieurs à l'accident de Tchernobyl peut alors être issue de l'érosion des sols encore marqués en profondeur ou de l'érosion des sédiments contemporains de 1986.

En k06 et k47, les sédiments peu compactés se sont déposés au cours des 40-70 dernières années d'après l'exploitation du <sup>210</sup>Pb<sub>xs</sub>. Les sédiments sont donc suffisamment âgés pour avoir enregistré la signature de l'accident de Tchernobyl. Or, d'après l'étude du <sup>137</sup>Cs, il n'a pas été permis d'identifier les retombées atmosphériques de Tchernobyl dans les sédiments car les activités du <sup>137</sup>Cs sont trop faibles (< 12 Bq.kg<sup>-1</sup>). D'après l'étude du <sup>137</sup>Cs, on a considéré que le dépôt des sédiments était postérieur à 1986. Cependant, d'après le marquage

au  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ , le dépôt des sédiments pourrait aussi être antérieur à 1986. Dans ce cas, la présence de  $^{137}\text{Cs}$  en faible quantité dans les sédiments pourrait aussi être attribuée aux retombées atmosphériques des essais nucléaires qui ont débuté dans les années 50 et qui étaient maximales dans les années 60. En k06 et k47, que le dépôt date de 20 ans ou de 40-50 ans, ce qui est certain, c'est qu'un épisode d'érosion a eu lieu et a effacé la signature de Tchernobyl. En k49, les flux de sédimentation calculés à partir des deux méthodes radioactives sont considérés différents :  $0,1 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$  avec le  $^{137}\text{Cs}$  et  $0,7 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$  avec le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . Le couplage des méthodes du  $^{210}\text{Pb}$  et du  $^{137}\text{Cs}$  ne permet donc pas de conclure sur l'âge des sédiments. La présence de  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments suggère un dépôt relativement récent (<20 ans). Les conditions de dépôts des sédiments en k49 ne sont pas favorables à un enregistrement sédimentaire du  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{137}\text{Cs}$  exploitables. L'histoire du dépôt en k49 semble complexe et de nombreux facteurs ont pu influencer le signal du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}$  : mélange, remise en suspension, nature des sédiments...

## Conclusion

En général, le couplage des deux méthodes radioactives à partir du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  permet de réduire l'incertitude liée à la datation des sédiments (e.g. Jeter, 2000). Dans la Scarpe, les données de  $^{210}\text{Pb}$  et de  $^{137}\text{Cs}$  sont en accord pour la vitesse de sédimentation déterminée en k22 et k16. En k36, le flux de sédimentation a été déterminé à partir du  $^{137}\text{Cs}$  uniquement, car les phénomènes de mélange et les fluctuations dans les apports de  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  ont perturbé l'enregistrement du  $^{210}\text{Pb}$ . Pour les sédiments peu compactés présents en k09 et k13, les résultats du  $^{210}\text{Pb}$  et du  $^{137}\text{Cs}$  sont en accord par rapport à l'âge des sédiments et indiquent une sédimentation rapide. Enfin, l'historique des dépôts sédimentaires des sédiments en k06, k47 et k49 semble plus complexe avec, en k06 et k47, l'intervention d'un épisode d'érosion qui a effacé l'enregistrement sédimentaire de Tchernobyl.

Pour conclure, le  $^{137}\text{Cs}$  est mieux adapté à la quantification des vitesses de sédimentation dans la Scarpe, en raison notamment de son mode de production ponctuelle, alors que l'apport de  $^{210}\text{Pb}$  dépend des facteurs climatiques.

Sur huit carottes prélevées, trois carottes peuvent être retenues pour l'exploitation des vitesses de sédimentation : k16 ( $0,4\text{-}0,6 \text{ cm.an}^{-1}$ ), k22 ( $1,1 \text{ cm.an}^{-1}$ ) et k36 ( $1,7 \text{ cm.an}^{-1}$ ). Ce résultat illustre la difficulté de l'entreprise lorsqu'il s'agit d'utiliser des traceurs radioactifs environnementaux dans les milieux aquatiques continentaux, soumis aux activités humaines de surcroît. Dans la Seine, Le Cloarec *et al.* (en préparation) ont pu exploiter deux carottes sur dix pour déterminer une chronologie de dépôt sur l'ensemble de la colonne sédimentaire.

A titre de comparaison, les flux de sédimentation rencontrés dans les réservoirs sédimentaires varient entre 2 et  $4 \text{ cm.an}^{-1}$  (e.g. Arnason et Fletcher, 2003 ; Audry *et al.*, 2004b), tandis que ceux déterminés dans les lacs naturels restent inférieurs à  $1 \text{ cm.an}^{-1}$  (e.g. Robbins et Edgington, 1975 ; Al-Masri *et al.*, 2002). Dans la Seine, selon l'environnement sédimentaire échantillonné et l'épaisseur de la couche sédimentaire considérée, le flux de sédimentation varie entre  $0,4$  et  $3,5 \text{ cm.an}^{-1}$  (Le Cloarec *et al.*, en préparation), et dans la rivière Fox (Wisconsin, USA) où de nombreux ouvrages hydrauliques sont également présents, la vitesse de sédimentation varie entre  $0,3$  et  $0,5 \text{ cm.an}^{-1}$  (Fitzgerald *et al.*, 2001).

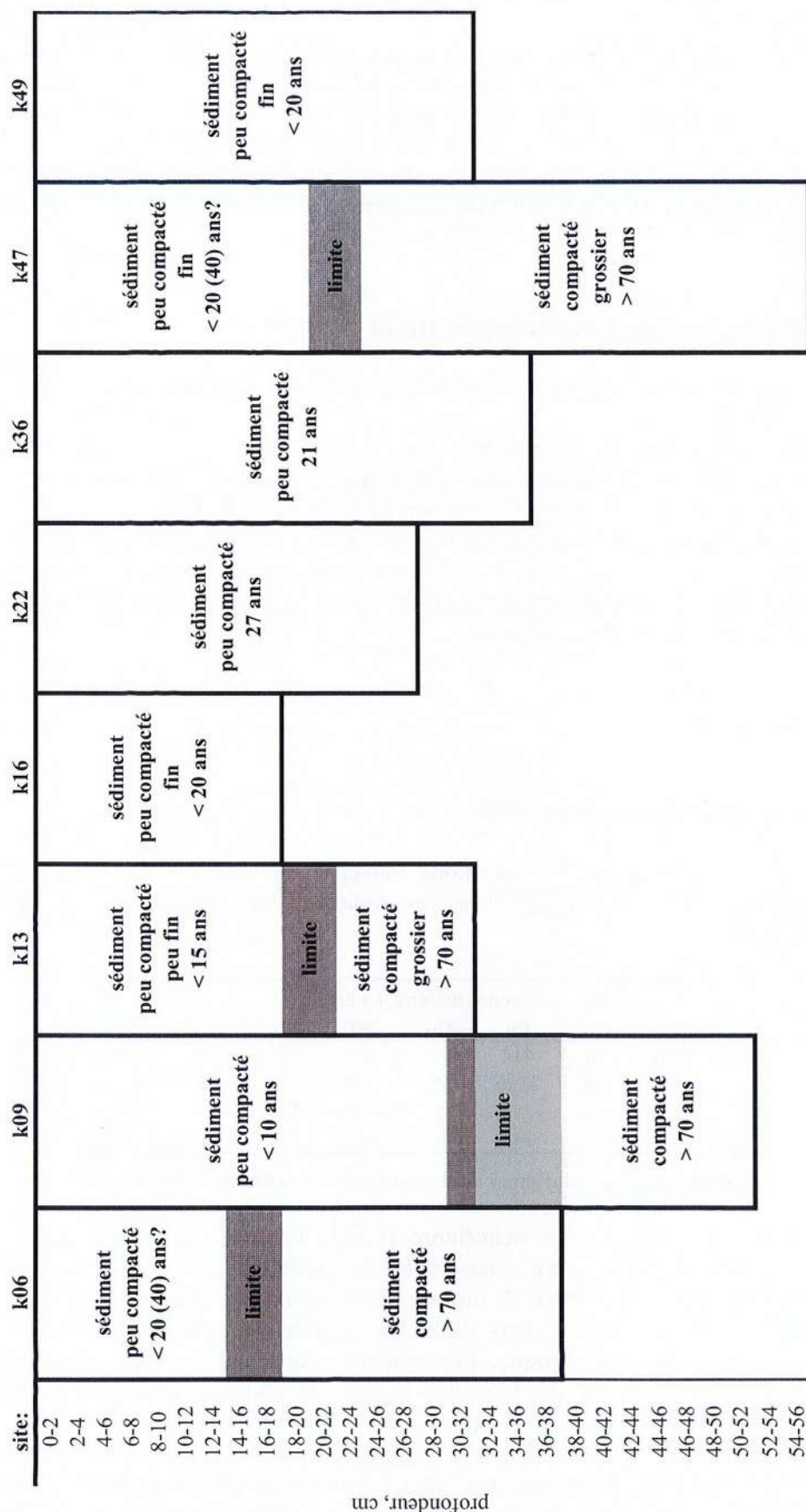


Figure 3. 9 : Représentation schématique des sédiments de la Scarpe en fonction de leurs propriétés physiques et de leur âge.

La figure 3.9 illustre de manière schématique le bilan de l'étude des propriétés physiques (teneur en eau, distribution granulométrique) et de l'âge ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ) des sédiments prélevés dans la Scarpe.

Dans l'ensemble, les sédiments situés dans la couche de surface sont relativement peu compactés, fins et récents (< 30 ans). En k06, k09, k13 et k47, la colonne sédimentaire correspond à la superposition de deux couches sédimentaires déposées à des périodes de temps différentes. L'épaisseur limite correspond aux variations brutales des paramètres mesurés en profondeur. Elle varie entre 4-8 cm de profondeur selon le paramètre considéré. Les phénomènes de mélange et/ou de migration des espèces sont probablement à l'origine de cet étalement.

### 3.3 Contamination des sédiments de la Scarpe

Afin de caractériser le compartiment sédimentaire de la Scarpe, les sédiments ont été analysés pour :

- identifier les principaux contaminants dans les sédiments ;
- déterminer le degré de contamination métallique du matériel sédimentaire ;
- comprendre l'évolution spatiale et temporelle de la contamination.

L'analyse chimique a porté sur les échantillons des carottes prélevées en huit points de prélèvements : k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49. Les teneurs en métaux, en carbone organique, en azote, en soufre et radioéléments ont été déterminées. Toutes les concentrations sont ramenées à la matière sèche des sédiments.

#### 3.3.1 Les métaux

##### 3.3.1.1 Concentrations moyennes

Le tableau 3.4 recense les concentrations moyennes, maximales et minimales en métaux et métalloïde (As), rencontrées dans les sédiments de la Scarpe (n = nombre d'échantillons analysés).

	Concentrations des métaux, en mg.kg <sup>-1</sup>									
	As	Zn	Cd	Pb	Co	Ni	Mn	Cr	Ti	Cu
<b>moyenne</b>	24	2270	70	414	11	40	291	69	531	228
<b>maxima</b>	185	12948	588	2396	19	75	733	107	851	497
<b>minima</b>	4	28	<4	<4	5	13	117	21	119	<3
<b>n</b>	133	143	143	143	76	143	143	143	100	143

Tableau 3. 4 : Concentrations moyennes des métaux dans les sédiments de la Scarpe.

Le Zn constitue l'élément métallique majoritaire présent dans les sédiments avec une concentration maximale observée pour l'ensemble des sédiments et dans les couches sédimentaires les plus riches en métaux. A titre de comparaison, le tableau 3.5 recense les concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans différents systèmes aquatiques soumis à une pollution métallique d'origine anthropique. Les systèmes aquatiques ont été sélectionnés selon qu'ils étaient soumis à des activités humaines industrielle ou minière. Située à l'aval de Douai, la Deûle est une rivière canalisée qui a hérité des rejets de l'usine Metaleurop (fonderie de plomb). En France, la Seine a subi les pressions humaines liée à une industrie lourde, aux activités urbaines, mais pas aux activités minières (Thévenot *et al.*, 2007 ; Meybeck *et al.*, 2007 ; Le Cloarec *et al.*, en préparation). En Angleterre, les sédiments présentés ont été pollués par l'industrie du plomb (Hutchinson et Rothwell, 2007), par les

activités urbaines et industrielles ou la présence de minerais de Pb-Zn (Walling *et al.*, 2003). Dans la zone frontalière de la Belgique, de l'Allemagne et des Pays-Bas, les sédiments présentent des teneurs élevées en métaux en raison de l'industrie des métaux. Les sédiments du Lot ont enregistré une contamination métallique (Zn, Cd) historique associée à un vaste complexe industriel (mines de charbon, exploitation minerais de zinc) dans le Sud-Est de la France (Decazeville) (Audry *et al.*, 2004b). En Espagne, les sédiments de l'Odiel et de la Guadamar sont soumis à des effluents d'origine minière. Au Sud-Est du Brésil, l'urbanisation est dense et la présence d'un complexe industriel (pétrochimie, sidérurgie, engrais) a contribué à la contamination des sédiments de canaux.

Milieu aquatique	Zn (mg.kg <sup>-1</sup> )			Cd (mg.kg <sup>-1</sup> )			Pb (mg.kg <sup>-1</sup> )			Cu (mg.kg <sup>-1</sup> )			Référence
	moy.	max.	min.	moy.	max.	min.	moy.	max.	min.	moy.	max.	min.	
Croûte continentale superficielle	52			0.1			17			14.3			Wedepohl (1995)
La Deûle (surface)	7066	19600	47	539	3020	0.8	5592	19900	11	210	780	8	Gabelle (2006)
La Seine (plaine d'inondation)	447	1479	91	4.6	44	0.3	127	513	36	78	390	26	Le Cloarec <i>et al.</i> (en prép.)
Rivers Aire/Calder, Royaume-Uni		907	274				343	90		235	118		Walling <i>et al.</i> (2003)
River Swale, Royaume-Uni		1850	775				1471	689		92	33		Walling <i>et al.</i> (2003)
River Sheaf, Royaume-Uni	503	1130	54				803	2132	167	57	107	6	Hutchinson et Rothwell (2007)
Le Lot, Carjac	4430	10000	909	125	294	12.6	523	1280	111	98	264	41	Audry <i>et al.</i> (2004)
Le Lot, Temple	949	7230	82	20	1180	0.6	105	593	31	30	78	17	Audry <i>et al.</i> (2004)
Le Lot, Marcenac	134	206	82	0.8	1	0.3	44	68	28	27	42	18	Audry <i>et al.</i> (2004)
Guadamar River, Espagne	1421	2970	590	4	9	2	127	250	51	165	265	98	Lacal <i>et al.</i> (2003)
Odiel River, Espagne	954	3150	143	8.5	68	0.35	649	1140	46	1282	2920	54	Morillo <i>et al.</i> (2002)
Canal de Santos, Brésil	113	154	73	<0.1	<0.1		35	66	22	167	<0.1		Cesar <i>et al.</i> (2007)
Canal de Sao Vicente, Brésil	50	67	33	<0.1	<0.1		12	15	9	69	<0.1		Cesar <i>et al.</i> (2007)
La Scarpe Inférieure	2300	13000	28	70	600	<4	400	2400	400	230	500	<3	cette étude

**Tableau 3. 5 : Concentrations en Zn, Cd, Pb et Cu mesurés dans les sédiments prélevés dans différents systèmes aquatiques soumis aux activités humaines (industrielle, urbaine, minière).**

Dans la Scarpe, les concentrations en Zn et en Pb sont les plus élevées en comparaison avec les autres cours d'eau, exception faite de la Deûle. La concentration maximale de Cu dans la Scarpe reste supérieure aux valeurs maximales enregistrées dans la Seine et dans le Lot. La concentration maximale en Cd (600 mg.kg<sup>-1</sup>) reste inférieure à celle rencontrée dans le Lot (Temple). Pour tous les métaux (Zn, Pb, Cd et Cu), les sédiments de la Scarpe sont tout de même moins pollués que ceux du canal voisin, le canal de la Deûle. Dans la Deûle, c'est à proximité du site de Metaleurop que les sédiments ont été prélevés (Gabelle, 2006). Dans la Deûle, les sédiments de surface sont dignes des régions où sont présents les minerais de métaux (*e.g.* Young *et al.*, 2007, *ca.* Pb : 26 000 mg.kg<sup>-1</sup> et Zn : 3 700 mg.kg<sup>-1</sup> en Angleterre).

### 3.3.1.2 Degré de contamination

Afin d'évaluer le degré de contamination des sédiments dans la Scarpe, nous nous proposons de calculer le Facteur d'Enrichissement Géochimique (= FEG) selon l'équation :

$$FEG = \frac{\left( \frac{[M]}{[Al]} \right)_{\text{échantillon}}}{\left( \frac{[M]}{[Al]} \right)_{\text{fond géochimique}}}$$

Il s'agit d'un critère permettant d'illustrer l'état de contamination environnemental des sédiments en raison des activités d'origine anthropique (Feng *et al.*, 1997 ; Lee *et al.*, 2003 ; Huang *et al.*, 2003 ; Audry *et al.*, 2004b ; Feng *et al.*, 2004 ; Grosbois *et al.*, 2005 ; Mil-Homens *et al.*, 2006 ; Meybeck *et al.*, 2007 ; Le Cloarec *et al.*, en préparation). Le FEG correspond au rapport entre les concentrations en métaux et en aluminium pour chaque échantillon, normalisé au rapport déterminé dans le fond géochimique. L'aluminium est utilisé en tant qu'élément de référence par rapport aux éléments métalliques car il est

immobile dans les conditions environnementales (Lee *et al.*, 2003), peu soumis à l'influence d'origine anthropique (Grosbois *et al.*, 2005) et souvent utilisé (*e.g.* Feng *et al.*, 2004 ; Grosbois *et al.*, 2005, Lee *et al.*, 2003 ; Huang *et al.*, 2003 ; Mil-Homens *et al.*, 2006).

Le fond géochimique, ou référentiel local de concentrations présentes naturellement, peut être déterminé à partir de :

- l'analyse des sédiments superficiels prélevés en zone supposée non contaminée (amont des cours d'eau par exemple) (*e.g.* Audry *et al.*, 2004b) ;
- l'analyse statistique d'un grand nombre de prélèvements à l'échelle du bassin versant ou d'un ensemble de bassins versants, dans les sols par exemple (*e.g.* Le Cloarec *et al.*, en préparation) ;
- l'analyse des couches profondes d'une carotte de sédiment (*e.g.* Grousset *et al.*, 1999 ; Blasco *et al.*, 2000).

Dans le calcul du FEG pour les sédiments de la Scarpe, le fond géochimique correspond au bruit de fond géochimique naturel et local obtenu à partir de l'analyse des sédiments vieux et profonds dans le secteur étudié de la Scarpe. (cf. § 3.3.1.3). Les valeurs mesurées directement dans la Scarpe ont l'avantage d'être plus représentatives. Le tableau 3.6 présente les valeurs de FEG obtenues dans les sédiments de la Scarpe pour l'As, le Zn, le Cd, le Pb, le Cr et le Cu.

Facteur d'Enrichissement Géochimique						
	As	Zn	Cd	Pb	Cr	Cu
moyenne	1	19	16	12	1	7
maxima		85	105	55		13

Tableau 3. 6 : Facteur d'Enrichissement Géochimique (= FEG) moyen dans les sédiments.

Si la valeur du FEG est comprise entre 0,5 et 1,5, la présence des métaux peut être issue uniquement des matériaux d'origine crustale ou du processus naturel de lessivage (*e.g.* Feng *et al.*, 2004). Cependant, si la valeur du FEG est supérieure à 1,5, une fraction significative des métaux provient de matériaux d'origine non crustale ou de processus de lessivage non naturels ; les métaux sont alors issus d'une autre source.

Dans les sédiments de la Scarpe, en moyenne, il n'y a pas d'enrichissement géochimique observé dans les sédiments pour l'As et le Cr, bien que certaines carottes présentent localement un enrichissement en As et Cr (cf. annexe 2.1.5). En revanche, le Zn, le Cd, le Pb et le Cu sont des éléments pour lesquels le FEG est supérieur à 1,5 : ils constituent ainsi les principaux contaminants métalliques dans les sédiments de la Scarpe. Le FEG moyen varie dans l'ordre Zn > Cd > Pb > Cu.

A titre de comparaison, dans la Seine, le FEG maximal calculé est de 8 pour le Zn, 6 pour le Cd, 13 pour le Pb et 8 pour le Cu (Grosbois *et al.*, 2005). Pour les quatre contaminants, les sédiments de la Scarpe sont donc plus pollués que ceux de la Seine.

Le FEG est un indice permettant de mettre en évidence la contamination d'un milieu due aux activités humaines, mais il ne permet pas d'illustrer les conséquences de la présence des contaminants sur l'écosystème (dangerosité, toxicité). En outre, dans la Scarpe, le FEG n'a pu être déterminé pour d'autres éléments métalliques (Ti, Ni, Hg, Co...) et une contamination en ces éléments dans le milieu n'est pas exclue.

Il existe un critère supplémentaire permettant d'illustrer le degré de contamination métallique des sédiments, l'index d'accumulation géochimique *Igéo* défini par (d'après Müller (1979) cité par Förstner *et al.* (1995)) :

$$I_{géo} = \log_2 \frac{[M]_{sédiment}}{1,5 \times [M]_{fond\ géochimique}}$$
. Sa valeur est associée à une classification de la contamination des sédiments (tableau 3.7).

<b>Igéo</b>	<b>degré de contamination</b>
>5	pollution sévère
4-5	forte à sévère pollution
3-4	forte pollution
2-3	pollution modérée à forte
1-2	pollution modérée
0-1	pollution modérée à absente
<0	pollution absente

**Tableau 3. 7 : Classification de la pollution associée à l'index d'accumulation géochimique *Igéo*.**

Le calcul de *Igéo* dans les sédiments de la Scarpe vaut en moyenne 4 pour le Zn, 3 pour le Pb, le Cd et le Cu. D'après la classification de pollution proposée, les sédiments de la Scarpe sont « fortement pollués » en Zn, Pb et Cd et dans une moindre mesure pour le Cu (« pollution modérée à forte »). Globalement, le degré de contamination des sédiments varie dans l'ordre Zn > Pb > Cd > Cu. Cependant, l'*Igéo* peut varier d'une couche sédimentaire à l'autre avec des valeurs inférieures à 0 et des valeurs maximales de 4 pour le Cu, 7 pour le Zn et le Pb, et 8 pour le Cd (cf. annexe 2.1.5).

Les différents indices présentés (FEG, *Igéo*) sont des critères permettant d'illustrer l'impact d'une histoire industrielle très riche dans la région. Néanmoins, ils ne renseignent pas sur l'interprétation écotoxicologique des résultats, car ces critères :

- ne prennent pas en compte d'éventuelles synergies et/ou antagonismes entre polluants ou entre polluants et d'autres substances ;
- ne tiennent pas compte des caractéristiques du milieu récepteur plus ou moins pollué et donc plus ou moins sensible à une pollution supplémentaire ;
- ne surpondèrent pas les spéciations les plus toxiques ;
- ne différentient pas non plus la biodisponibilité des polluants.

### 3.3.1.3 Profils verticaux

Après avoir identifié les quatre principaux contaminants métalliques (Zn, Pb, Cd, Cu) dans le système aquatique, nous nous proposons de caractériser la distribution des métaux en profondeur dans les sédiments. Les concentrations en contaminants métalliques (Zn, Pb, Cd, Cu) ont été déterminées dans les sédiments de la Scarpe prélevés en k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49. Les figures 3.10-13 illustrent les profils verticaux de concentrations pour, respectivement le Zn, le Pb, le Cd et le Cu.



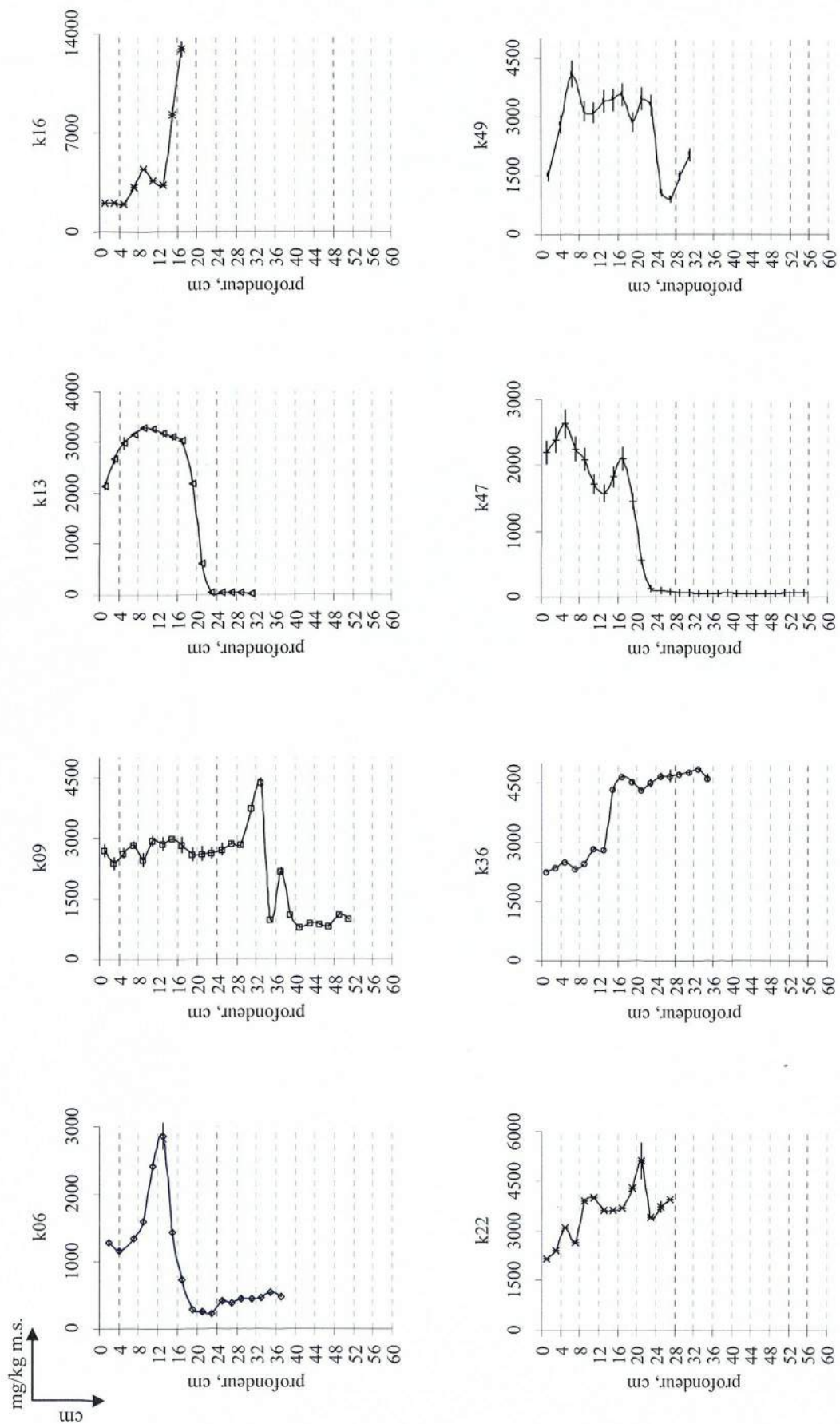


Figure 3. 10 : Concentration en Zn en fonction de la profondeur dans les sédiments.

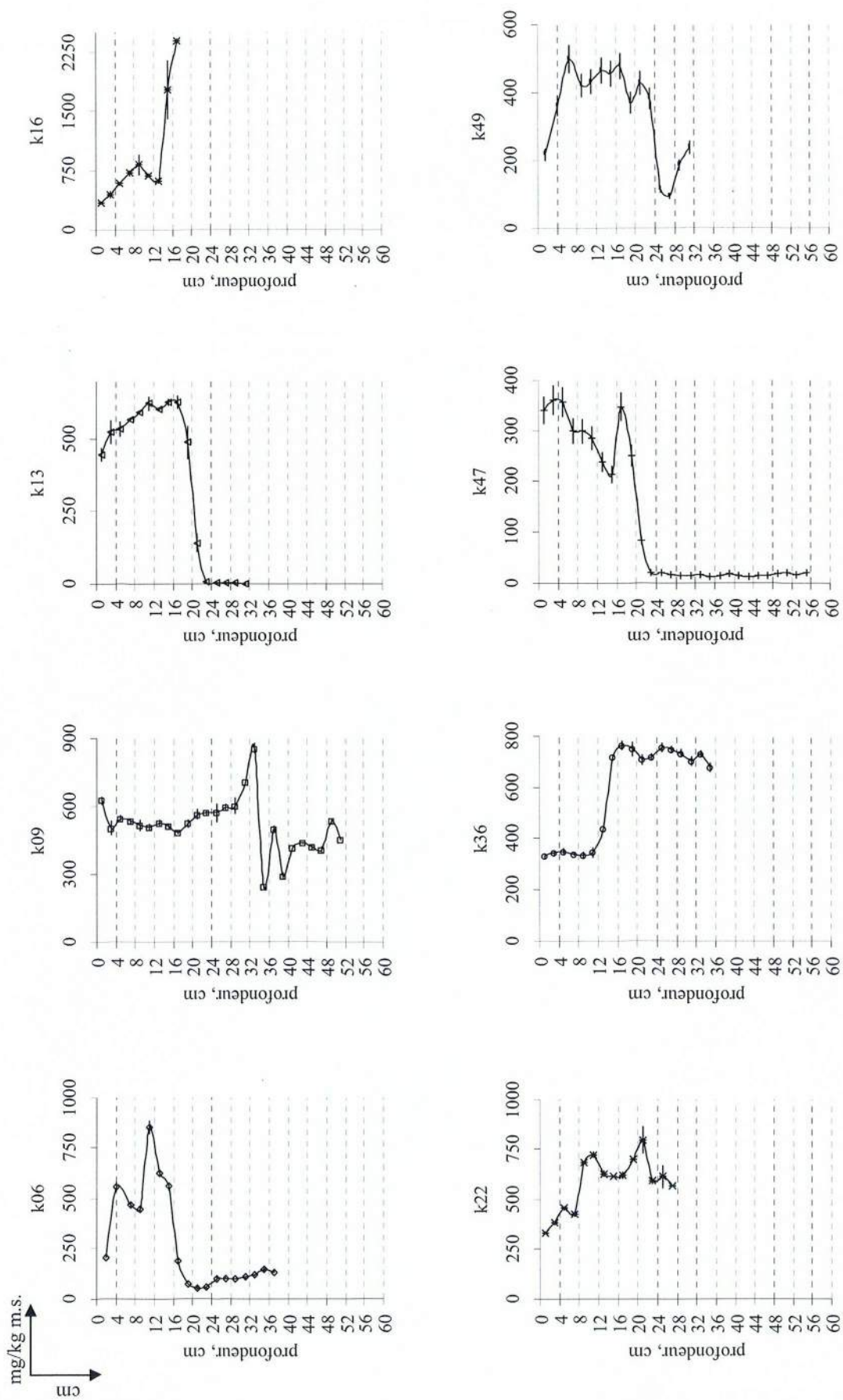


Figure 3. 11 : Concentrations en Pb en fonction de la profondeur dans les sédiments.

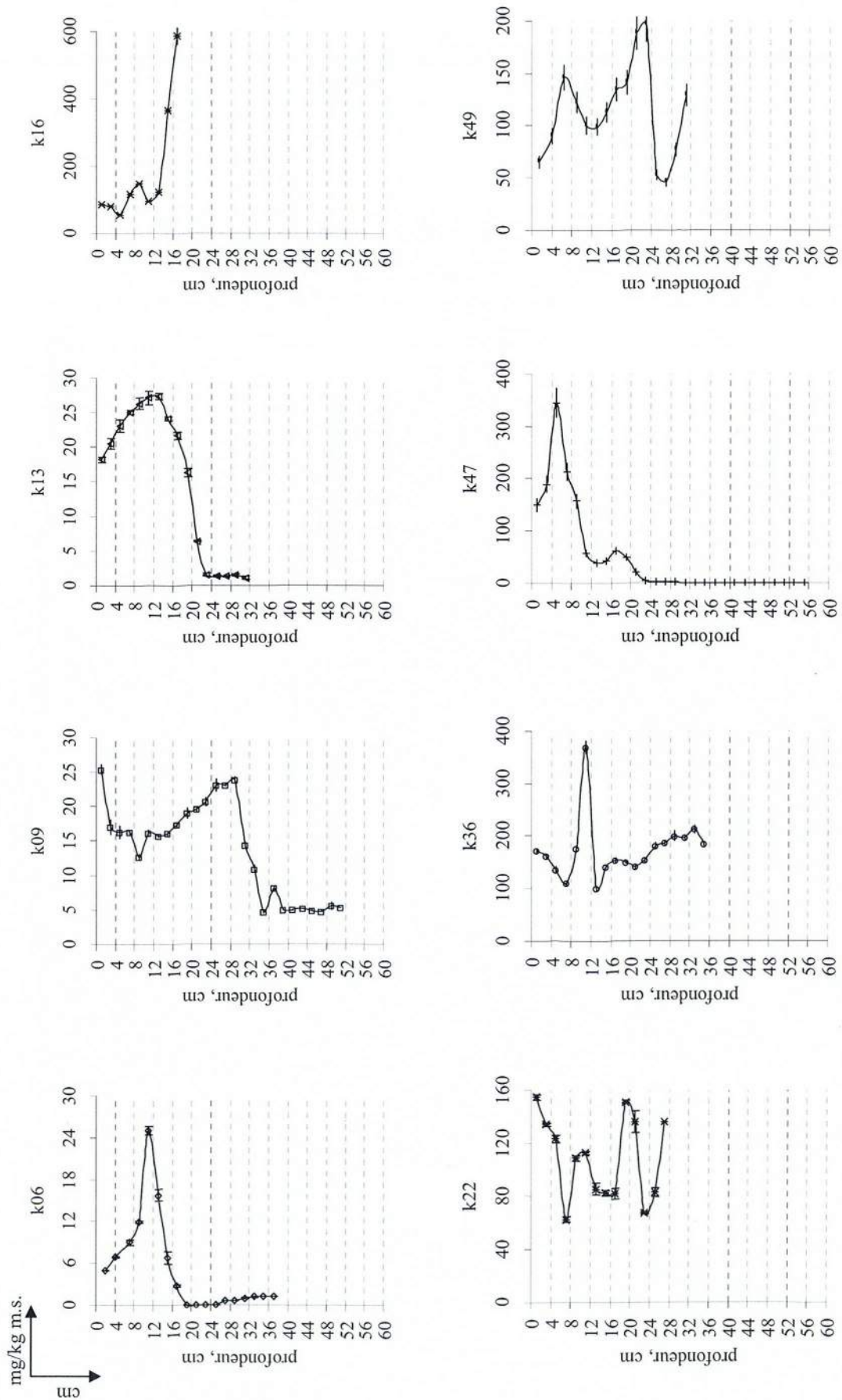


Figure 3. 12 : Concentrations en Cd en fonction de la profondeur dans les sédiments.

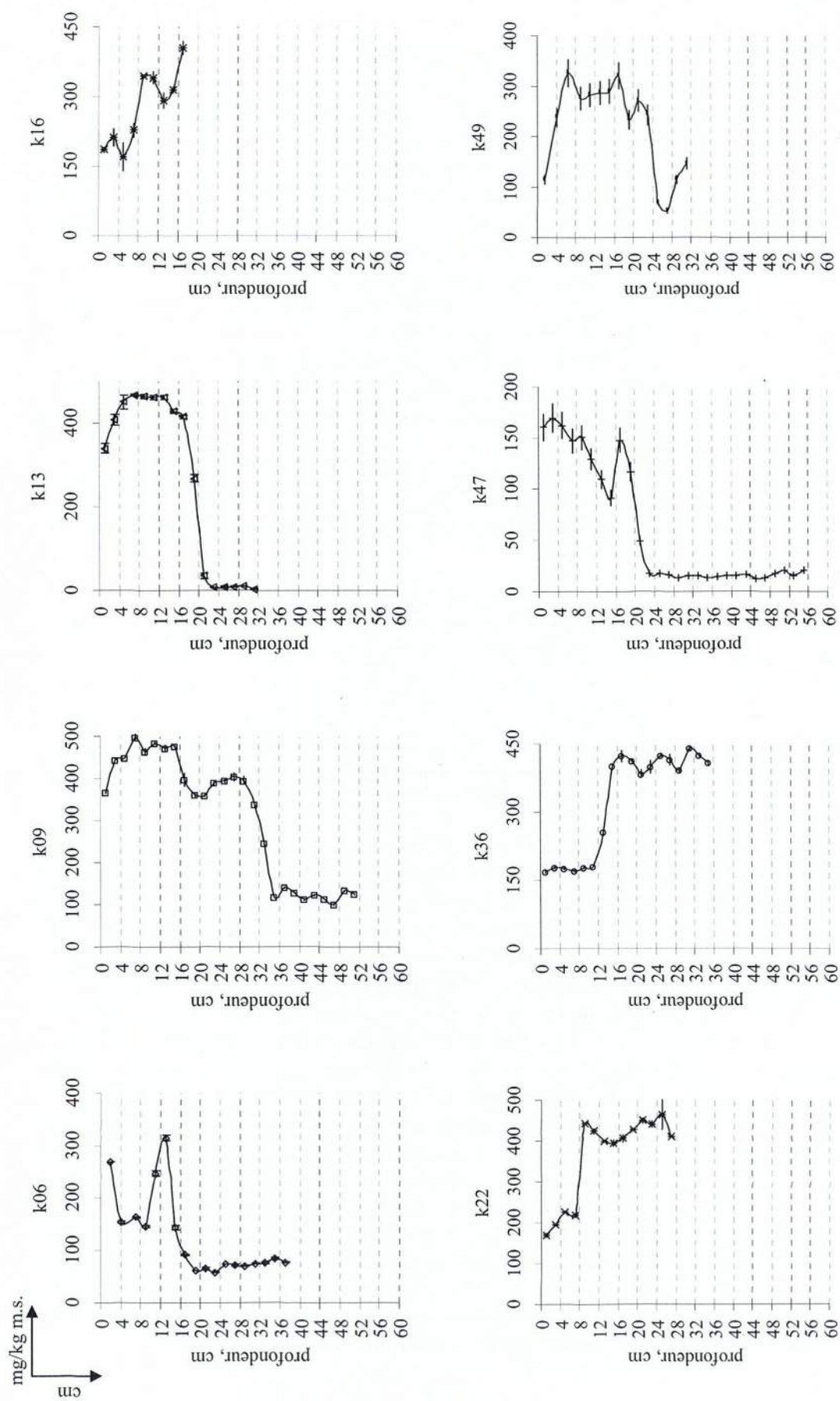


Figure 3. 13 : Concentrations en Cu en fonction de la profondeur dans les sédiments.

**Sédiments compactés et anciens**

En k06, k09, k13 et k47, l'étude des propriétés physiques et de l'âge des sédiments a mis en évidence une rupture dans la nature des sédiments déposés en chaque site. Cette rupture est également illustrée à partir des profils verticaux des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu. Les sédiments vieux et compactés en k06 (> 18 cm), k09 (> 38 cm), k13 (> 22 cm) et k47 (> 22 cm) ont des concentrations en métaux (Zn, Pb, Cd et Cu) systématiquement inférieures à celles mesurées dans les sédiments peu compactés et plus récents. Les sédiments anciens sont donc moins contaminés que les sédiments plus récents. Cependant, en k09 (> 38 cm), les sédiments situés en profondeur ont des concentrations en Pb relativement élevées (300-540 mg.kg<sup>-1</sup>) et voisines de celles mesurées dans les sédiments de surface (500-630 mg.kg<sup>-1</sup>). De même, les teneurs en Cu restent élevées en profondeur (100-130 mg.kg<sup>-1</sup>). Les concentrations en Zn restent relativement élevées en k06 (220-530 mg.kg<sup>-1</sup>) et en k09 (800-1100 mg.kg<sup>-1</sup>). La contamination métallique n'est donc pas uniquement l'apanage des sédiments récents. A noter que tous ces sédiments anciens contiennent peu ou pas de Cd (< 6 mg.kg<sup>-1</sup>). La contamination du Cd observée dans les sédiments de surface serait donc plus récente que celle du Zn, Pb et Cu.

Les concentrations moyennes des contaminants métalliques présents dans les sédiments compactés et vieux sont présentées dans le tableau 3.8. Les concentrations en Zn, Pb et Cu varient d'un site d'étude à l'autre. Les sédiments situés en profondeur sont hétérogènes entre eux.

site	Concentrations moyennes, mg.kg <sup>-1</sup>							
	Zn	±	Cd	±	Pb	±	Cu	±
k06 18-38cm	389	101	<4		100	32	71	8
k09 38-52cm	940	457	5	1	423	72	119	13
k13 22-32cm	36	7	<4		4	2	7	3
k47 22-56cm	63	20	<4		16	3	16	2

**Tableau 3.8 : Concentrations moyennes en contaminants métalliques (Zn, Pb, Cd, Cu) dans les sédiments anciens et compactés de la Scarpe.**

Les concentrations moyennes mesurées dans les sédiments profonds en k13 et k47 sont les plus faibles enregistrées dans l'ensemble du compartiment sédimentaire de la Scarpe. Les sédiments compactés et vieux prélevés en k13 et k47 pourraient s'apparenter au bruit de fond géochimique dans le secteur d'étude. Cependant, ces deux sédiments sont différents. D'une part, l'analyse des teneurs en calcium dans les sédiments prélevés en k13 (cf. annexe 2.1.4) montre des valeurs particulièrement élevées (> 20 %) par rapport à l'ensemble des sédiments prélevés (< 10 %). D'autre part, la teneur en eau des sédiments vieux est la plus faible enregistrée (< 15 %) par rapport à l'ensemble des sédiments prélevés (> 25-30%). Enfin, lors du découpage de la carotte prélevée en k13, les sédiments situés en profondeur étaient manifestement singuliers avec un aspect granulaire et la présence d'amas de couleur laiteuse (Chapitre 2), et très réactifs à l'ajout d'acide chlorhydrique concentré. A partir de l'ensemble de ces observations, la base de la colonne sédimentaire prélevée en k13 correspond à du matériel riche en carbonates provenant certainement d'un substrat différent des sédiments prélevés dans la Scarpe. Les propriétés chimiques de ces sédiments (teneurs en Zn, Pb, Cu, Ca, Al) sont équivalentes à celles mesurées dans le faciès de la Craie (CNRSSP 98/20). Alors que les sédiments profonds prélevés en k47 présentent davantage les caractéristiques chimiques (teneurs en Zn, Pb, Cu, Ca, Al) des alluvions et sédiments récents datant du Quaternaire (CNRSSP 98/20). Par conséquent, seuls les sédiments compactés et vieux prélevés en k47 seront considérés représentatifs d'un bruit de fond géochimique.

### Sédiments peu compactés et récents

Intéressons-nous à présent aux profils verticaux des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans les sédiments récents et peu compactés, c'est-à-dire pour k06 (<14 cm), k09 (<30 cm), k13 (< 18 cm), k16, k22, k36, k47 (< 18 cm) et k49. Deux échantillons se distinguent de l'ensemble du compartiment sédimentaire : il s'agit des tranches 14-16 et 16-18 cm prélevées en k16. Les sédiments à la base de cette carotte sont les plus pollués en Zn ( $13\,000\text{ mg.kg}^{-1}$ ), Pb ( $2\,400\text{ mg.kg}^{-1}$ ) et Cd ( $600\text{ mg.kg}^{-1}$ ). L'analyse granulométrique montre que la base de la carotte a une composition granulométrique différente de l'ensemble de la colonne sédimentaire : la fraction  $> 50\ \mu\text{m}$  passe brutalement de 20 à 60 % à partir de 14 cm. Ces deux échantillons pourraient correspondre à des scories (Isaure *et al.*, 2002). Pour la suite de l'étude, ces deux échantillons ne seront pas pris en compte. La figure 3.14 illustre la variation des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu en fonction de la profondeur massique dans les sédiments peu compactés et récents.

Les concentrations en contaminants métalliques restent élevées à la surface des carottes de sédiments :  $300\text{-}2\,300\text{ mg.kg}^{-1}$  pour le Zn,  $200\text{-}630\text{ mg.kg}^{-1}$  pour le Pb, jusqu'à  $170\text{ mg.kg}^{-1}$  pour le Cd et  $340\text{ mg.kg}^{-1}$  pour le Cu. Cette contamination de surface atteste de la persistance et de la rémanence d'une pollution actuelle dans la Scarpe. L'évolution des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu varie avec la profondeur, selon le site échantillonné, et selon le métal considéré.

- Comparaison amont-aval : Les concentrations en Cd deviennent nettement plus élevées dans les sédiments prélevés à partir de k16 par rapport aux sédiments prélevés entre k06 et k13 : jusque k13, les concentrations en Cd n'excèdent pas  $30\text{ mg.kg}^{-1}$ , tandis qu'elles varient entre 40 et  $370\text{ mg.kg}^{-1}$  à partir de k16 jusque k49. La variation des concentrations en contaminants métalliques entre l'amont et l'aval soulève la question des sources de contamination et du rôle des rejets. Dans les sédiments prélevés en k36, il y a une absence évidente de corrélation entre le Cd d'une part et le Zn, Pb et Cu : alors que les concentrations en Zn, Pb, Cu sont bien corrélées et diminuent avec la profondeur (entre 3 et  $4\text{ g.cm}^{-2}$ , soit 12-14 cm), les concentrations en Cd montrent au contraire un maximum à la même profondeur. Le comportement entre le Cd et les autres métaux est différent et cette différence suggère à nouveau l'existence de sources différentes dans le secteur d'étude. Le rôle de la station de relevage « Vallée de Scarpe » sera commenté par la suite dans le texte.

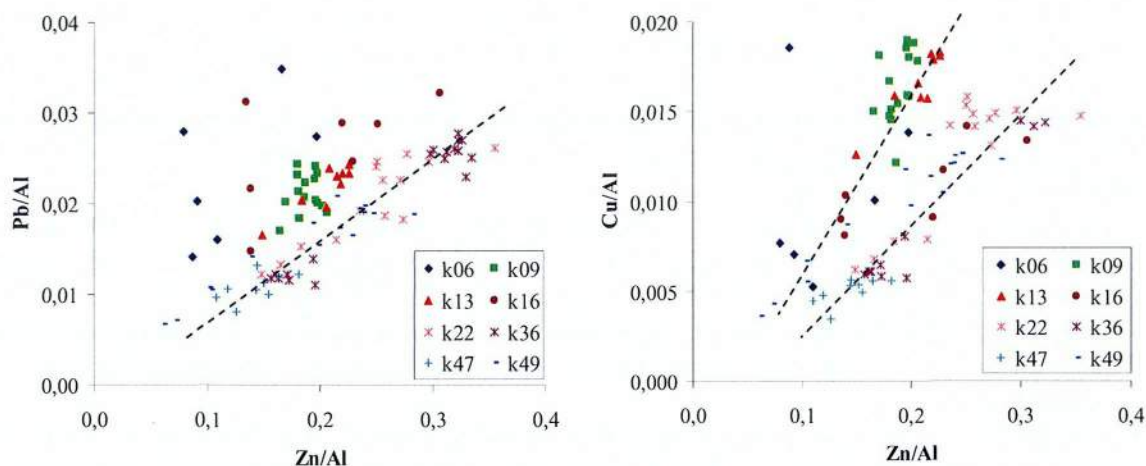


Figure 3. 15 : Relation entre le Zn et le Pb, le Cu normalisés à l'Al dans les sédiments peu compactés.

Il existe une tendance positive entre les teneurs en Pb et Zn et entre le Cu et le Zn dans les sédiments. La corrélation positive entre le Cu et le Zn dans les sédiments suggère une concomitance des apports en Zn, Pb et Cu dans le secteur d'étude. A proximité du secteur (quelques km) d'étude sont situées deux usines importantes de production de métaux non ferreux : Metaleurop à Noyelles-Godault et Umicore à Aubry (Chapitre 2). Ces deux usines spécialisées dans la métallurgie sont responsables de la dissémination des polluants dans les sols par voie atmosphérique (Sobanska, 1999 ; CNRSP 07/01). Le lessivage des sols contaminés alentours a certainement contribué à la dispersion de ces polluants dans les sols et à leur transfert vers la rivière.

La corrélation entre le Pb et le Zn est meilleure dans les sédiments prélevés à partir de k22, en comparaison avec les sites sédimentaires échantillonnés à l'amont qui sont décalés par rapport à la droite de corrélation figurée sur le graphe. Pour la relation Cu vs. Zn, les sédiments prélevés en k06, k09 et k13 semblent s'aligner selon une droite légèrement décalée en comparaison avec k16, k22, k36, k47 et k49, ce qui suggère une évolution amont-aval du rapport Cu/Zn, et donc une contribution probable de différentes sources (type rejet) le long de la portion de canal étudiée.

La figure 3.16 illustre la variation des teneurs en Cd normalisées à l'Al en fonction de la profondeur et du site échantillonné. Cette représentation permet de visualiser l'évolution du Cd dans les sédiments selon une approche amont-aval.

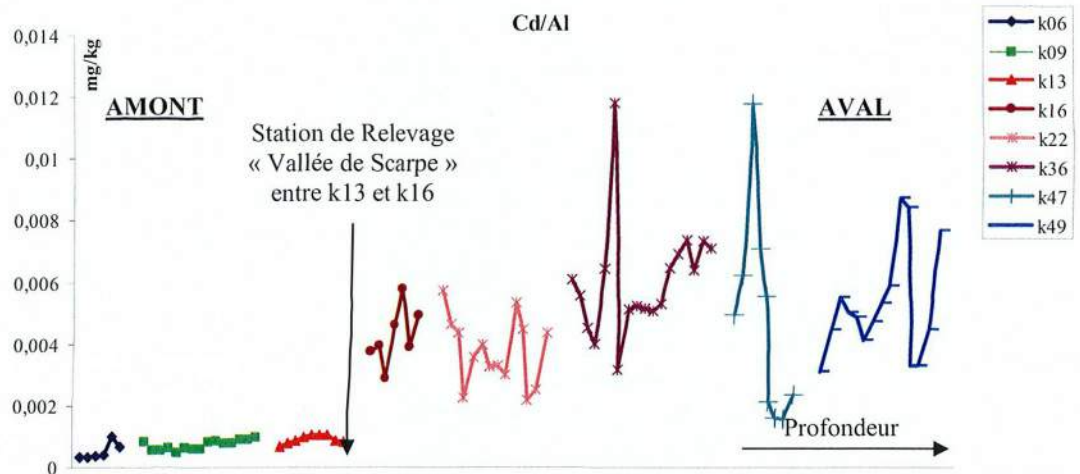


Figure 3. 16 : Evolution de la concentration en Cd dans les sédiments peu compactés et récents en fonction de la profondeur et du site échantillonné.

Entre les sédiments situés en k13 et k16, la contamination en Cd augmente brutalement de manière localisée. Ce type de variation n'a pas été observé de manière aussi nette pour le Zn, le Pb et le Cu dans les sédiments. Entre k13 et k16, se situe le rejet de la station de relevage « Vallée de Scarpe ». C'est une station de relevage d'eaux d'origine pluviale (Chapitre 2). Dans le cadre du suivi de terrain (cf. chapitre 2), les matières en suspension ont été prélevées dans la Scarpe en k13, k16 et k36, et à l'entrée de la station de relevage, entre mai 2005 et août 2006 (chapitre 2). Les concentrations en polluants métalliques ont été déterminées et sont présentées dans le tableau 3.9. Les particules rejetées par la station de relevage sont contaminées en Zn, en Pb, en Cu et surtout en Cd. Les concentrations peuvent atteindre  $\sim 3\,600\text{ mg.kg}^{-1}$  en Cd,  $17\,300\text{ mg.kg}^{-1}$  en Zn,  $600\text{ mg.kg}^{-1}$  en Pb, et  $450\text{ mg.kg}^{-1}$  en Cu.

		Concentrations en polluants métalliques dans les matières en suspension, mg/kg														
Polluant	Site	19/05/05	16/06/05	06/07/05	17/08/05	29/09/05	02/11/05	01/12/05	10/01/06	16/02/06	22/03/06	26/04/06	31/05/06	05/07/06	17/08/06	
Zn	k13	1565	1451	1372	1360	1090	1084					1037	1015	1228	970	1152
	k16	3332	2733	3785	2251	1667	1575		1791	2156	1899	1384	2427	2679	1502	
	k36			3992	3050	2588	2722	2565	1913			2297	2175	2765	2503	2584
	SR				17328	16331	13242	14721						16009	14995	
Cd	k13	17	26	11	11	11	12				8	9	9	5	10	
	k16	321	244	319	157	71	64		90	110	72	37	73	104	24	
	k36			316	271	207	217	211	149		119	132	146	158	139	
	SR				3636	2023	1159	1727						906	867	
Pb	k13	377	347	308	358	293	337				286	291	324	294	334	
	k16	387	362	393	358	315	339		337	311	298	288	348	335	337	
	k36			417	433	409	419	376	330		323	325	388	364	390	
	SR				582	539	268	511					547	575		
Cu	k13	222	216	186	196	157	164				155	150	154	139	140	
	k16	210	207	197	193	168	178		168	166	158	158	170	201	160	
	k36			229	241	231	224	201	164		183	186	183	201	183	
	SR				374	359	181	298					452	425		

Tableau 3. 9 : Concentrations en Cd, Pb, Zn et Cu dans les matières en suspension prélevées dans la Scarpe en k13, k16 et k36, et à l'entrée de la station de relevage, entre mai 2005 et août 2006.

Entre k13 et k16, les concentrations varient au maximum d'un facteur 1,3-1,5 pour le Pb et le Cu, d'un facteur 3 pour le Zn et 30 pour le Cd. Dans la Scarpe, une fraction des polluants métalliques provient de l'amont du cours d'eau et une fraction est apportée par la station de relevage. L'apport de Cd par la station de relevage est particulièrement important, en comparaison avec les autres polluants. C'est pour cette raison que l'impact de la station de relevage sur la contamination des sédiments situés à l'aval du rejet n'est évident que dans le cas du Cd (cf. figure 3.16), en comparaison avec le Zn, le Pb et le Cu.



Le refoulement des eaux d'origine pluviale vers la Scarpe est responsable de la dégradation de la qualité du milieu aquatique car elle apporte du Cd, du Zn, du Pb et du Cu. Cependant, une station de relevage d'eaux pluviales n'est pas un site classé et soumis à une réglementation particulière (*i.e.* non recensée par la DRIRE). La station de relevage « Vallée de Scarpe » refoule vers la Scarpe des eaux qui ne s'écoulent pas naturellement par gravité vers les exutoires naturels (cf. chapitre 2). La Scarpe est une rivière perchée et de nombreux affaissements aux alentours sont liés à l'exploitation dans le passé du charbon dans le bassin minier. De nombreuses zones marécageuses sont présentes et l'industrie métallurgique a favorisé la dissémination des polluants dans les sols. Les eaux de ruissellement drainent les sols contaminés et charrient avec elles leur lot de pollution. Aucun traitement des boues n'est prévu au niveau de la station. La station de relevage était la propriété de Charbonnages de France avant leur liquidation (en 2007), et la maintenance du site est assurée par la Société des Eaux de Douai (filiale de Veolia depuis peu).

Il est intéressant (et préoccupant) de constater qu'une pollution historique des sols constitue actuellement une source de pollution dans le cours d'eau.

### 3.3.1.4 Historique de la pollution métallique

A partir des flux de sédimentation et des teneurs en contaminants métalliques mesurés dans les sédiments, il est possible d'établir l'historique d'une contamination dans un système aquatique liée à des activités industrielles (Mil-Homens *et al.*, 2006 ; Di Gregorio *et al.*, 2007 ; Cantwell *et al.*, 2007 ; Le Cloarec *et al.*, en préparation) et/ou minières (Grousset *et al.*, 1999 ; Ligerio *et al.*, 2002 ; Audry *et al.*, 2004b). Dans les sédiments de la Scarpe, les flux de sédimentation ( $^{137}\text{Cs}$ ) ont permis d'établir une chronologie de dépôt sur l'ensemble de la colonne sédimentaire en k16 ( $< 1\text{cm.an}^{-1}$ ), k22 ( $1,1\text{cm.an}^{-1}$ ) et k36 ( $1,7\text{cm.an}^{-1}$ ), à laquelle peut être associée l'histoire d'une contamination. La figure 3.17 représente l'évolution historique de l'indice *Igéo* pour la contamination métallique (Zn, Pb, Cd, Cu) dans les sédiments prélevés en k22 et k36. On a choisi de présenter ces deux sites sédimentaires (et pas k16) car le dépôt y est important ( $> 20\text{cm}$ ), peu perturbé (la teneur en eau varie peu), et la vitesse de sédimentation élevée ( $1\text{ à }2\text{cm.an}^{-1}$ ).

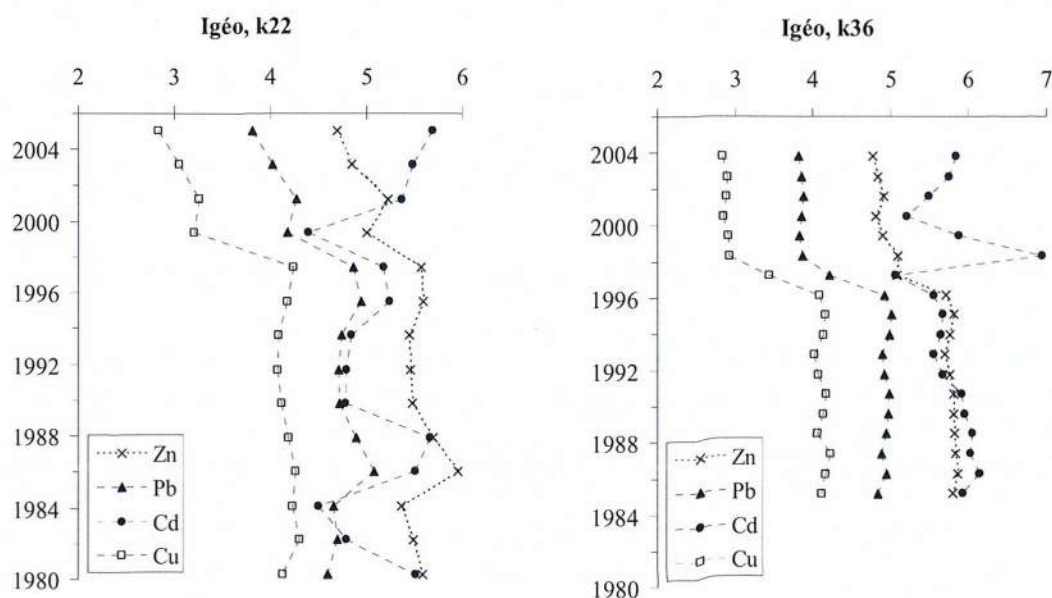


Figure 3. 17 : Evolution de l'indice *Igéo* de la contamination métallique en fonction de la chronostratigraphie sédimentaire (déduite du  $^{137}\text{Cs}$ ) en k22 et k36.

Dans les sédiments prélevés en k22 et en k36, l'évolution de *l'Igéo* montre une diminution avec la profondeur (excepté pour le Cd) : les sédiments âgés sont plus contaminés que les sédiments de surface, plus récents. Il existe un seuil de coupure vers 1998 pour k22 et 1996 pour k36, pour lequel *l'Igéo* varie brutalement. La couche sédimentaire de « profondeur », plus contaminée, correspond à une sédimentation antérieure à 1998 (k22) et 1997 (k36). Il est probable que l'arrêté préfectoral du 2 février 1998 ait joué un rôle dans la diminution des apports en contaminants dans les cours d'eau ; en effet, il s'agit d'un article de référence et de réglementation global pour les sites industriels de la région (DRIRE Nord-Pas-de-Calais, communication personnelle). Dans ce cas, la vitesse de sédimentation estimée pour k36 est légèrement surestimée (décalage d'1 an), tandis que celle de k22 permet un enregistrement sédimentaire des étapes déterminantes de la réglementation en matière de rejets polluants. En revanche, le Cd a une évolution qui se distingue des autres contaminants : *l'Igéo* reste élevé au cours du temps (> 4). En k36, il présente un maximum dans les sédiments déposés en 1998, et, en k22, il varie au cours du temps sans manifester une tendance à l'augmentation ou à la diminution. Alors que le Zn, le Pb et le Cu proviennent de l'amont du canal, l'enrichissement en Cd dans les sédiments est attribué aux rejets de la station de relevage « Vallée de Scarpe ».

### **3.3.2 Le carbone organique**

Les teneurs en Carbone Organique Total (= COT) ont été déterminées dans les huit carottes de sédiment prélevées en k06, k09, k13, k16, k22, k36, k47 et k49. La variation du COT en fonction de la profondeur est présentée pour chaque site dans la figure 3.18.

#### **Sédiments compactés et anciens**

Dans les sédiments compactés et anciens, la teneur en COT varie d'un site à l'autre : entre 10 et 20% en k09 (> 18 cm), et < 1 % en k13 (> 22 cm) et k47 (> 24 cm). Les sédiments prélevés en k06 (> 18 cm) présentent les teneurs les plus importantes mesurées dans l'ensemble du compartiment sédimentaire : 40 % en moyenne avec un maximum à 49% entre 28 et 30 cm. La teneur en matière organique correspond généralement au double de la teneur en COT, soit une teneur en matière organique voisine de 100%. La présence localisée de teneurs importantes en COT suggère l'influence d'un rejet d'origine anthropique. La proximité du site d'échantillonnage avec la station d'épuration rend cette dernière soupçonnable. Cependant, d'après les méthodes de datation ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ), les sédiments compactés se seraient déposés avant 1930. Or, la station d'épuration de la communauté d'agglomération du Douaisis a démarré ses activités qu'à partir de 1967. L'étude de l'origine et de la nature de ce carbone organique nécessite d'être approfondie : existait-il un rejet urbain direct à cet endroit ? N'est-ce que de la matière organique ? Peut-il aussi s'agir de fioul ou de goudrons... ?

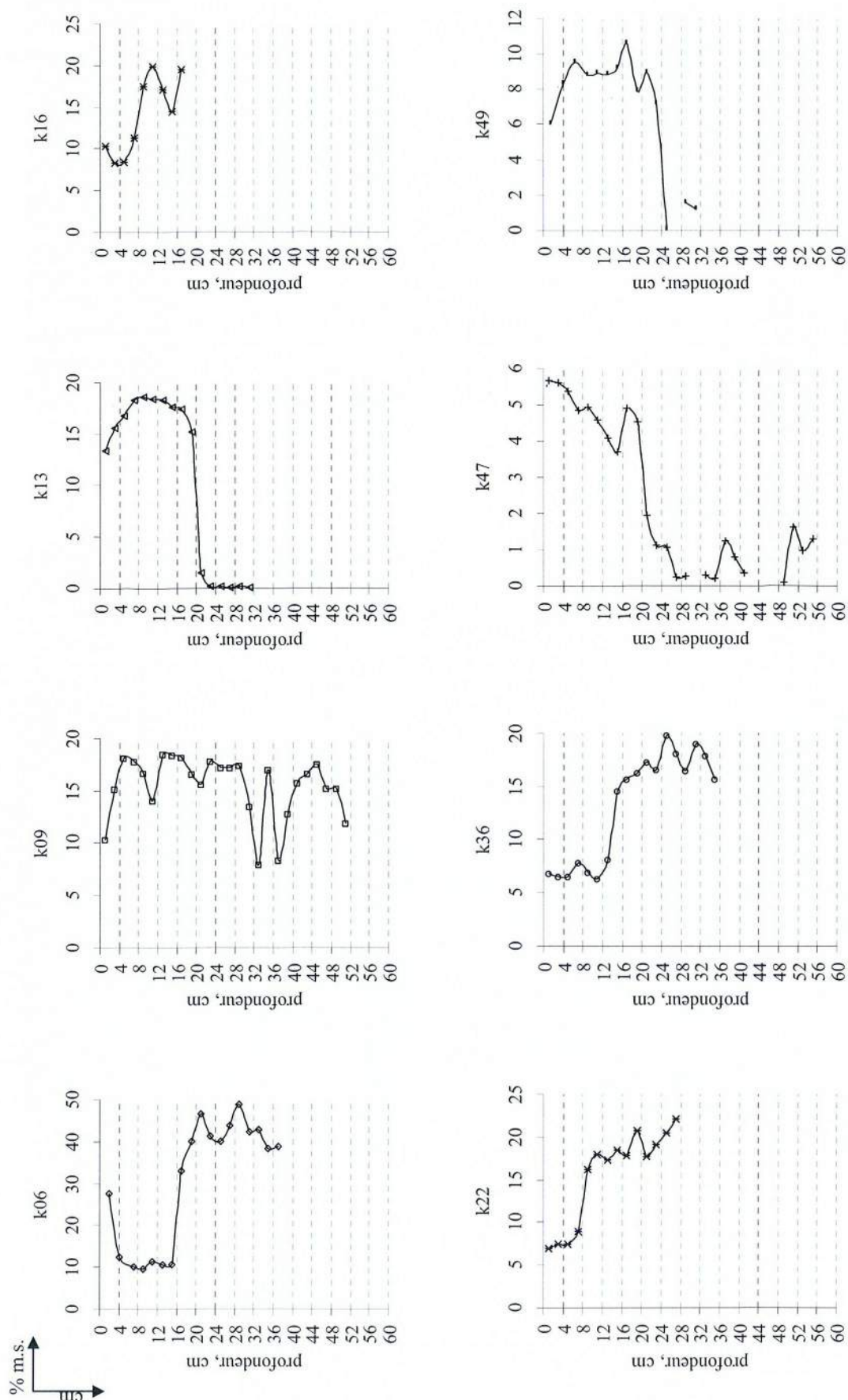


Figure 3. 18 : Evolution de la teneur en Carbone Organique Total (= COT) en fonction de la profondeur dans les sédiments.

Sédiments peu compactés et récents

Dans les sédiments peu compactés, l'évolution de la teneur en COT diffère selon le site de prélèvement de la carotte et selon la profondeur. Dans les sédiments de surface (0-2 cm), le COT diminue de l'amont vers l'aval : il passe de 30 % en k06, à 10-13 % en k16, et atteint 6-7 % entre k22 et k47. La diminution de la teneur en COT dans les sédiments de surface entre amont et aval peut être liée à :

- l'oxydation de la matière organique dans l'eau au cours du transfert du matériel sédimentaire. Plus les particules sédimentaires séjournent longtemps dans l'eau en présence d'oxygène, plus la matière organique est dégradée, minéralisée. Cependant, l'analyse du COT dans les matières en suspension prélevées dans la Scarpe (cf. annexe 3.3) ne montre pas de tendance générale entre l'amont et l'aval ;
- l'origine et la nature de la matière organique apportée au milieu aquatique.

A la surface des sédiments de surface, le COT diminue dans les sédiments prélevés en k06, k16 et k47, tandis qu'il augmente en k09, k13, k22 et k49 ou reste relativement constant en k36. La teneur en COT a tendance à augmenter avec la profondeur pour les sédiments situés en k13, k16, k22 et k36, tandis qu'elle diminue pour les sédiments déposés en k06 et k47, et qu'elle ne montre pas de tendance claire en k09 et k49. En k22 et k36, les teneurs sont inférieures à 10% en surface (< 8 en k22 et < 14 cm en k36) tandis qu'elles restent supérieures à 15 % en profondeur. En général, dans les sédiments, la teneur en carbone organique (matière organique) diminue car il est oxydé au cours des réactions diagénétiques catalysées par l'activité bactérienne. Dans la Scarpe, l'absence de minéralisation significative du carbone organique pourrait résulter d'une combinaison entre un apport trop riche en matière organique et une sédimentation trop rapide favorisant la préservation de la matière organique dans les sédiments (Barbanti *et al.*, 1995). Dans la Scarpe, un « excès » de carbone organique est apporté au milieu et le carbone organique est relativement bien conservé (peu dégradé) dans les sédiments.

- Source de carbone organique : Le carbone organique peut être d'origine endogène (production biologique *in situ*) ou exogène (terrigène, origine anthropique). Dans les sédiments prélevés en k22 et k36, l'augmentation des concentrations en Zn, Pb et Cu avec la profondeur (cf. figures 3.10-12) est bien corrélée à celle du carbone organique. Pour l'ensemble des sédiments peu compactés, bien que l'évolution du Zn, du Pb et du Cd en fonction du COT montre une tendance positive, il y a une certaine dispersion dans les valeurs (figure 3.19 à gauche, cas du Zn). Pour certains niveaux sédimentaires au sein d'une carotte, des corrélations apparaissent entre les métaux et le COT. Pour le Zn (figure 3.19 à gauche), c'est le cas des carottes prélevées en k09, k13, k47 et k49. Une meilleure corrélation a été mise en évidence entre le COT et le Cu (figure 3.19 à droite) et suggère une plus grande affinité du Cu pour les substrats organiques (*e.g.* Förstner, 1995 ; Stumm et Morgan, 1996 ; CNRSSP 97/13).

La corrélation observée entre les métaux et le carbone organique suggère une concomitance dans les apports. L'apport de carbone organique dans le secteur d'étude aurait ainsi une composante anthropique. Mastalerz *et al.* (2001) ont mis en évidence une concomitance entre les apports en matière organique d'origine anthropique et les métaux (Zn, Pb) dans des marais/marécages. L'apparition de la matière organique d'origine anthropique est attribuée au développement industriel de la région. L'association entre métaux et matière organique dans les sédiments une fois enfouis résulterait du mode de transport des métaux dans le milieu aquatique (associées aux sulfures) et aux processus diagénétiques (réaction entre sulfures et

matière organique). Une étude caractérisation approfondie de la matière organique dans la Scarpe et dans le bassin versant pourrait apporter de nouveaux éléments de réponse.

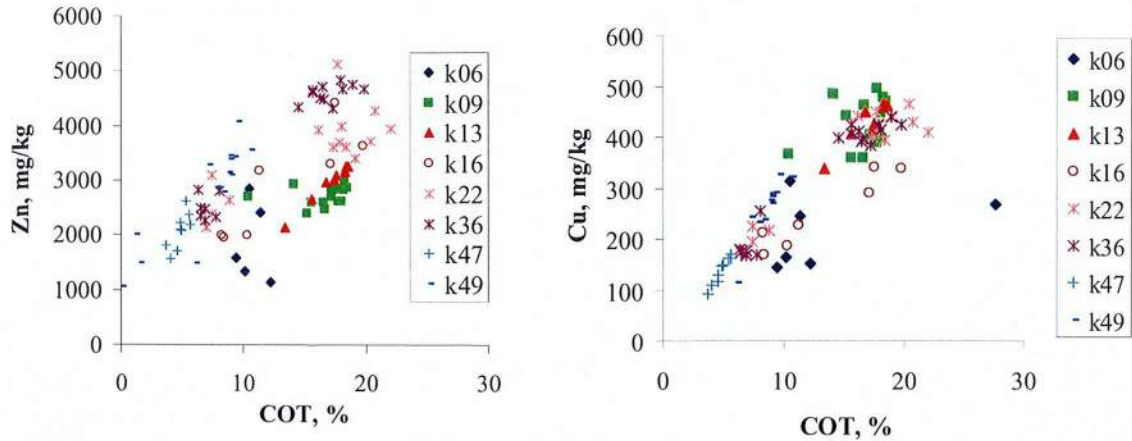


Figure 3. 19 : Relation entre les concentrations en Zn-Cu et le Carbone Organique Total (= COT) dans les sédiments peu compactés.

### 3.3.3 L'uranium

L'analyse des concentrations en isotopes radioactifs par spectrométrie gamma a permis de mettre en évidence une contamination (ou excès) supplémentaire et inattendue dans les sédiments de la Scarpe. Dans les sédiments, l'activité de l' $^{238}\text{U}$  est mesurée à l'aide de son descendant le  $^{234}\text{Th}$  qui ne décroît pas (car il est à l'équilibre séculaire avec son père) :

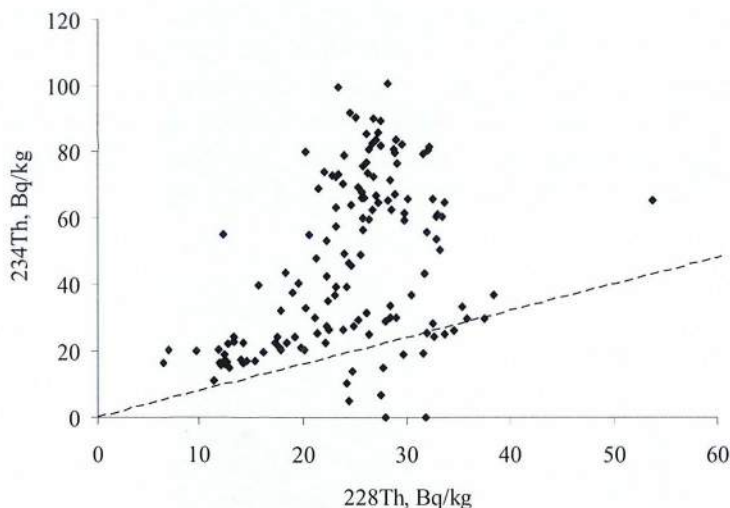
$$A(^{238}\text{U})_{\text{à l'équilibre avec ses descendants}} = A(^{234}\text{Th})_{\text{mesurée}} .$$

L'uranium naturel se compose des trois isotopes  $^{238}\text{U}$  (99, 28%),  $^{234}\text{U}$  (0,0057%) et  $^{235}\text{U}$  (0,72 %), dans les échantillons naturels, la quantité d' $^{238}\text{U}$  est largement supérieure à celle du  $^{235}\text{U}$ , avec un rapport d'activité de l'ordre de 21 : 1. Par la suite, la teneur en uranium totale sera assimilée à celle de l' $^{238}\text{U}$ .

La concentration du Th est déterminée à partir de l'activité en  $^{228}\text{Th}$  :

$$A(^{232}\text{Th})_{\text{à l'équilibre avec ses descendants}} = A(^{228}\text{Th})_{\text{mesurée}} .$$

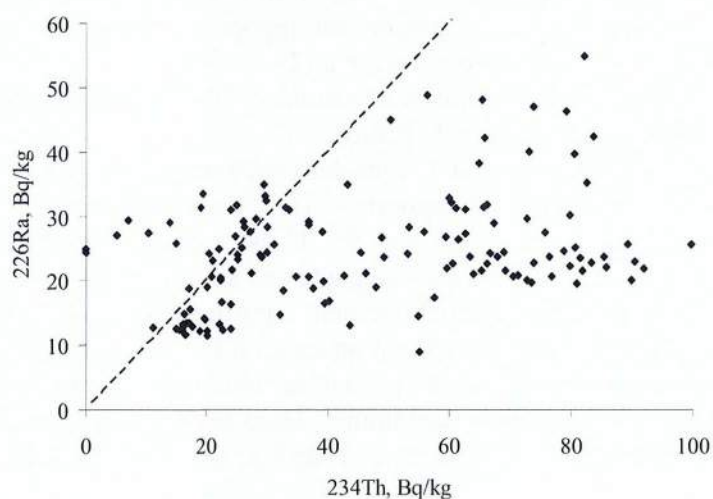
Dans la croûte superficielle, le rapport d'activités  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  vaut en moyenne 0,8 (Porcelli et Swarzenski, 2003). La figure 3.20 illustre la variation des activités du  $^{234}\text{Th}$  (= U) en fonction des activités du  $^{228}\text{Th}$  (= Th) dans l'ensemble des sédiments prélevés dans la Scarpe.



**Figure 3. 20 : Relation entre les activités du  $^{234}\text{Th}$  (= U) et du  $^{228}\text{Th}$  (= Th) dans les sédiments. Dans la croûte superficielle, les points s'alignent sur une droite de pente 0,8.**

Il existe une tendance positive entre les teneurs en U et Th dans les sédiments de la Scarpe. Nombreux sont les échantillons s'écartant de la droite généralement observée dans les échantillons terrestres (pente 0,8). Le biais est soit lié à un enrichissement en U, soit à un appauvrissement en Th. Dans les systèmes aquatiques le Th présente une forte affinité pour les particules, tandis que l'U est soluble en milieu oxydé et insoluble en milieu réducteur. Les anomalies observées dans le rapport  $^{234}\text{Th}/^{228}\text{Th}$  semblent davantage liées à la géochimie de l'U (moins conservative) plutôt qu'à celle du Th.

Dans les systèmes aquatiques, le Ra est plus soluble que le Th. La figure 3.21 illustre la relation entre les activités du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{234}\text{Th}$  dans les sédiments de la Scarpe. Le  $^{226}\text{Ra}$  étant le descendant du  $^{234}\text{Th}$ , le rapport d'activité  $^{226}\text{Ra}/^{234}\text{Th}$  tend vers 1 avec le temps.



**Figure 3. 21 : Relation entre les activités du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{234}\text{Th}$  (U) dans les sédiments. Lorsque le  $^{226}\text{Ra}$  et son père le  $^{238}\text{U}$  (=  $^{234}\text{Th}$ ) sont à l'équilibre séculaire, le rapport d'activités vaut 1 (*i.e.* pente = 1).**

Dans la plupart des échantillons, le  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{234}\text{Th}$  ne sont pas à l'équilibre, et la position du nuage de points à droite de la pente « théorique » suggère un appauvrissement en  $^{226}\text{Ra}$  par rapport à son parent le  $^{234}\text{Th}$ . Dans ce cas, le  $^{226}\text{Ra}$  produit par la décroissance du  $^{234}\text{Th}$  n'a pas encore eu le temps de recroître jusqu'à atteindre l'équilibre radioactif (rapport

$^{226}\text{Ra}/^{234}\text{Th} = \text{constante}$ ). Le  $^{226}\text{Ra}$  ne serait donc pas « vieux ». Dans l'environnement le Ra a probablement été soumis à un fractionnement géochimique qui n'affecte pas le Th, le Ra étant plus soluble que le Th. Or, dans l'environnement, le rapport d'activités  $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$  reste constant et vaut 0,8 (=  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ). Dans l'hypothèse d'un fractionnement géochimique favorable à la solubilisation du Ra, l'équilibre radioactif n'a pas pu être atteint entre le  $^{228}\text{Th}$  et le  $^{228}\text{Ra}$  (dans la famille du  $^{232}\text{Th}$ ) non plus. La figure 3.22 illustre la relation entre les activités du  $^{228}\text{Ra}$  et du  $^{228}\text{Th}$  dans les sédiments de la Scarpe.

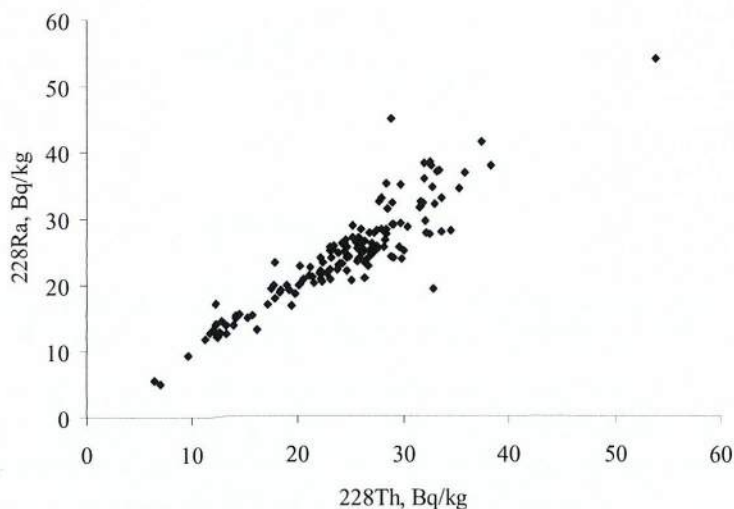


Figure 3. 22 : Relation entre les activités du  $^{228}\text{Ra}$  et du  $^{228}\text{Th}$  dans les sédiments.

Les activités du  $^{228}\text{Ra}$  et du  $^{228}\text{Th}$  sont très bien corrélées ( $R^2=0,8$ ) et la pente, ou le rapport d'activité, vaut 1. Le  $^{228}\text{Ra}$  et le  $^{228}\text{Th}$  sont à l'équilibre radioactif (équilibre séculaire). Il n'y a pas d'appauvrissement en  $^{228}\text{Ra}$  par rapport au  $^{228}\text{Th}$ . Il n'y a donc pas de fractionnement géochimique entre le Ra et le Th dans le milieu aquatique. Dans les sédiments de la Scarpe, le déséquilibre observé entre les activités du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{234}\text{Th}$  est lié à un enrichissement en U. Une partie de l'U présent dans les sédiments est apportée sans ses descendants (*e.g.*  $^{226}\text{Ra}$ ). On parlera d'un excès d'U ou de contamination en U.

La figure 3.23 représente le rapport d'activités  $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ , ou excès d'U, en fonction de la profondeur dans les sédiments de la Scarpe. Lorsque le rapport  $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  est égal à 1, les deux radionucléides sont à l'équilibre séculaire avec leur père ( $^{238}\text{U}$ ). Lorsque le rapport  $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  est supérieur à 1, il traduit un enrichissement en  $^{238}\text{U}$  dans les sédiments : 1  $^{238}\text{U}$  est apporté dans les sédiments sans ses descendants (*e.g.*  $^{226}\text{Ra}$ ). Les sédiments compactés et anciens prélevés en k06 (> 18 cm) et k09 (> 38 cm) ne présentent pas d'enrichissement significatif en U. En revanche ceux situés en k13 (>22 cm) et k47 (> 24 cm) présentent un excès d'U avec un rapport  $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra} < 2-3$ . Les sédiments peu compactés et récents présentent tous une contamination en U avec des niveaux sédimentaires plus ou moins contaminés. Dans les niveaux sédimentaires enrichis en U, la concentration en excès d'U n'excède pas  $7 \text{ mg.kg}^{-1}$  (cf. annexe 2.1.1).

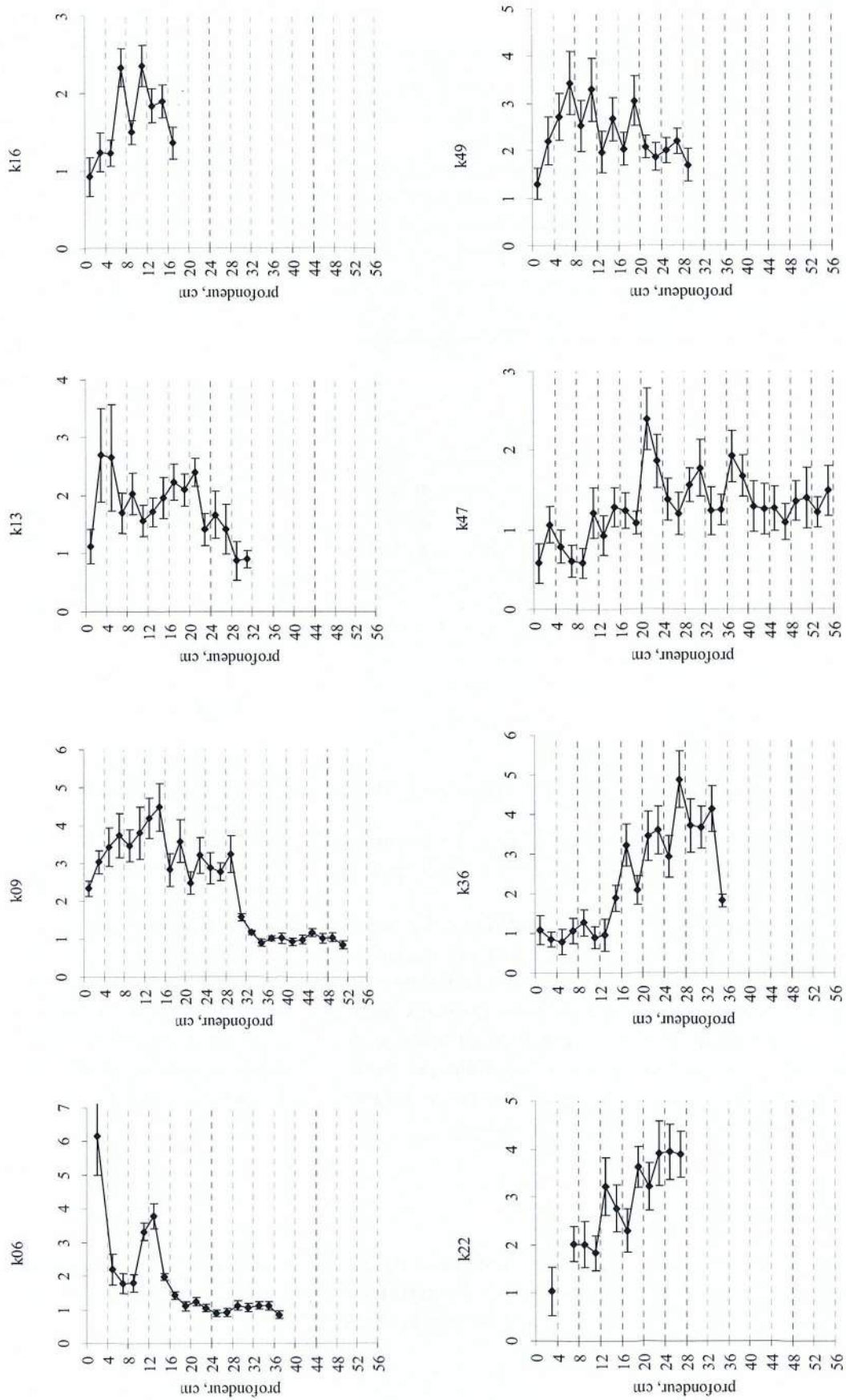


Figure 3. 23 : Rapport d'activités  $^{234}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$  en fonction de la profondeur dans les sédiments.



### Source d'uranium

L'évolution de la contamination radioactive semble associée à la contamination organique et à la contamination métallique. Localement, à l'échelle du site sédimentaire, des corrélations peuvent apparaître dans les sédiments peu compactés :

- entre l' $U_{xs}$  et le Zn pour k06 (4-14 cm),
- entre l' $U_{xs}$  et le Cu pour k06 (4-14 cm), k09 (8-30 cm sauf 18-20 cm et 22-24 cm), et k49 (0-24 cm sauf 8-10 cm, 14-16 cm et 20-22 cm).

A l'échelle du compartiment sédimentaire, il n'y a pas de relation directe entre l'excès d'U et les teneurs en Zn, Pb et Cd dans les sédiments, malgré une tendance positive entre les concentrations. Une meilleure corrélation existe entre l' $U_{xs}$  et le Cu (figure 3.24). Cette relation suggère une plus grande affinité entre l'U et le Cu dans le milieu. De même que le Cu, l' $U_{xs}$  présente une corrélation avec le COT (figure 3.24).

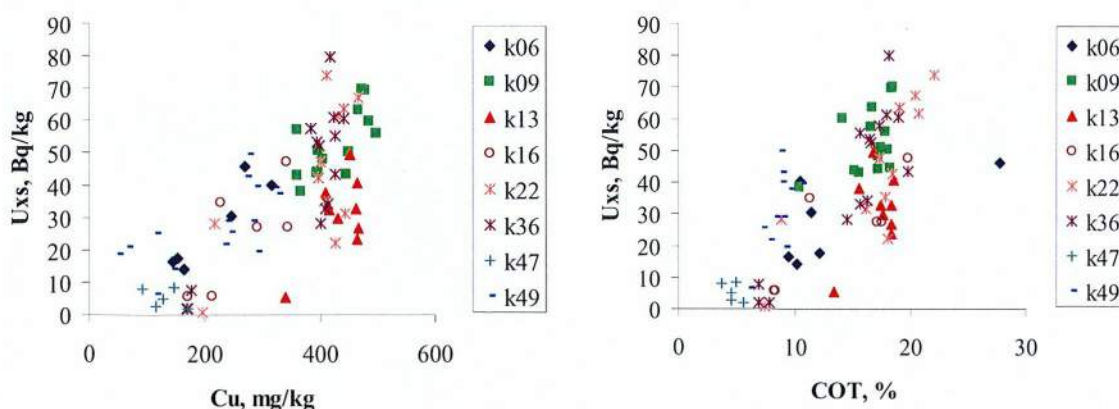


Figure 3. 24 : Relation entre l'excès d'U et le Cu et le COT dans les sédiments peu compactés.

Rien n'exclut un apport concomitant d'U avec les métaux et avec la matière organique. Une étude approfondie des sources de l'U dans le secteur d'étude apporterait des éléments de réponse.

Une autre source probable d'excès d'U est liée au comportement géochimique de l'U dans un milieu aquatique. Dans l'eau de surface (milieu oxydant), l'U est soluble et présent sous forme d'uranyle (U(VI)). Lorsque les sédiments deviennent réducteurs, l'U devient insoluble sous sa forme tétravalente (U(IV)). Dans les sédiments, la dégradation de la matière organique au cours de la diagenèse contribue à rendre le milieu réducteur. L'U contenu dans les eaux porales des sédiments est susceptible de devenir insoluble et de se fixer aux particules de sédiment. L'U ainsi fixé n'est pas à l'équilibre avec ses descendants ; il en résulte un enrichissement en U dans les sédiments.

#### 3.3.4 Rôle du soufre

Les sulfures constituent une phase puits pour de nombreux métaux traces (*e.g.* Boust *et al.*, 1999). Le soufre total a été analysé dans les carottes prélevées en k06, k09, k13 et k16. Les profils verticaux des teneurs sont présentés dans la figure 3.25.

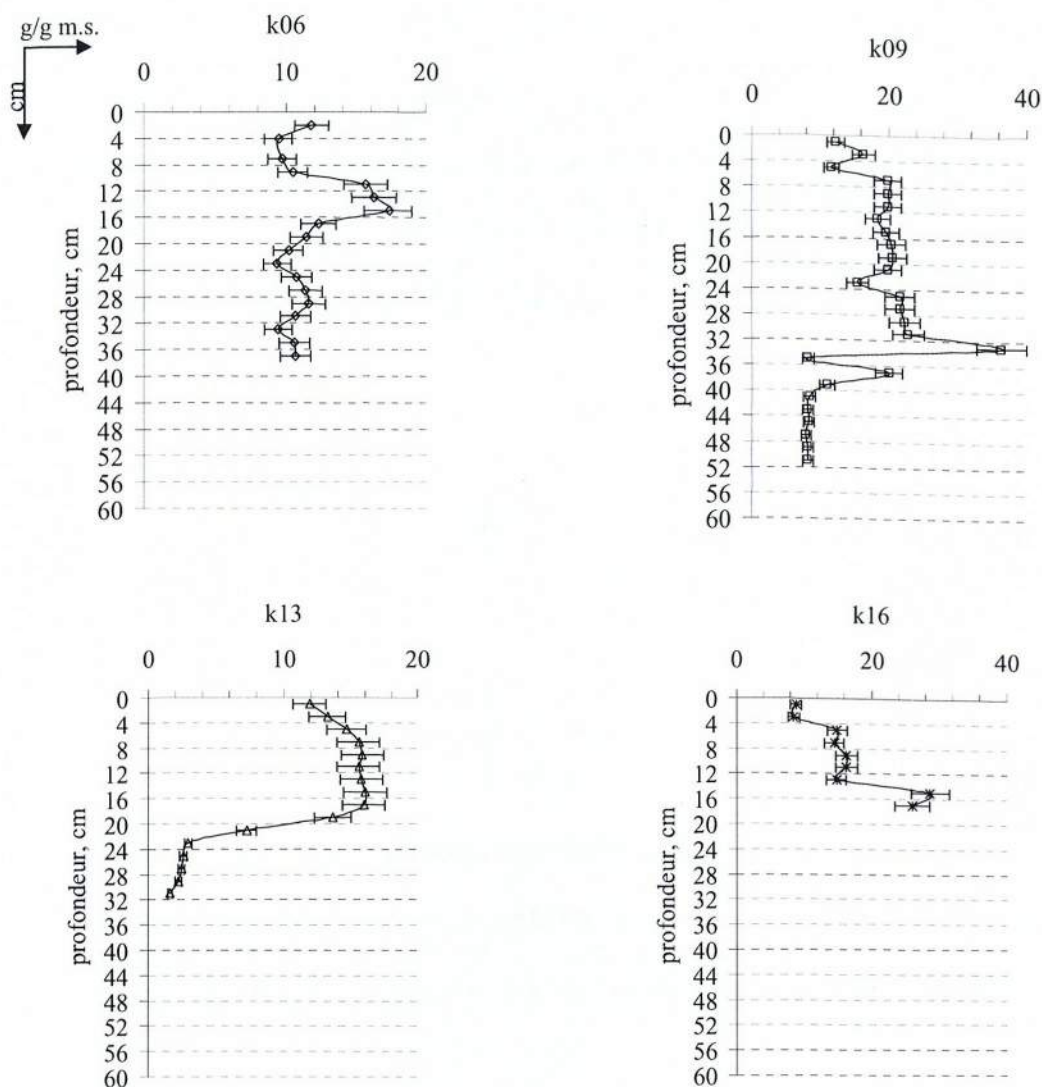


Figure 3.25 : Concentrations du S en fonction de la profondeur dans les sédiments.

Dans les sédiments compactés et anciens, les teneurs en soufre sont variables : en moyenne  $8-10 \text{ g.g}^{-1}$  en k06 et k09, et  $2 \text{ g.g}^{-1}$  en k13. L'hétérogénéité observée en k13 suggère à nouveau la présence d'un substrat différent de l'ensemble du compartiment sédimentaire. L'évolution du S en profondeur dans les sédiments peu compactés et récent est également variable. Les teneurs varient en général entre 10 et 20 en k06, k09, k13 et k16. En k06, les sédiments situés au-delà de 14 cm sont particulièrement riches en S ( $> 24 \text{ g.g}^{-1}$ ). L'augmentation soudaine du S en profondeur confirme la présence d'une couche sédimentaire particulière à la base de k16. En effet, en k16, le sédiment devient plus grossier à partir de 14 cm, plus contaminé en métaux (Zn, Pb, Cd et Cu).

### Origines du soufre

Les processus diagénétiques sont capables d'induire une réduction des oxyhydroxydes de Fe et la formation de sulfures au cours de la dégradation de la matière organique. Dans les sédiments réduits, les sulfures et le Fe réduit s'associent afin de former des sulfures de fer plus ou moins stables. La présence de sulfures de fer a des conséquences sur la réactivité des sédiments et la mobilité des contaminants métalliques (*e.g.* Billon, 2001).

En outre, des concentrations élevées en carbone organique peuvent fournir suffisamment de sulfures pour que le sulfure d'hydrogène ( $H_2S$ ) libéré lors des réactions diagénétiques provoque l'association du Fe détritique en pyrite ou marcasite ; cette association permet notamment d'expliquer l'association commune de la marcasite et de la pyrite avec le charbon (Berner, 1980). Les sulfures de fer dans les sédiments de la Scarpe peuvent être d'origine authigénique (diagénèse) et/ou sont directement apportés dans le système aquatique. Le S dans les sédiments peut résulter de la production des sulfures liée à la réduction des sulfates lors de la dégradation de la matière organique ou peut être directement apporté par la matière organique (acides humiques et fulviques) (*e.g.* Gerritse, 1999). La figure 3.26 illustre la variation des teneurs en S en fonction des teneurs en COT dans les sédiments peu compactés.

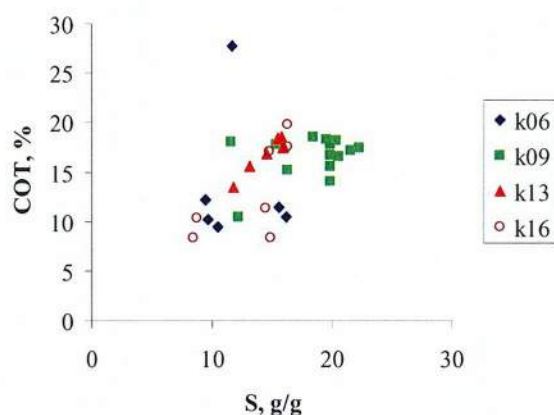


Figure 3. 26 : Variation de la teneur en S en fonction de la teneur en COT dans les sédiments.

La relation entre le COT et le S varie en fonction du site de prélèvement des sédiments. Il existe une bonne corrélation entre les teneurs en COT et S pour les sédiments déposés en k13. Cette corrélation suggère que le S peut être directement apporté par la matière organique dans les sédiments de la Scarpe.

### Rôle du soufre vis-à-vis des métaux

La composition chimique des sédiments peut exercer un contrôle sur l'enrichissement en métaux. En particulier, le soufre, s'il est présent sous forme de sulfures peut exercer un contrôle sur la mobilité des polluants métalliques (*e.g.* Kerstern et Förstner, 1986 ; Huerta-Diaz et Morse, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1992 ; Allen, 1994). La figure 3.27 présente la variation de la concentration en Zn, Pb, Cd et Cu en fonction de la teneur en soufre total dans les sédiments peu compactés.

La relation entre les teneurs en contaminants métalliques et le soufre total dans les sédiments est variable d'un site sédimentaire à l'autre et selon la profondeur pour un site donné. A l'échelle du compartiment sédimentaire, une relation positive est observée entre les teneurs en S et métaux dans les sédiments. A l'échelle du site sédimentaire, il existe une corrélation positive entre la teneur en S et la concentration du :

- Zn dans les sédiments déposés en k06 (4-14 cm) et k13 (<14 cm),
- Pb dans les sédiments déposés en k13 (< 22 cm),
- Cu dans les sédiments déposés en k13 (< 14 cm),
- Cd dans les sédiments déposés en k06 (4-12 cm) et k13 (< 14 cm).

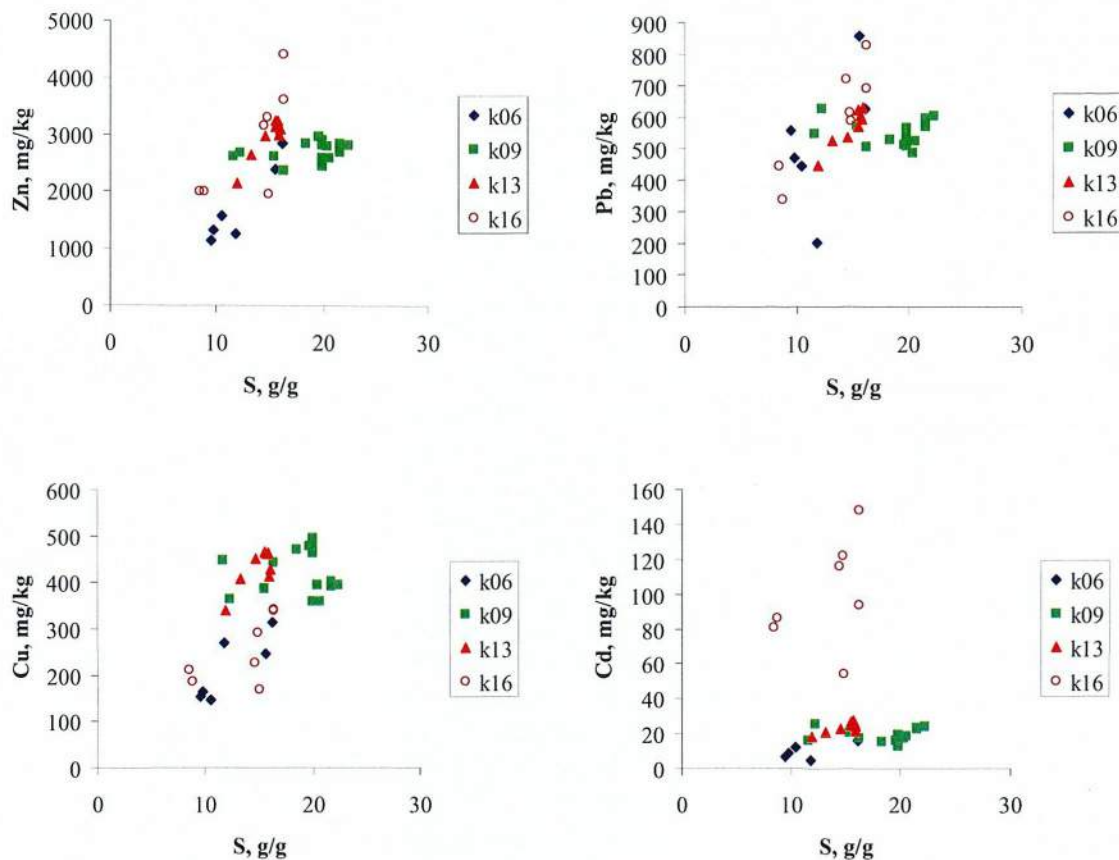


Figure 3. 27 : Variation des teneurs en Zn en fonction de la teneur en S dans les sédiments.

Si le S se présente sous forme de sulfures dans les sédiments de la Scarpe, la corrélation Pb-S, Zn-S, Cd-S et Cu-S pourrait illustrer la présence de précipités de sulfures métalliques. Une étude menée sur la spéciation des sédiments de la Scarpe a mis en évidence la formation de galène (PbS) et de sphalérite (ZnS) (Isaure, 2001 ; Isaure *et al.*, 2001 & 2002) et l'association (Cd, Zn)-S (Huguet *et al.*, 2007). D'autres phases sédimentaires sont susceptibles d'exercer un contrôle sur la mobilité des contaminants métalliques dans les sédiments, tels que les carbonates et les phosphates (*e.g.* Billon *et al.*, 2002).

## Conclusion

L'analyse de la teneur en eau a révélé deux types de couches sédimentaires : en surface (< 14-36 cm), tous les sédiments sont peu compactés avec des teneurs élevées (> 60%), tandis qu'en profondeur, les sédiments sont mieux consolidés avec des teneurs en eau plus faibles (< 40 %). La distribution granulométrique montre que les sédiments de surface peu compactés sont plus fins que les sédiments profonds. Les sédiments déposés à l'aval du secteur d'étude sont plus fins que les sédiments prélevés à l'amont, en raison probablement des conditions hydrologiques de dépôt.

Les sédiments de la Scarpe présentent (au moins) trois types de contamination : métallique (Zn, Pb, Cd, Cu), organique et radioactive (U). Les sédiments de la Scarpe présentent une contamination hétérogène d'amont en aval et en fonction de la profondeur. La contamination métallique est présente dans l'ensemble du compartiment sédimentaire, exceptée dans la partie compactée des sédiments prélevés en k13 et k47 (fond géochimique). En général, la contamination métallique est plus importante dans les sédiments peu compactés

et fins. En Zn, les concentrations sont systématiquement supérieures dans la partie peu compactée des sédiments (1 000-13 000 mg.kg<sup>-1</sup>). En Pb, les concentrations peuvent atteindre 540 mg.kg<sup>-1</sup> (k06) dans la partie compactée et varient entre 100 et 2 400 mg.kg<sup>-1</sup> dans la partie peu compactée. Le Cu reste inférieur à 150 mg.kg<sup>-1</sup> dans la partie compactée et varie entre 50 et 500 mg.kg<sup>-1</sup> dans la partie non compactée. Le Cd est peu présent dans les sédiments compactés (< 6 mg.kg<sup>-1</sup>) et varie entre 5 et 600 mg.kg<sup>-1</sup> dans la partie peu compactée. L'enrichissement en Zn, Pb, Cd et Cu dans les sédiments provient est certainement lié aux activités métallurgiques dans la région : le mode de dispersion des polluants par les industries (émission atmosphérique) est responsable de la pollution métallique dans les sols alentours et le ruissellement des eaux de pluie à travers les sols aurait largement contribué à disperser les contaminants dans l'environnement jusqu'à les acheminer vers les cours d'eau.

Dans un cours d'eau, le devenir ultime des particules sédimentaires étant de s'accumuler au fond afin de constituer le lit de la rivière, les sédiments de la Scarpe ont ainsi enregistré et préservé la signature chimique des activités d'origine anthropique de la région. L'impact des eaux de ruissellement sur la qualité du cours d'eau est localement important : la station de relevage « Vallée de Scarpe » constitue actuellement une source de pollution métallique pour les sédiments situés à l'aval du rejet, surtout pour le Cd.

L'enrichissement en uranium est localisé en profondeur dans les sédiments. Cet enrichissement est probablement lié à des processus diagénétiques de réduction de la matière organique favorisant l'établissement de conditions réduites et la précipitation d'U insoluble. Une fraction du carbone organique provient certainement des activités d'origine anthropique. Les sédiments les plus contaminés en carbone organique sont les sédiments compactés prélevés en k06 (COT : 40-50 %). Les sédiments compactés prélevés en k13 et k47 n'ont peu ou pas de carbone organique (< 1 %). Dans les sédiments peu compactés, la teneur en COT varie généralement entre 10 et 20%. Rien n'exclut l'apport de contaminants métalliques associés à la matière organique. La matière organique semble exercer un contrôle sur les teneurs en Cu dans les sédiments, en raison probablement d'une affinité préférentielle du Cu vis-à-vis des substrats organiques.

Le couplage des résultats obtenus pour l'âge et la contamination des sédiments a permis de dresser l'historique de la contamination dans les sédiments de la Scarpe. Dans les sédiments de la Scarpe, les flux de sédimentation (<sup>137</sup>Cs) ont permis d'établir une chronologie de dépôt sur l'ensemble de la colonne sédimentaire en k22 (1,1 cm.an<sup>-1</sup>) et k36 (1,7 cm.an<sup>-1</sup>), à laquelle est associée l'histoire d'une contamination. Pour les autres sites sédimentaires, les méthodes radioactives de datation ont permis de distinguer clairement deux catégories de couches sédimentaires : des sédiments anciens (> 70 ans) en profondeur, et des sédiments récents (< 30 ans) en surface. La contamination dans les sédiments anciens et compactés diffère d'un site de prélèvement à l'autre :

- en k06, les sédiments ont une contamination organique très importante,
- en k09, les sédiments présentent une contamination métallique en Zn, Pb et Cu,
- en k13, le substrat n'est pas contaminé et correspond à un matériel sédimentaire différent de l'ensemble du compartiment sédimentaire,
- en k47, les sédiments constituent un référentiel géochimique de contamination pour le secteur d'étude.

L'hétérogénéité de la contamination des sédiments en fonction de la profondeur a été discutée selon une approche temporelle, c'est-à-dire en fonction de l'âge du dépôt sédimentaire. La contamination des sédiments peut évoluer au cours du temps en fonction de l'histoire de la région (essor industriel puis reconversion) ou de la réglementation (mise en place de normes moins permissives). L'hétérogénéité de la contamination a également été discutée selon une approche spatiale amont-aval. La présence d'une station de pompage dans le secteur d'étude a un impact sur la qualité des sédiments situés à l'aval du rejet.

Les processus sédimentaires (dépôt, érosion, mélange) peuvent jouer un rôle sur le transport des contaminants dans les sédiments. Par exemple, les sédiments déposés en un site sédimentaire ont pu repasser dans la colonne d'eau suite à un événement perturbateur et se redéposer plus à l'aval. Les deux grilles de lecture des résultats (approche temporelle et amont-aval) sont liées entre elles et ce couplage rend l'interprétation des profils de métaux dans les carottes difficile. Par exemple, du sédiment âgé et peu contaminé a pu se remettre en suspension à l'amont dans le cours d'eau et, au cours de son transfert vers l'aval, le sédiment en suspension a pu se mélanger avec d'autres particules sédimentaires plus contaminées provenant d'un rejet. Pour compléter l'analyse des profils obtenus dans les carottes de sédiments, nous suggérons une étude approfondie sur l'identification des sources de contamination à l'échelle du bassin versant. L'identification des principaux facteurs de variation et l'établissement de diagrammes de mélange avec différentes sources comme pôles (sols, rejets, sédiments), ainsi qu'une analyse approfondie du comportement géochimique des métaux (spéciation) constitueraient des outils de compréhension supplémentaires pour interpréter l'hétérogénéité observée.



## 4. DYNAMIQUE SEDIMENTAIRE A COURT TERME

Le devenir ultime des particules sédimentaires est de s'accumuler dans le fond de la rivière et d'en constituer le lit. Cependant, une accumulation définitive à long terme n'exclut pas une alternance de dépôt/érosion/re-dépôt survenant à des échelles de temps plus courtes (figure 4.1). Les marqueurs radioactifs des particules sédimentaires constituent des outils permettant d'étudier *in situ* les processus sédimentaires dans un milieu aquatique.

D'après les résultats présentés dans le chapitre 3, dans la Scarpe, l'utilisation couplée des marqueurs radioactifs  $^{137}\text{Cs}$  et  $^{210}\text{Pb}$  a permis de quantifier des processus sédimentaires sur une échelle de temps pluri-annuelle à pluri-décennale et de mettre en évidence l'existence de processus physiques perturbants. Dans la Scarpe, la sédimentation n'est pas régulière au cours du temps, ni homogène dans la partie de secteur étudié.

Nous nous proposons à présent de faire appel à d'autres outils radioactifs, de période plus courte et disponibles dans le milieu aquatique étudié, afin d'identifier et de quantifier les processus sédimentaires sur une échelle de temps plus courte (*i.e.* mensuelle).

Parmi les outils radioactifs permettant d'étudier *in situ* les processus sédimentaires affectant les sédiments superficiels et sur une échelle de temps relativement courte, l'étude bibliographique a permis d'isoler trois méthodes radioactives : le  $^7\text{Be}$  et les déséquilibres  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  et  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}/^{238}\text{U}$ . Les radionucléides impliqués présentent l'avantage certain d'être naturellement présents dans les milieux aquatiques.

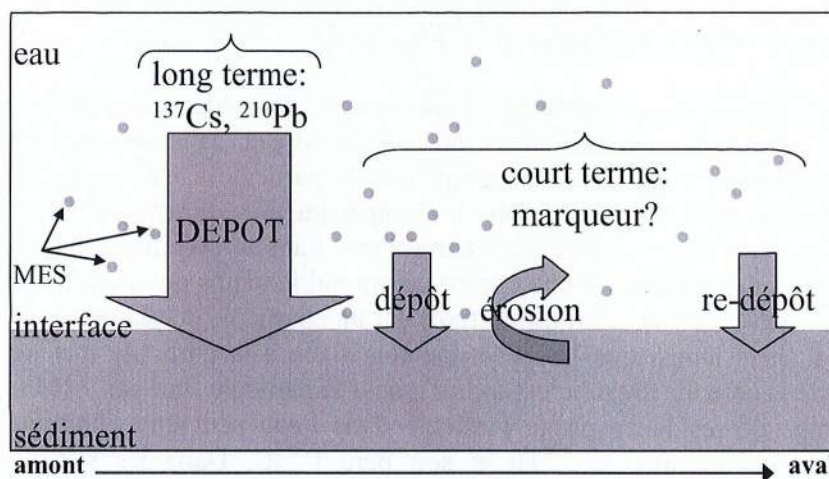


Figure 4. 1 : Représentation schématique des processus sédimentaires dans un milieu aquatique : colonne d'eau, compartiment sédimentaire, interface eau-sédiment et Matières En Suspension (=MES).

Trois points d'échantillonnage ont été sélectionnés en fonction du régime sédimentaire supposé et du degré de contamination déterminé dans le chapitre 3 (figure 4.2). Tous les sites d'échantillonnage sont situés en rive droite du canal. Les sites k13 et k16 sont respectivement situés à l'amont et à l'aval du rejet de la station de relevage « Vallée de Scarpe ». Le point k16 se trouve dans une région sédimentaire où l'interface eau-sédiment est potentiellement soumise à l'influence des rejets de la station de relevage avec pour conséquence probable des processus d'érosion. Le point k36 est situé dans une région de forte accumulation sédimentaire et de contamination métallique (cf. chapitre 3). En chacun des sites, des « petites carottes » de sédiments (section  $25\text{ cm}^2$ ) ont été prélevées, ainsi que les matières en suspension.



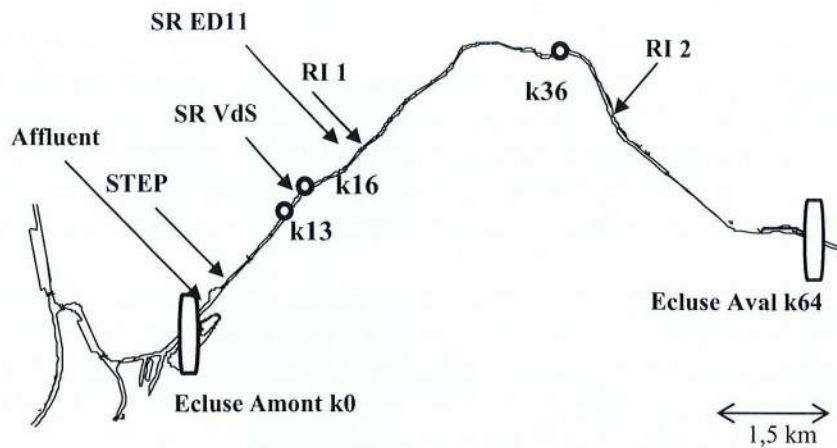


Figure 4. 2 : La Scarpe Inférieure. Représentation du secteur d'étude. Localisation de l'affluent « La Cunette », des rejets de la Station d'Épuration (=STEP), des Stations de Relevage (=SR) et des Rejets Industriels (=RI). Localisation des 3 sites de prélèvement k13, k16 et k36.

## 4.1 A la recherche d'un outil radioactif

### 4.1.1 Le déséquilibre radioactif $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}/^{238}\text{U}$

A l'aide des traceurs radioactifs, il est possible d'accéder au temps de résidence (ou temps de séjour) d'une particule dans la colonne d'eau dans les systèmes aquatiques superficiels. Typiquement, il s'agit du temps que la particule a mis pour séjourner dans la colonne d'eau avant d'être enfouie dans le compartiment sédimentaire. Dans le cas d'une espèce réactive vis-à-vis des particules et introduite dans le système aquatique sous forme dissoute, le temps de résidence d'une espèce comprend le temps que l'espèce a mis pour être « capturée » (« scavenged »), c'est-à-dire fixée sur une particule de sédiment en transit dans la colonne d'eau, et le temps que l'espèce une fois fixée à la particule met pour disparaître (« remove ») de la colonne d'eau, c'est-à-dire quand la particule finit par « sédimenter ».

Le temps de résidence d'une particule dans l'eau peut être déterminé à l'aide du déséquilibre radioactif entre le  $^{234}\text{Th}$  et son père  $^{238}\text{U}$ . Dans les systèmes aquatiques superficiels, le  $^{234}\text{Th}$  peut ne pas être à l'équilibre radioactif avec son père  $^{238}\text{U}$ , car ces deux radionucléides ont des comportements géochimiques, des origines, et des périodes différentes. L'uranium est hexavalent sous sa forme oxydée et tétravalent sous forme réduite (Murphy et Shock, 1999). Dans les eaux de surface (milieu oxydant), l'uranium est présent à l'état

dissous (ion uranyle  $\text{UO}_2^{2+}$ ), tandis que le thorium est fortement réactif vis-à-vis des particules. Le thorium 234 en excès ( $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$ ) se définit par la fraction de  $^{234}\text{Th}$  qui n'est pas à l'équilibre avec son père le  $^{238}\text{U}$  au sein des particules. Le  $^{234}\text{Th}$  est continuellement produit *in situ* dans l'eau par la désintégration de  $^{238}\text{U}$  et s'adsorbe rapidement sur les particules ; il constitue le  $^{234}\text{Th}$  en excès,  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$ . Plus une particule séjourne longtemps dans l'eau, plus elle va s'enrichir en  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$ .

La période radioactive est de  $4,47 \cdot 10^9$  ans pour le  $^{238}\text{U}$  et de 24,1 jours pour le  $^{234}\text{Th}$  lorsqu'il n'est pas à l'équilibre séculaire avec son père (*i.e.*  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$ ).

De par sa période, le  $^{234}\text{Th}$  (24,1 jours) a été plusieurs fois utilisé pour caractériser les processus de transport dans les milieux aquatiques, tels que le temps de résidence, le taux de capture, l'échange particulaire à l'interface eau-sédiment, le taux de bioturbation, sur des

échelles de temps allant de quelques jours à quelques semaines (*e.g.* Schmidt *et al.*, 2002 ; Inthorn *et al.*, 2006 ; Waples *et al.*, 2006 ; Rutgers van der Loeff *et al.*, 1997, 2002, 2006 ; Schmidt *et al.*, 2007 ; Baskaran et Swarzenski, 2007).

Dans les trois dernières décennies, le déséquilibre  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  a été déterminé dans les systèmes marins. Sauf exceptions (Morris *et al.*, 1994 ; Vogler *et al.*, 1996 ; Waples *et al.*, 2004), ce rapport n'a pas été mesuré dans les eaux continentales car les teneurs en  $^{238}\text{U}$ , et par conséquent celles du  $^{234}\text{Th}$ , sont extrêmement faibles et se trouvent souvent sous les limites de détection des compteurs. Les mesures de  $^{234}\text{Th}$  dans les eaux douces sont difficiles et sont inférieures de plus d'un ordre de grandeur par rapport à celles rencontrées dans les milieux marins.

Le temps de résidence des éléments traces présents dans les systèmes aquatiques est une fonction inverse de leur affinité pour les particules (*e.g.* Whitfield, 1979 ; Santschi, 1986). La production *in situ* du  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$  à partir de la décroissance de l' $^{238}\text{U}$  dissous permet de quantifier les cinétiques d'adsorption des espèces réactives vis-à-vis des particules, dont les polluants métalliques (Moore *et al.*, 1995).

L'utilisation du déséquilibre  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}/^{238}\text{U}$  a été envisagée dans la Scarpe afin d'apporter des éléments de réponse sur la dynamique des polluants métalliques à l'interface eau-sédiment. Dans les sédiments, l'excès de  $^{234}\text{Th}$  ( $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$ ) est déterminé à partir de la différence entre les activités du  $^{234}\text{Th}$  total et de l' $^{238}\text{U}$ . D'un point de vue analytique (spectrométrie gamma), l'activité de  $^{238}\text{U}$  est souvent estimée à partir de celle en  $^{226}\text{Ra}$  (*via* ses descendants de très courtes périodes  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$ ), en supposant que le  $^{226}\text{Ra}$  est à l'équilibre avec son père l' $^{238}\text{U}$ . On a donc :  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}} = ^{234}\text{Th}_{\text{total}} - ^{238}\text{U}$ , soit  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}} = ^{234}\text{Th}_{\text{total}} - ^{226}\text{Ra}$ . Cependant, on peut aussi déterminer le  $^{238}\text{U}$  d'une manière plus directe : en ré-analysant l'échantillon plus de 6 mois après son prélèvement, de manière à ce que tout l'excès de  $^{234}\text{Th}$  ait disparu. Et on obtient aussi  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}} = ^{234}\text{Th}_{\text{total}} - ^{234}\text{Th}_{\text{équilibré}}$ . Or, l'analyse des teneurs en U dans les sédiments de la Scarpe a mis en évidence une contamination en U (chapitre 3). Dans les sédiments de la Scarpe, il existe localement des niveaux sédimentaires enrichis en  $^{238}\text{U}$  ( $^{238}\text{U}_{\text{xs}}$ ), dont l'origine est supposée provenir du comportement géochimique de l'U qui a tendance à précipiter en milieu réducteur. Par conséquent, le  $^{234}\text{Th}$  total présent dans les sédiments se compose :

- d'une fraction issue de la décroissance de l' $^{238}\text{U}$  dissous dans l'eau, c'est par définition le  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$ ,
- d'une fraction d'origine lithogénique où le  $^{234}\text{Th}$  est à l'équilibre séculaire avec l' $^{238}\text{U}$  d'origine lithogénique,
- et d'une fraction provenant de l'enrichissement (contamination) en  $^{238}\text{U}$  ( $=^{238}\text{U}_{\text{xs}}$ ).

La présence d'un excès d' $^{238}\text{U}$  ( $=^{238}\text{U}_{\text{xs}}$ ) qui n'est pas apporté avec ses descendants, et dans des quantités non négligeables (jusqu'à  $7 \text{ mg.kg}^{-1}$ ), ne permet plus de quantifier le  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$  issu de la décroissance de l' $^{238}\text{U}$  dissous dans l'eau. La contamination en U dans la Scarpe constitue un biais vis-à-vis de la méthode du déséquilibre  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}/^{238}\text{U}$ . Par conséquent, l'utilisation du déséquilibre  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}/^{238}\text{U}$  n'a pas pu être mise en œuvre dans le système aquatique étudié.

## 4.1.2 Le déséquilibre radioactif $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$

### 4.1.2.1 Description de la méthode radioactive : revue bibliographique

Dans les sédiments, la présence de  $^{210}\text{Pb}$  est généralement issue d'un équilibre entre différentes contributions :

- une fraction du  $^{210}\text{Pb}$  est issue directement des retombées atmosphériques : le flux moyen de  $^{210}\text{Pb}$  provenant de la décroissance du  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère arrivant à la surface des océans est de  $1,0 \text{ dpm.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$  (Turekian *et al.*, 1983) ;
- une fraction a été transportée depuis l'amont ;
- une fraction est générée par la décroissance radioactive du  $^{222}\text{Rn}$  dans l'eau à l'équilibre séculaire avec le  $^{238}\text{U}$ .

Une fraction du  $^{210}\text{Pb}$  est intrinsèque aux particules et se trouve à l'équilibre séculaire avec ses parents : il s'agit du  $^{210}\text{Pb}$  « supporté » (=  $^{210}\text{Pb}_{\text{supp}}$ ). Une fraction du  $^{210}\text{Pb}$  est produite par la décroissance radioactive du  $^{222}\text{Rn}$  (3,83 jours de période) présent dans l'atmosphère. Le  $^{222}\text{Rn}$  est produit dans la chaîne de décroissance de l' $^{238}\text{U}$  et émane de la croûte terrestre continentale. Il y a fractionnement géochimique et le  $^{222}\text{Rn}$  se retrouve « orphelin ». L'air continental contient en moyenne  $3 \text{ Bq.m}^{-3}$  (Bonté *et al.*, 1998). Le premier descendant de longue période, le  $^{210}\text{Pb}$  (22,3 ans), retombe à la surface de la Terre, essentiellement entraîné par les pluies. Très réactif vis-à-vis des particules, le  $^{210}\text{Pb}$  dit « en excès » ( $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ) va marquer les particules superficielles des sols.

Par conséquent, l'activité totale du  $^{210}\text{Pb}$  mesuré dans les particules des sols est égale à la somme du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{supp}}$ , où  $^{210}\text{Pb}_{\text{supp}} = ^{226}\text{Ra}$  en activité.

Le déséquilibre  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  a été largement utilisé en milieu marin et côtier dans l'étude des échanges à l'interface eau-sédiment et du transport des particules (*e.g.* Shimmield *et al.*, 1995 ; Sarin *et al.*, 1999 ; Radakovitch *et al.*, 1999 ; Masqué *et al.*, 2007).

En milieu fluvial, il est possible de « dater » le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  acquis lors du transfert à la rivière (Bonté *et al.*, 1998 ; Bonté *et al.*, 1999). En effet, le  $^{210}\text{Pb}$  se désintègre en  $^{210}\text{Bi}$  de 5 jours de période, puis en  $^{210}\text{Po}$ , un isotope de période relativement longue (138 jours). Dans l'atmosphère, le  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  (issu du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ) n'a pas eu le temps de se former et le rapport d'activités  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est de l'ordre de 10% (Bonté *et al.*, 1998). La fraction du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  acquis lors du transfert dans le milieu aquatique peut être « datée » par la mesure de la re-croissance du rapport d'activités  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  qui tend vers l'unité au cours du temps. L'équilibre radioactif n'est approché qu'après une année au moins (environ).

L'utilisation de cette méthode radioactive de datation a été testée dans la Scarpe pour étudier la dynamique des sédiments à l'interface eau-sédiment.

### 4.1.2.2 Caractérisation des sédiments de surface et des matières en suspension

Le déséquilibre  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  a été déterminé dans les sédiments de surface (tranche 0-3 cm) en avril et mai 2006, et dans les matières suspension, prélevées entre mai et août 2006, en trois points : k13, k16 et k36. L'analyse a porté sur les sédiments de surface car il s'agit des sédiments les plus récents a priori. Les campagnes d'échantillonnage se sont déroulées à 5 semaines d'intervalle afin de déterminer la variation du rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  au cours du temps pour un site de prélèvement donné. Les activités du  $^{210}\text{Pb}$  ont été déterminées par spectrométrie gamma et celles du  $^{210}\text{Po}$  par spectrométrie alpha. Le tableau 4.1 présente les valeurs du rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les sédiments de surface (0-3 cm) et le

tableau 4.2 celles mesurées dans les matières en suspension. L'incertitude correspond à l'erreur standard ( $2\sigma$ ).

Date :	26/4/6			31/5/6		
Site :	k13	k16	k36	k13	k16	k36
$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq.kg <sup>-1</sup> )	58 ±13	47 ±2	81 ±4	56 ±13	56 ±3	59 ±2
$^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$ (Bq.kg <sup>-1</sup> )	73 ±13	55 ±10	84 ±2	71 ±31	81 ±1	111 ±4
$^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	1,24 ±0,04	1,2 ±0,2	1,03 ±0,02	1,4 ±0,9	1,45 ±0,04	1,88 ±0,01

**Tableau 4.1 : Rapport d'activités  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les sédiments de surface (0-3 cm) prélevés en k13, k16 et k36 en avril et mai 2006.**

Dans les sédiments de surface, en fonction du site de prélèvement, le rapport d'activités  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  varie dans l'ordre  $k36 < k13 \approx k16$  en avril, et dans l'ordre  $k13 \approx k16 < k36$  en mai. Il n'y a pas de tendance claire quant à l'évolution du rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  de l'amont vers l'aval, hormis un rapport équivalent dans le matériel sédimentaire déposé en k13 et k16. Entre avril et mai 2006, le rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  a augmenté dans les sédiments pour tous les sites de prélèvement.

On observe un rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}} \geq 1$  pour la majorité des échantillons. Ce déséquilibre ne correspond pas à ceux rencontrés dans une chaîne de filiation radioactive : dans la famille de  $^{238}\text{U}$ , le fils du  $^{210}\text{Pb}$  étant le  $^{210}\text{Po}$ , la re-croissance du  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  à partir du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  fait tendre le rapport d'activité  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  vers l'unité avec le temps jusqu'à l'établissement d'un équilibre de régime. Ici, le rapport indique un enrichissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  dans les sédiments de surface, et cet enrichissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  a augmenté entre avril et mai 2006.

Date:	Site:	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ , Bq.kg <sup>-1</sup>	$^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$ , Bq.kg <sup>-1</sup>	$^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$
31/5/06	k13	86 ± 9	98 ± 14	1.1 ± 0.3
	k16	101 ± 11	74 ± 11	0.7 ± 0.2
	k36	84 ± 9	108 ± 16	1.3 ± 0.3
5/7/06	k13	114 ± 12	116 ± 17	1.0 ± 0.3
	k16	131 ± 14	79 ± 12	0.6 ± 0.2
	k36	85 ± 9	101 ± 15	1.2 ± 0.3
17/8/06	k13	81 ± 9	208 ± 31	2.6 ± 0.7
	k16	94 ± 10	95 ± 14	1.0 ± 0.3
	k36	76 ± 8	122 ± 18	1.6 ± 0.4

**Tableau 4.2 : Rapport d'activité  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les matières en suspension prélevées en k13, k16 et k36 entre mai et août 2006.**

Dans les matières en suspension, quelle que soit la campagne d'échantillonnage, le rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  diminue entre k13 et k16 puis augmente entre k16 et k36. La variation du rapport est associée aux variations concomitantes des activités en  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  et de  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$ . La diminution du rapport en k16 suggère l'existence d'une source locale de particules avec un petit rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . Juste à l'amont de k16 est située la station de relevage qui refoule vers la Scarpe les eaux d'origine pluviale. On peut supposer que les matières en suspension prélevées en k16 sont sous l'influence des rejets de la station. Dans ce cas, la station rejette des matières en suspension où le  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est relativement jeune car le rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  n'a pas encore atteint l'unité. L'étude du rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les matières en suspension de la station apporterait certainement des éléments de réponse. Une telle analyse n'a pas pu être faite dans le cadre de ce travail.

En k13 et k36,  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}} \geq 1$ , tandis qu'en k16, on observe un rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}} \leq 1$ . Un rapport inférieur à 1 indique un appauvrissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  par rapport au  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  : l'équilibre radioactif n'est pas atteint et il est possible *a priori* de « dater » le plomb. Cependant, lorsque le déséquilibre radioactif  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est supérieur à 1, il traduit un

enrichissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  par rapport au  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . L'enrichissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  par rapport au  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  suggère l'existence d'une source supplémentaire de  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  dans le système aquatique. Dans la Scarpe, les concentrations de  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  contiennent une fraction provenant de la décroissance du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  et une fraction provenant d'une source différente.

L'enrichissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  observé dans les matières en suspension et les sédiments de surface constitue une anomalie et l'existence de cette anomalie ne permet pas d'utiliser le rapport d'activités  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  pour dater les dépôts sédimentaires.

Un rapport  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}} > 1$  a déjà été observé dans d'autres milieux aquatiques, notamment côtiers (*e.g.* Radakovitch *et al.*, 1998 ; Masqué *et al.*, 2007). Les hypothèses pouvant expliquer ce type d'anomalie observée dans les sédiments et matières en suspension dans la Scarpe sont :

- L'existence d'un apport atmosphérique ponctuel et atypique de  $^{210}\text{Po}$  ;
- La présence d'un excès de  $^{210}\text{Po}$  dans la phase dissoute de la colonne d'eau issu de la décroissance du  $^{210}\text{Pb}$  associé aux particules qui sédimentent ;
- La décroissance du  $^{210}\text{Pb}$  provenant de l'atmosphère (*i.e.*  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ) n'est pas l'unique mode de production du  $^{210}\text{Po}$  mesuré dans les particules sédimentaires.

Le  $^{210}\text{Po}$  présent dans l'atmosphère peut avoir différentes origines (Moore *et al.*, 1976) : la décroissance du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique émanant des roches crustales (Lambert *et al.*, 1982), le volcanisme (Martin *et al.*, 1986), et les feux de savanes (Le Cloarec *et al.*, 1995). Nho *et al.* (1996) ont mis en évidence le rôle des vents de poussières dans le transport et l'enrichissement en  $^{210}\text{Po}$  observé localement, ainsi que l'importance relative des sources de  $^{210}\text{Po}$  présent dans l'air en fonction de la saisonnalité.

Le polonium est plus volatil que le plomb : la volatilité du Pb est de 1-2 % à 1000 °C (Lambert *et al.*, 1985/1986), alors que le Po est gazeux à partir de 350 °C (Le Guern *et al.*, 1982).

Une autre source possible de  $^{210}\text{Po}$  dans les milieux aquatiques et différente des retombées atmosphériques, a été attribuée à la remise en suspension des sédiments de fond (Radakovitch *et al.*, 1999).

Dans la Scarpe, il est difficile d'expliquer l'enrichissement en  $^{210}\text{Po}$  dans les sédiments. Une étude complémentaire est nécessaire pour identifier les sources de  $^{210}\text{Po}$  dans le secteur d'étude. Néanmoins, la présence de l'enrichissement à la fois dans les sédiments et dans les matières en suspension en k13 et k36 suggère que la source est diffuse. On peut alors supposer que l'enrichissement en  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}$  observé dans la Scarpe résulte d'un fractionnement géochimique entre le Pb et le Po dans l'atmosphère. A proximité du canal, deux sources de chaleur hypothétiques ont été identifiées :

- Les terrils (houille) : la température interne peut dépasser 100 °C à partir de 1 m en profondeur ;
- Les hauts-fourneaux des industries métallurgiques.

### 4.1.3 Le Béryllium-7

#### 4.1.3.1 Méthode du Béryllium-7 : revue bibliographique

Les processus physiques se déroulant dans les milieux aquatiques peuvent être étudiés à l'aide des traceurs radioactifs des particules (*e.g.* Krishnaswami *et al.*, 1980 ; Olsen *et al.*, 1985 ; Schuler *et al.*, 1991 ; Edgington *et al.*, 1991 ; Clifton *et al.*, 1995 ; Jeter, 2000).

Le Béryllium-7 est un isotope radioactif d'origine atmosphérique, naturellement présent sur Terre, de période  $T_{1/2} = 53$  jours, qui a été utilisé dans l'étude du transport des sédiments à l'échelle du bassin versant (Dominik *et al.*, 1987 ; Bonniwell *et al.*, 1999 ; Bonté *et al.*, 2000 ; Matisoff *et al.*, 2002 ; Mullenbach et Nittrouer, 2000 ; Mullenbach *et al.*, 2004 ; Le Cloarec *et*

*al.*, 2007). Le  $^7\text{Be}$  est largement et fortement associé aux particules, il  $^7\text{Be}$  présente un coefficient de partage élevé, avec  $10^4 \leq K_d \leq 10^5$ , dans les milieux aquatiques continentaux (Hawley *et al.* (1986), *ca.*  $3.10^4$ - $2.10^5$ , Olsen *et al.* (1986), *ca.*  $1,6.10^4$ - $2.10^5$ ; Dominik *et al.* (1987), *ca.*  $10^5$ ; Steinmann (1999), *ca.*  $10^5$ ; Bonniwell *et al.* (1999), *ca.*  $> 10^5$ ). Avec sa période relativement courte, le  $^7\text{Be}$  a permis d'étudier le cycle des particules et les processus sédimentaires à court terme (dépôt/érosion) :

- dans des environnements marins peu profonds (Krishnaswami *et al.*, 1980 ; Olsen *et al.*, 1986 ; Baskaran et Santschi, 1993 ; Clifton *et al.*, 1995 ; Feng *et al.*, 1999 ; Giffin et Reide Corbett, 2003) ;
- en milieu côtier (Olsen *et al.*, 1986 ; Dibb et Rice, 1989a ; Dibb et Rice, 1989b ; Canuel *et al.*, 1990 ; Clifton *et al.*, 1995 ; Ciffroy *et al.*, 2003) ;
- dans les eaux douces continentales (Krishnaswami *et al.*, 1980 ; Hawley *et al.*, 1986 ; Fitzgerald *et al.*, 2001 ; Reide Corbett *et al.*, 2004).

Le  $^7\text{Be}$  est produit dans l'atmosphère à partir des réactions de spallation nucléaire du rayonnement cosmique sur les noyaux d'oxygène et d'azote (Lal *et al.*, 1958), puis s'associe rapidement aux aérosols avant d'atteindre la surface terrestre par précipitation sèche et surtout humide lors du lessivage de l'atmosphère par la pluie (Olsen *et al.*, 1985 ; Baskaran, 1995 ; Bonté *et al.*, 2000 ; Ciffroy *et al.*, 2003). Après introduction du  $^7\text{Be}$  dans les environnements terrestres superficiels (sols, eau), le  $^7\text{Be}$  s'adsorbe rapidement aux particules selon des réactions d'échange cationique (Bloom et Creelius, 1983). Dans les environnements aquatiques, en raison de son  $K_d$  élevé, le  $^7\text{Be}$  est essentiellement stocké dans les sédiments (Merrill *et al.*, 1960 ; Krishnaswami *et al.*, 1980 ; Hawley *et al.*, 1986 ; Dibb et Rice, 1989b). Dans la baie de Galveston (USA), Baskaran et Santschi (1993) ont montré que 74 à 86 % du  $^7\text{Be}$  apporté se met sous forme particulaire dans l'heure qui suit un événement pluvieux. La combinaison de l'agrégation et de la décantation significatives des particules a contribué à la fixation de 70 % du  $^7\text{Be}$  total contenu dans l'eau après 24 heures. C'est en raison de sa capacité à s'adsorber rapidement aux particules une fois introduit dans les environnements aquatiques que ce traceur radioactif est utilisé dans l'étude du dépôt et de la remise en suspension/érosion des sédiments.

Le  $^7\text{Be}$  permet de quantifier sur une échelle de temps relativement courte (*i.e.* mensuelle) les flux de sédimentation « rapide » et d'érosion des sédiments. Le principe d'utilisation du  $^7\text{Be}$  est basé sur la variation du stock de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments entre deux périodes d'échantillonnage consécutives (Dibb et Rice, 1989a ; Canuel *et al.*, 1990 ; Fitzgerald *et al.*, 2001 ; Giffin et Reide Corbett, 2003).

Dans le sédiment, l'inventaire (ou stock) total de  $^7\text{Be}$ ,  $I_T$ , comprend deux fractions, un inventaire résiduel, noté  $I_R$ , et un inventaire nouveau,  $I_N$ , soit (Canuel *et al.*, 1990) :

$$I_T = I_R + I_N,$$

avec  $I_R = I_T \exp(-\lambda_{^7\text{Be}} \times \Delta t)$ .

où  $\Delta t$  désigne la période de temps séparant deux campagnes d'échantillonnage.

La fraction résiduelle du stock total correspond au stock de  $^7\text{Be}$  déterminé lors d'un précédent échantillonnage et qui a décru, tandis que le stock nouveau correspond à la différence du stock total mesuré auquel est retranché le stock résiduel. L'intervalle de temps entre deux collectes d'échantillons reste du même ordre de grandeur que la période radioactive du  $^7\text{Be}$  (53 j). Le stock total de  $^7\text{Be}$  est donc déterminé toutes les 4 à 6 semaines.

La figure 4.3 représente de manière schématique le stock de  $^7\text{Be}$  dans une carotte de sédiment prélevée au Mois 1 et au Mois 2 (*i.e.* 4 à 6 semaines plus tard).

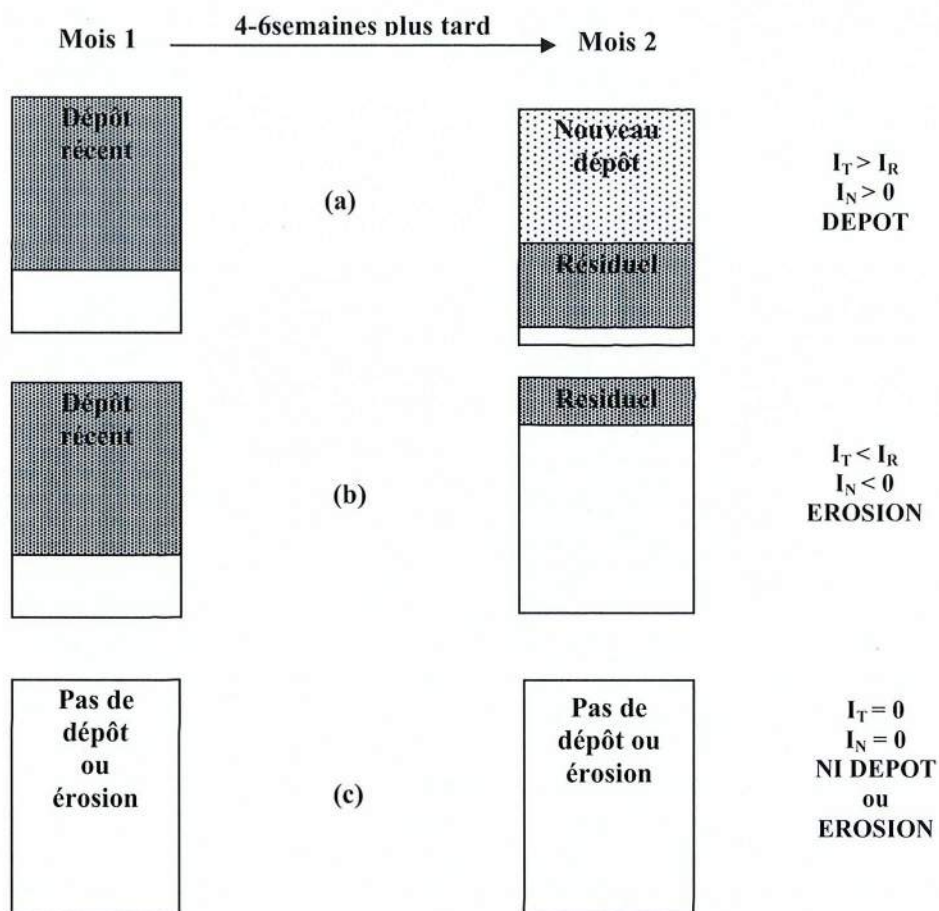


Figure 4.3 : Représentation schématique du stock de  $^7\text{Be}$  dans une carotte de sédiment entre deux collectes successives (Mois 1 & 2). Trois cas de figure : (a), (b) et (c). Source : modifié d'après Giffin et Reide Corbett (2003).

Initialement, au Mois 1, le schéma représente un dépôt de  $^7\text{Be}$  mesurable correspondant à un dépôt récent de particules sédimentaires. Le mois suivant, au Mois 2, le stock total de  $^7\text{Be}$  comprend une fraction dite « résiduelle » de  $^7\text{Be}$  qui correspond au stock de  $^7\text{Be}$  déterminé auparavant au Mois 1 et qui a diminué entre les Mois 1 et 2 en raison de la décroissance radioactive du  $^7\text{Be}$ .

Si le stock total de  $^7\text{Be}$  déterminé au Mois 2 est supérieur au stock résiduel (calculé à partir de la décroissance radioactive du stock de  $^7\text{Be}$  déterminé au Mois 1), cela signifie qu'un stock « nouveau » de  $^7\text{Be}$  est apporté à la surface du sédiment qui correspond à un dépôt de particules récentes marquées au  $^7\text{Be}$ . Il s'agit du cas (a).

Si le stock total de  $^7\text{Be}$  déterminé au Mois 2 est inférieur au stock résiduel de  $^7\text{Be}$ , un événement a contribué à faire « disparaître » une partie des particules sédimentaires marquées au  $^7\text{Be}$  ; cet événement correspond à un processus d'érosion. Il s'agit du cas (b).

Si le stock total de  $^7\text{Be}$  déterminé au Mois 2 et/ou au Mois 1 est nul, il n'y a pas eu apport nouveau de  $^7\text{Be}$  ni de dépôt de particules sédimentaires récentes à la surface du sédiment, ou, un processus d'érosion a eu lieu entre les Mois 1 et 2 et a balayé les particules sédimentaires marquées au  $^7\text{Be}$ . Il s'agit du cas (c).

En s'appuyant sur les travaux précités, le principe d'utilisation du  $^7\text{Be}$  a été mis en œuvre et testé dans la Scarpe afin de quantifier les flux de sédimentation « rapide » et d'érosion. Premièrement, il faut vérifier la présence (ou non) de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments de la Scarpe.

#### 4.1.3.2 Pénétration verticale du $^7\text{Be}$ dans les sédiments

Le  $^7\text{Be}$  est essentiellement présent dans les horizons superficiels des sédiments car les particules « fraîchement » marquées au  $^7\text{Be}$  se déposent à la surface des sédiments. La concentration du  $^7\text{Be}$  une fois déposé décroît de manière exponentielle avec le temps. Le  $^7\text{Be}$  disparaît rapidement dans les sédiments avec la profondeur car la période radioactive du  $^7\text{Be}$  est relativement courte (53 jours) et les concentrations en  $^7\text{Be}$  relativement faibles. D'un point de vue pratique, la présence de  $^7\text{Be}$  à la surface d'une carotte garantit la préservation de l'interface eau-sédiment au moment du prélèvement (e.g. Jeter, 2000).

Afin de vérifier la présence de ce radionucléide dans les sédiments de la Scarpe à des concentrations mesurables et, afin de déterminer la profondeur des sédiments à laquelle le  $^7\text{Be}$  est encore présent, une première de campagne a été mise en place en avril 2005. Trois carottes de sédiments ont été prélevées en k13, k16 et k36. Chaque carotte (section  $25\text{ cm}^2$ ) a été découpée par tranche de 1 cm d'épaisseur. Les activités du  $^7\text{Be}$  ont été déterminées par spectrométrie gamma. Le tableau 4.3 présente les activités du  $^7\text{Be}$  mesurées dans les carottes de sédiment prélevées en k13, k16 et k36. L'incertitude associée correspond à l'incertitude analytique ( $2\sigma$ ).

A ( $^7\text{Be}$ ), Bq.kg <sup>-1</sup>			
sub section (cm)	k13	k16	k36
0-1	< 5	46 ± 6	21 ± 6
1-2	16 ± 5	31 ± 6	6 ± 5
2-3	< 3	10 ± 5	< 5
3-4	< 3	5 ± 3	< 4
4-5	7 ± 1	< 4	< 7

Tableau 4.3 : Activités du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments prélevés en k13, k16 et k36 en avril 2005.

Il n'y a plus de  $^7\text{Be}$  détecté au-delà de 2 cm pour k36 et de 4 cm pour k16. En k13, le  $^7\text{Be}$  est présent localement dans la tranche 4-5 cm en faible quantité ( $7\text{ Bq.kg}^{-1}$ ), alors qu'il n'est pas mesurable dans la tranche 2-4 cm ( $< 2\sigma$ ). En k13, la présence de  $^7\text{Be}$  au-delà de 4 cm de profondeur peut être attribuée à une contamination lors du découpage de la carotte.

Cette étude préliminaire a permis d'établir le mode d'échantillonnage des carottes prélevées pour l'analyse du  $^7\text{Be}$ . Dorénavant, les carottes de sédiment devront contenir 5 cm de sédiment superficiel afin de s'assurer que tout le  $^7\text{Be}$  accumulé à la surface du sédiment a bien été prélevé, et chaque carotte sera découpée en deux tranches (0-3 cm et 3-5 cm) afin de préserver l'enregistrement sédimentaire du  $^7\text{Be}$  du risque d'une dilution trop importante liée à la quantité de matériel prélevée.

## Conclusion

D'après l'étude bibliographique (chapitre 1), les candidats potentiels pour l'étude des processus sédimentaires sur une échelle de temps mensuelle étaient le  $^{210}\text{Po}$ , le  $^{234}\text{Th}$  et le  $^7\text{Be}$ . Sur le terrain, l'étude préliminaire de ces traceurs radioactifs ne permet d'envisager que l'utilisation du  $^7\text{Be}$ . L'enrichissement des sédiments en  $^{238}\text{U}$  et  $^{210}\text{Po}$  est incompatible avec l'utilisation des déséquilibres radioactifs  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}/^{238}\text{U}$  et  $^{210}\text{Po}_{\text{xs}}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  pour caractériser les



processus sédimentaires dans la Scarpe. Seul le  $^7\text{Be}$  présente l'avantage d'être non seulement disponible dans la Scarpe mais aussi d'être mesurable.

Sur les trois sites de prélèvement (k13, k16, k36) seront prélevées des carottes de sédiment et des matières en suspension. La 1<sup>ère</sup> campagne d'investigation (avril 2005) a permis de déterminer le mode d'échantillonnage adopté pour la suite : chaque carotte sera découpée en deux tranches de 0-3 cm et 3-5 cm. Afin de quantifier la variabilité spatiale du dépôt de  $^7\text{Be}$  à la surface des sédiments, trois carottes seront prélevées par site d'échantillonnage.

La méthode d'utilisation du  $^7\text{Be}$  est basée sur la variation du stock de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments entre deux prélèvements successifs. La méthode d'utilisation du  $^7\text{Be}$  impose de réaliser un suivi de terrain avec un délai de 4-6 semaines entre deux campagnes d'échantillonnage. En comptant la première campagne d'investigation menée en avril 2005, quinze campagnes de prélèvements ont ainsi eu lieu entre avril 2005 et août 2006. Le suivi de terrain permet en outre d'étudier l'influence des variations saisonnières sur la dynamique des sédiments.

## 4.2 Dynamique sédimentaire mensuelle des sédiments de surface

### 4.2.1 Enregistrement du $^7\text{Be}$ dans les sédiments de surface

#### 4.2.1.1 Détermination de l'inventaire du $^7\text{Be}$ dans les sédiments

L'inventaire (ou stock) de  $^7\text{Be}$  dans une carotte de sédiment a été calculé à partir de l'activité mesurée du  $^7\text{Be}$  dans chaque sous-niveau de carotte. L'inventaire a été calculé pour chaque sous-niveau  $i$  en multipliant l'activité massique du  $^7\text{Be}$  ( $A_i$ ) par la surface massique ( $M_i$ ), et le stock de  $^7\text{Be}$  dans la carotte de sédiment ( $I$ ) correspond à la somme des inventaires individuels déterminés pour chaque sous-niveau ( $i$ ) :

$$I = \sum A_i(^7\text{Be}) \times M_i .$$

La Limite de Quantification (= LQ) de l'inventaire en  $^7\text{Be}$  est directement imposée par la limite de quantification analytique des activités du  $^7\text{Be}$  mesurées dans les sédiments, soit  $\sim 5 \text{ Bq.kg}^{-1}$  ( $< 2 \sigma$ ). L'incertitude analytique des activités mesurées augmente d'autant plus que la valeur d'activité est faible. Lorsque l'activité mesurée du  $^7\text{Be}$  est inférieure à la limite de quantification analytique, la valeur de l'activité est prise égale à la moitié de la limite de quantification analytique, c'est-à-dire, si  $A(^7\text{Be}) < LQ$ , alors  $A(^7\text{Be}) = \frac{1}{2} LQ$ .

#### 4.2.1.2 Profils verticaux de l'inventaire du $^7\text{Be}$ dans les carottes

Le tableau 4.4 présente les valeurs d'inventaires pour les tranches 0-3 cm et 3-5 cm des carottes prélevées avec trois répliqués (a b c), en k13, k16 et k36, entre mai 2005 et août 2006 (soit 15 campagnes). En avril 2005, les carottes prélevées avaient été découpées tous les 1 cm et le stock présenté pour les tranches 0-3 et 0-5 cm correspond à la somme des inventaires individuels (de 0-1 à 4-5 cm). Trois échantillons n'ont pas pu être analysés en raison de problèmes survenus lors du découpage des carottes et sont notés « ind. » (pour indéterminé). La notation « a b c » est arbitraire et il n'y a pas de relation d'une campagne à l'autre.

Inventaire de $^7\text{Be}$ dans les sédiments, en $\text{Bq.cm}^{-2}$																
Campagne n°		1			2			3			4			5		
date		19/4/05			19/5/05			16/6/05			6/7/05			17/8/05		
réplicat					a b c			a b c			a b c			a b c		
site	tranche															
k13	0-3 cm	0.034	0.030	0.007	0.024	0.012	0.014	0.012	0.049	0.030	0.152	0.030	0.032	0.046		
	3-5 cm	0.014	0.023	0.002	0.007	0.004	0.002	0.003	0.015	0.006	0.034	0.015	0.011	0.031		
k16	0-3 cm	0.135	0.011	0.033	0.025	0.035	0.016	0.027	0.052	0.029	0.069	0.039	0.046	0.045		
	3-5 cm	0.016	0.002	0.010	0.004	0.021	0.009	0.011	0.017	0.006	0.029	0.009	0.016	0.023		
k36	0-3 cm	0.034	0.008	0.012	0.014	0.017	0.026	0.015	0.103	0.020	0.073	0.052	0.060	0.060		
	3-5 cm	0.009	0.002	0.003	0.002	0.004	0.008	0.007	0.027	0.014	0.023	0.017	0.062	0.059		
Campagne n°		6			7			8			9			10		
date		29/9/05			2/11/05			1/12/05			10/1/06			16/2/06		
réplicat		a b c			a b c			a b c			a b c			a b c		
site	tranche															
k13	0-3 cm	0.039	0.049	0.033	0.018	0.001	0.026	0.030	0.028	0.020	0.010	0.010	0.016	0.008	0.002	0.001
	3-5 cm	0.006	0.004	0.005	0.001	0.001		0.003	0.003	0.007	0.002	0.001	0.001	0.001	0.001	0.005
k16	0-3 cm	0.037	0.039		0.043	0.038	0.039	0.040	0.036	0.022	0.022	0.016	0.014	0.014	0.008	0.014
	3-5 cm	0.009	0.017		0.009	0.013	0.020	0.010	0.018	0.014	0.008	0.010	0.007	0.005	0.004	0.001
k36	0-3 cm	0.047	0.035	0.029	0.025	0.022	0.030	0.039	0.020	0.037	0.017	0.015	0.002	0.013	0.008	0.010
	3-5 cm	0.014	0.014	0.010	0.011	0.015	0.019	0.017	0.011	0.028	0.002	0.008	0.005	0.001	0.002	0.010
Campagne n°		11			12			13			14			15		
date		22/3/06			26/4/06			31/5/06			5/7/06			17/8/06		
réplicat		a b c			a b c			a b c			a b c			a b c		
site	tranche															
k13	0-3 cm	0.014	0.015	0.007	0.003	0.004	0.001	0.005	0.017	0.022	0.041	0.040	0.036	0.019	0.017	0.012
	3-5 cm	0.001	0.001	0.005	0.004	0.001	0.001	0.001	0.003	0.001	0.006	0.013	0.009	0.001	0.001	0.001
k16	0-3 cm	0.011	0.020	0.014	0.005	0.009	0.011	0.062	0.059	0.072	0.024	0.051	0.068	0.040	0.042	0.055
	3-5 cm	0.004	0.005	0.003	0.002	0.001	0.001	0.048	0.022	0.032	0.001	0.008	0.017	0.009	0.005	0.015
k36	0-3 cm	0.009	0.009	0.012	0.008	0.017	0.007	0.023	0.030	0.014	0.021	0.035	0.006	0.008	0.008	0.001
	3-5 cm	0.001	0.002	0.004	0.001	0.006	0.001	0.005	0.007	0.004	0.008	0.002	0.025	0.001	0.001	0.003

**Tableau 4.4 : Inventaire du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments (tranches 0-3 et 3-5 cm) prélevés en trois exemplaires (a b c) en trois sites (k13, k16 et k36) entre avril 2005 (campagne n°1) et août 2006 (campagne n°15).**

Les inventaires du  $^7\text{Be}$  varient entre 0 et  $0,15 \text{ Bq.cm}^{-2}$  (section  $25 \text{ cm}^2$ ). L'inventaire peut varier d'un réplicat à l'autre pour un échantillon donné et entre les tranches de surface (0-3 cm) et de profondeur (3-5 cm) pour une même carotte.

De manière qualitative, il est possible de distinguer les profils verticaux des inventaires en  $^7\text{Be}$ . La figure 4.4 correspond à la représentation schématique des inventaires de  $^7\text{Be}$ ,  $I(^7\text{Be})$ , obtenus dans les tranches 0-3 cm et 3-5 cm. Cinq cas de figure sont illustrés.

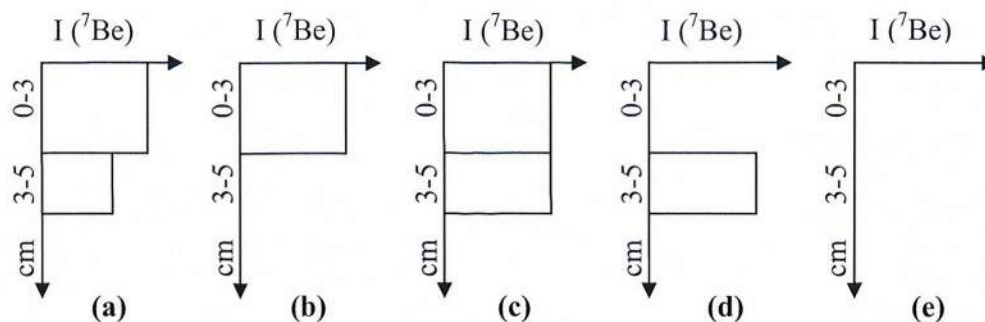


Figure 4. 4 : Représentation schématique des profils verticaux de l'inventaire du  $^7\text{Be}$  dans les tranches 0-3 cm et 3-5 cm des sédiments. (a) Accumulation récente de sédiment. (b) Accumulation moindre de sédiment. (c) Processus de mélange. (d) Dépôt de sédiment âgé sur du sédiment plus récent. (e) Erosion ou dépôt de sédiment âgé.

Ici, on fait l'hypothèse que le  $^7\text{Be}$  est adsorbé de manière irréversible aux particules sédimentaires. La distribution du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments est alors contrôlée par trois facteurs (Krishnaswami *et al.*, 1980) :

- l'apport du  $^7\text{Be}$  *via* la sédimentation ;
- la décroissance radioactive ;
- les processus post-dépôt (*e.g.* mélange).

Lorsque les particules sédimentaires marquées au  $^7\text{Be}$  sont enfouies dans les sédiments, l'activité du  $^7\text{Be}$  décroît de manière exponentielle avec le temps. Le  $^7\text{Be}$  est présent dans la tranche de surface des sédiments (0-3 cm) et si l'apport de  $^7\text{Be}$  a été relativement important, une fraction du  $^7\text{Be}$  peut encore être présente en profondeur au-delà de 3 cm malgré la décroissance radioactive du  $^7\text{Be}$ ; il s'agit du cas (a). Sur l'ensemble de la période d'échantillonnage (entre avril 2005 et août 2006), les stocks de  $^7\text{Be}$  déterminés sont majoritairement représentés par le cas (a), à hauteur de 53 %.

Lorsque l'accumulation des particules marquées au  $^7\text{Be}$  est moindre, seule la tranche de surface contient du  $^7\text{Be}$  qui correspond à un dépôt récent de particules ; il s'agit du cas (b). Sur l'ensemble des stocks déterminés, le cas (b) représente 38 %.

Il arrive que les inventaires du  $^7\text{Be}$  déterminés dans les tranches 0-3 cm et 3-5 cm présentent des valeurs équivalentes (cf. tableau 4.4 : campagne n°10, site k36, carotte c). Ce type de profil suggère l'existence de processus physiques de mélange (*e.g.* bioturbation) contribuant à l'homogénéisation de l'enregistrement sédimentaire du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments superficiels ; il s'agit du cas (c). L'occurrence du cas (c) est de l'ordre de 3 % (*e.g.* k36 : carottes b et c de juillet 05, et carotte c de février 06). Ainsi, les processus de mélange (*e.g.* bioturbation) affectent rarement la distribution du  $^7\text{Be}$  en profondeur.

Le cas (d) représente < 1 % de l'ensemble des cas présents. Seule la carotte prélevée en juillet 2006 en k36 (réplicat c) présente une telle distribution en  $^7\text{Be}$ . Le cas (d) pourrait illustrer la présence d'un dépôt de sédiment « âgé » sur du sédiment plus jeune. Pourtant, les matières en suspension prélevées dans la Scarpe contiennent toujours du  $^7\text{Be}$  (cf. § 4.2.2). Ce qui suggère que l'apport de  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude est continu et que tout sédiment récemment déposé est marqué au  $^7\text{Be}$ . Par conséquent, s'il n'y a pas de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments, c'est qu'il n'y a pas eu de dépôt sédimentaire ou qu'un épisode d'érosion a eu lieu. Le cas (d) est considéré particulier et illustre éventuellement une anomalie qui serait imputée à une erreur d'échantillonnage.

Enfin, certaines carottes prélevées sont dépourvues de  $^7\text{Be}$  dans les tranches de surface et de profondeur et présentent un profil schématisé du type (e). L'occurrence du cas (e) reste inférieure à 5 %. Le cas (e) est présent lors des campagnes de janvier (k36, c), avril (k13,

a b c ; k16, a) et août 2006 (k36, c). Dans ce cas, soit (i) il n'y a pas eu de dépôt sédimentaire récent, soit (ii) un processus d'érosion du sédiment a provoqué la disparition de l'enregistrement sédimentaire du  $^7\text{Be}$ . Pour la campagne d'avril 2006, les stocks mesurés sont très faibles ( $< 0,005 \text{ Bq.cm}^{-2}$ ) et sont dans la gamme de valeurs attendues si aucun dépôt n'avait eu lieu et si le  $^7\text{Be}$  présent ne résultait que de la décroissance du  $^7\text{Be}$  présent auparavant (mars 2006). On peut donc considérer qu'aucun dépôt n'a eu lieu entre mars et avril 2006. En revanche, pour les campagnes de janvier et août 2006, les stocks mesurés restent inférieurs aux stocks attendus si on ne considère que la décroissance radioactive du  $^7\text{Be}$ . Pourtant, le  $^7\text{Be}$  est continuellement apporté dans la Scarpe (cf. § 4.2.2). Le signal du  $^7\text{Be}$  est donc déficitaire, ce qui suggère l'occurrence d'un épisode d'érosion.

Lorsque le profil du stock de  $^7\text{Be}$  est du type (a) et (c), le stock total de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments est peut-être sous-estimé, car il n'est pas certain que tout le  $^7\text{Be}$  ait été prélevé. Dans la majorité des cas, tout le  $^7\text{Be}$  contenu dans les sédiments a bel et bien été prélevé et quantifié. En général, la couche de surface (0-3 cm) est plus riche en  $^7\text{Be}$  que la couche de profondeur (3-5 cm). Lorsqu'en surface et en profondeur la quantité de  $^7\text{Be}$  est élevée (k36 : carottes b et c de juillet 05), ceci suggère une accumulation importante de  $^7\text{Be}$  et donc probablement une accumulation importante de sédiment.

Dans la mesure où le stock de  $^7\text{Be}$  est le critère pris en compte dans la méthode d'utilisation du  $^7\text{Be}$ , il n'est pas nécessaire d'augmenter la résolution du mode d'échantillonnage (découpage plus fin) afin de mettre en évidence la profondeur à laquelle le  $^7\text{Be}$  a disparu. Dans la méthode du  $^7\text{Be}$ , l'inventaire est déterminé pour la tranche 0-5 cm et normalisé par unité de surface.

En chaque site de prélèvement et pour chaque campagne de prélèvement, trois carottes (réplicats : a b c) de sédiment ont été prélevées afin de quantifier l'hétérogénéité horizontale de la distribution du  $^7\text{Be}$ . Pour chaque campagne, le stock déterminé en chaque site et pour chaque tranche (0-3 et 3-5 cm) correspond à la moyenne des stocks calculés pour chaque réplikat (cf. annexe 2.2.1). L'écart-type associé au stock ainsi calculé varie entre 6 % et > 100 %. En général, l'incertitude est faible lorsque le stock de  $^7\text{Be}$  est élevé et inversement. Aussi, la dispersion des valeurs entre les réplicats est généralement plus grande pour la tranche 3-5 cm par rapport à la tranche 0-3 cm. Dans ce cas, l'incertitude est d'origine analytique car plus les activités (et donc les stocks) mesurées sont faibles, plus l'incertitude analytique est grande. Dans certains cas, une hétérogénéité de dépôt du  $^7\text{Be}$  à la surface des sédiments peut être observée (cf. tableau 4.4) :

- En novembre 2005 : en k13, le stock de  $^7\text{Be}$  est important pour la tranche de surface (0-3 cm) dans les carottes a et c et quasi-nul dans la carotte b. Ici, il est difficile de juger s'il y a eu dépôt ou non. Les mêmes observations sont faites en janvier 2006 entre les carottes a, b et c prélevées en k36. Les ou les facteurs responsables de l'hétérogénéité observée n'ont pas pu être précisés.
- En mai 2005 : en k13, le stock total de  $^7\text{Be}$  est important dans la carotte a et quasi-nul dans la carotte b. Ici, il est difficile de juger s'il y a eu dépôt ou non en k13. La même observation est faite pour la tranche de surface (0-3 cm) entre les carottes b, c et a, prélevées en k13 en mai 2006. Ces échantillons ont pu être analysés en granulométrie laser. La capacité d'adsorption des particules vis-à-vis des espèces réactives ( $^7\text{Be}$ ) est d'autant plus élevée que les particules sont fines car elles présentent des surfaces spécifiques plus élevées (e.g. Westrich, 1986 ; Stumm et Morgan, 1996 ; Old et al., 2003 ; Förstner, 2004). Dans ces sédiments, la fraction fine des sédiments évolue peu d'un réplikat à l'autre (44 - 54 %, cf. annexe 2.2.2) et n'explique pas les variations constatées.
- En juillet 2005 : en k36, le stock dans la carotte a pour la tranche 0-3 cm, est 5 fois plus grand que celui de la carotte b. L'hétérogénéité de dépôt du  $^7\text{Be}$  dans les

sédiments est attribuée à la précocité d'un apport très important de  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude. Deux jours avant la campagne de prélèvement, une pluie très importante est tombée : 85 mm en 7 h. La pluviométrie et l'influence sur les apports de  $^7\text{Be}$  est discutée plus loin dans le texte. Nous pensons que le dépôt de  $^7\text{Be}$  est hétérogène à la surface des sédiments car l'apport significatif de  $^7\text{Be}$  au cours de la période est très récent.

#### 4.2.1.3 Inventaires de $^7\text{Be}$ dans les sédiments

Le tableau 4.5 présente les valeurs de stocks totaux moyens de  $^7\text{Be}$  ( $I_T$ ) déterminés pour chaque site de prélèvement, pour les 15 campagnes de prélèvements. Le stock total de  $^7\text{Be}$  dans la tranche 0-5 cm a été déterminé pour chaque carotte à partir de la somme des stocks individuels pour chaque tranche 0-3 cm et 3-5 cm. Le stock total moyen de  $^7\text{Be}$  déterminé pour chaque site sédimentaire correspond à la moyenne des trois réplicats (a b c) des carottes prélevées en chaque site : k13, k16 et k36 :

$$I(^7\text{Be})_{0-5\text{cm}} = \frac{\sum_{i=1}^c I(^7\text{Be})_{0-5\text{cm}}}{3}$$

Le tableau 4.5 présente également le stock résiduel, calculé à partir de la décroissance du  $^7\text{Be}$  entre deux campagnes de prélèvement, et le stock nouveau calculé à partir de la différence entre le stock total et le stock résiduel. L'incertitude du stock total (et résiduel) correspond à l'écart-type associé à la moyenne du stock dans les trois réplicats. Par conséquent, il s'agit d'une incertitude globale qui tient compte de l'incertitude analytique ( $2\sigma$ ), de l'hétérogénéité de dépôt du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments et des éventuels effets de matrice. Pour la campagne n°1 (avril 2005), l'incertitude n'a pas été déterminée car après découpage des réplicats de carottes, la quantité de sédiment obtenue était insuffisante : les sous-échantillons ont donc été regroupés par tranche pour obtenir suffisamment de matériel nécessaire à l'analyse en spectrométrie gamma.

		Stock $^7\text{Be}$ , en mBq.cm <sup>-2</sup>														
n°campagne		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
date prélèvement		19/4/05	19/5/05	16/6/05	6/7/05	17/8/05	29/9/05	2/11/05	1/12/05	10/1/06	16/2/06	22/3/06	26/4/06	31/5/06	5/7/06	17/8/06
$\Delta t$ (jour)			30	28	20	42	43	34	29	40	37	34	35	35	35	43
k13	Total	48	31	15	95	55	45	16	30	14	6	15	5	16	48	16
	±		22	1	80	19	8	12	3	3	3	2	3	9	4	3
	Résiduel		33	21	12	55	31	29	11	18	8	4	9	3	10	28
	±		0	16	1	46	11	5	8	2	2	2	1	2	6	2
	Nouveau		-2	-6	84	0	14	-13	20	-5	-2	11	-4	13	38	-11
±		22	16	80	65	19	17	11	5	5	4	4	11	9	5	
k16	Total	151	29	39	67	59	51	54	47	26	16	19	10	98	56	55
	±		15	16	32	11	7	4	9	5	4	6	3	15	30	12
	Résiduel		102	20	30	39	34	33	37	28	16	10	12	6	62	32
	±		0	10	12	19	6	4	3	6	3	2	4	2	10	17
	Nouveau		-73	19	37	20	17	22	10	-2	0	9	-2	92	-6	23
±		15	26	44	29	13	9	12	11	7	8	7	17	39	29	
k36	Total	43	13	25	87	103	50	40	50	16	15	13	13	28	32	8
	±		3	7	49	30	11	7	17	8	5	3	8	9	4	3
	Résiduel		29	9	20	50	59	32	28	30	10	9	8	9	18	18
	±		0	2	6	28	17	7	5	10	5	3	2	5	6	2
	Nouveau		-16	16	67	53	-9	8	23	-14	5	3	5	19	15	-11
±		3	10	54	58	28	14	22	18	10	7	10	14	10	5	

Tableau 4.5 : Stock total, résiduel et nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments prélevés en k13, k16 et k36 entre avril 2005 et août 2006.

**Stock total**

Le stock total de  $^7\text{Be}$  varie entre 5 et 151  $\text{mBq.cm}^{-2}$ . L'incertitude associée au stock total varie entre 6 et 83 %. Entre avril 2005 et août 2006, l'incertitude vaut en moyenne 37 % en k13, 28% en k16, et 33% en k36. Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles rencontrées dans la littérature (Canuel *et al.* (1990), *ca.* 25 % ; Giffin et Reide Corbett (2003), *ca.* 33 %). Cette incertitude est liée à l'hétérogénéité de dépôt du  $^7\text{Be}$  à la surface des sédiments, et à l'incertitude analytique lorsque les activités (et donc les stocks) de  $^7\text{Be}$  sont faibles.

Le stock total de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments comprend une fraction résiduelle et une fraction nouvelle de  $^7\text{Be}$ . Pour apprécier la variation de stock associée à celle des apports de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments au cours du temps, il faut travailler avec le stock nouveau de  $^7\text{Be}$  et donc s'affranchir de la fraction de  $^7\text{Be}$  issue de la décroissance radioactive du stock total déterminé lors de la campagne précédente (stock résiduel). Par exemple, en août 2006, le stock total de  $^7\text{Be}$  mesuré dans les sédiments en k13 et k16 est équivalent (60  $\text{mBq.cm}^{-2}$ ). En k13, le stock résiduel est équivalent au stock total, il en résulte un stock nouveau nul et traduit l'absence de processus de dépôt/d'érosion. En k16, le stock résiduel est inférieur au stock total, il en résulte un stock nouveau positif correspondant à un dépôt récent de sédiment.

**Stock nouveau**

D'après le tableau 4.5, le stock nouveau varie entre -73 et 92  $\text{mBq.cm}^{-2}$ . Lorsque le stock nouveau est négatif, il indique un déficit en  $^7\text{Be}$  et correspond à un processus d'érosion. Lorsque le stock nouveau est positif, il indique un supplément de  $^7\text{Be}$  correspondant à un dépôt de sédiment. Le calcul de l'incertitude associée au stock nouveau correspond à l'application directe de la loi de propagation des erreurs avec  $1\sigma$ . Toutefois, il est permis de discuter de la pertinence de ce mode de calcul. Ce qui génère l'incertitude, c'est soit (i) l'hétérogénéité horizontale de dépôt du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments entre les répliquats prélevés, soit (ii) l'incertitude analytique lorsque le  $^7\text{Be}$  est présent en très petite quantité. Si on tient compte de l'incertitude calculée, lorsque le stock nouveau est inférieur à l'erreur, on devrait considérer en toute rigueur qu'il n'y a ni dépôt, ni érosion des sédiments. Pourtant, d'après la détermination des stocks de  $^7\text{Be}$  dans les répliquats de carottes (cf. § 4.2.1.2), hormis quelques exceptions, la certitude que le  $^7\text{Be}$  s'est déposé ou non est satisfaisante. Nous pensons que l'incertitude ainsi calculée pour le stock nouveau est majorée, et nous préférons une approche moins systématique, avec une critique au cas par cas à partir des considérations faites sur les stocks individuels de  $^7\text{Be}$  (cf. § 4.2.1.2).

Le stock nouveau est indépendant au cours du temps car il ne dépend que du stock total déterminé au cours de la campagne précédente. Le bilan du stock nouveau entre mai 2005 et août 2006 vaut 135  $\text{mBq.cm}^{-2}$  en k13, 165  $\text{mBq.cm}^{-2}$  en k16 et k36. Le bilan est positif et traduit la capacité pour les particules sédimentaires à se déposer à la surface des sédiments.

Le stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments varie en fonction des processus sédimentaires (*i.e.* quantité de sédiment déposé ou érodé) et des apports de  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude (*via* la pluie principalement). La figure 4.5 représente la variation du stock nouveau de  $^7\text{Be}$  des sédiments et la pluviométrie entre avril 2005 et août 2006. Les données sont issues du tableau 4.5. Les données de pluviométrie ont été gracieusement fournies par la Société des Eaux de Douai qui gère les pluviomètres situés à proximité du secteur d'étude. Les données de pluviométrie correspondent à la quantité totale de pluie tombée dans le secteur d'étude entre deux campagnes d'échantillonnage : il s'agit donc d'une information intégrée à l'échelle du mois.

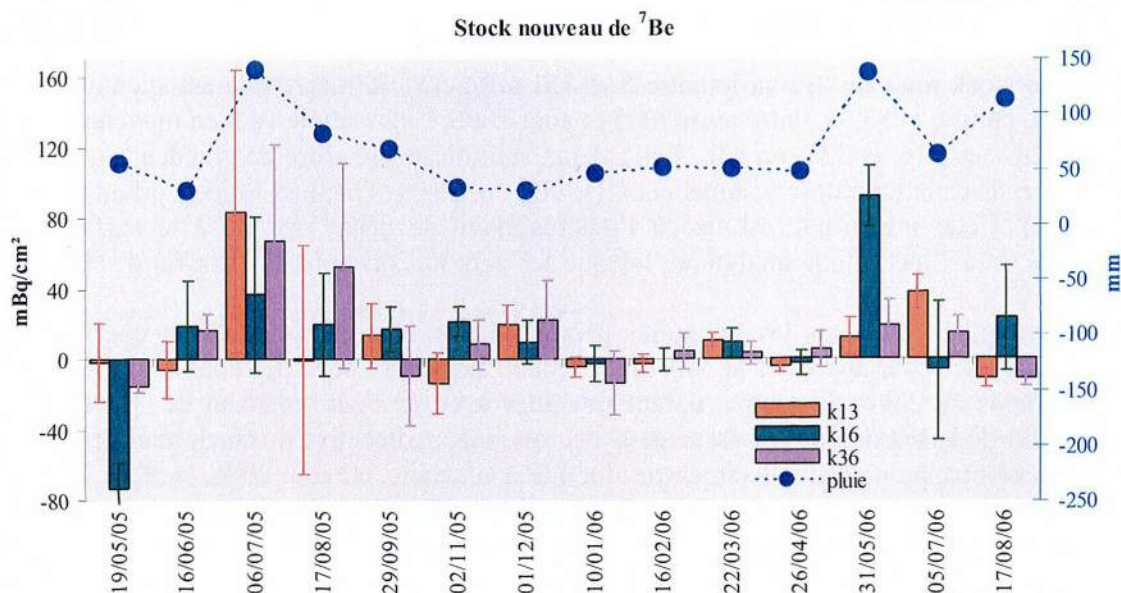


Figure 4. 5 : Evolution du stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments en k13, k16 et k36, entre mai 2005 et août 2006.

En juillet 2005, l'augmentation du stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments en k13, k16 et k36 est associée au pic de pluviométrie (140 mm). Entre janvier et avril 2006, les faibles valeurs de stock nouveau sont liées à des périodes où la pluie cumulée n'est pas très importante ( $\sim 50$  mm). Les variations saisonnières de  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude sont donc capables d'influencer ponctuellement la variation de stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments.

Cependant, une pluie cumulée importante n'implique pas forcément un stock de  $^7\text{Be}$  important. En mai 2006, alors que la pluie est forte ( $\sim 140$  mm), seul le stock mesuré en k16 augmente franchement. Cette différence entre k16 et k13-k36 peut s'expliquer selon deux hypothèses :

- Soit on considère que le matériel qui sédimente en k13, k16 et k36 a la même activité : dans ce cas une quantité plus importante de sédiment s'est déposée en k16 par rapport à k13 et k36.
- Soit les sédiments qui vont se déposer en k16 ont été enrichis en  $^7\text{Be}$  par rapport à ceux de k13 et k36 : on suppose alors qu'il existe une source capable d'enrichir ponctuellement les sédiments en  $^7\text{Be}$ . Ainsi, la station de relevage qui refoule des matières en suspension vers la Scarpe, et qui est située juste à l'amont de k16, pourrait avoir une influence sur la quantité de  $^7\text{Be}$  présente dans les sédiments. La variation du stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments peut donc dépendre de l'origine des particules sédimentaires. Les sédiments déposés peuvent être le résultat d'un mélange entre des particules sédimentaires plus ou moins marquées au  $^7\text{Be}$  provenant de sources différentes. Ce type de mélange contribue alors à diminuer ou augmenter le stock de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments

Entre novembre 2005 et avril 2006, la variation du stock nouveau ne présente pas de grande amplitude et ce, pour les trois sites échantillonnés. Cette période de l'année où les sédiments se déposent et/ou s'érodent peu correspond également à la période où la pluie cumulée n'est pas importante ( $\leq 50$  mm). Deux explications sont possibles :

- Soit on considère que la variation de stock est liée à la dynamique des sédiments et que, par conséquent, les sédiments évoluent peu au cours du temps. On peut alors supposer que l'eau est relativement stagnante car la faible pluviosité n'engendre pas un courant suffisant pour que les sédiments daignent se mouvoir.

- Soit on considère que la quantité de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments n'est pas importante du fait des apports faibles de  $^7\text{Be}$  dans le milieu (*via* la pluie). On peut alors imaginer un cas extrême où il ne pleut plus pendant longtemps, il n'y a donc plus de  $^7\text{Be}$  dans le milieu aquatique. Le stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments peut rester nul pendant plusieurs mois. Ainsi, si le marqueur n'est plus présent, la méthode du  $^7\text{Be}$  nous indiquera qu'il n'y a ni dépôt, ni érosion pendant cette période. Alors que rien n'exclut un dépôt récent de sédiments non marqués au  $^7\text{Be}$ . L'utilisation du  $^7\text{Be}$  repose sur un apport continu de  $^7\text{Be}$  dans le milieu. Dans la Scarpe, l'apport de  $^7\text{Be}$  est assuré du fait d'une pluie continue au cours de l'année (§ 4.2.2 ci-dessous).

Pour observer les variations de stock sous l'angle de la dynamique sédimentaire, il est nécessaire de s'affranchir de la variabilité des apports de  $^7\text{Be}$  dans le système aquatique. Avant de s'accumuler à la surface des sédiments, les particules sédimentaires sont en suspension dans l'eau et se déplacent de l'amont vers l'aval. En raison de la réactivité du  $^7\text{Be}$  dans l'eau, les matières en suspension constituent le principal vecteur de transport du  $^7\text{Be}$  dans le milieu aquatique. Les variations de l'activité en  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension constituent donc un facteur de contrôle sur la quantité de  $^7\text{Be}$  accumulée dans les sédiments ; elles sont capables *a priori* d'intégrer toutes les variations dans le secteur d'étude. Ces variations dépendent de la variabilité des apports atmosphériques (pluie) et des différentes sources de matériel particulaire (sédiments anciens remis en suspension contenant peu ou pas de  $^7\text{Be}$  ou, matières en suspension récemment issues de l'érosion des sols). On se propose de discuter les variations des activités du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension. L'étude du signal de  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension est proposée dans le paragraphe suivant.

#### **4.2.2 Activités du $^7\text{Be}$ dans les matières en suspension**

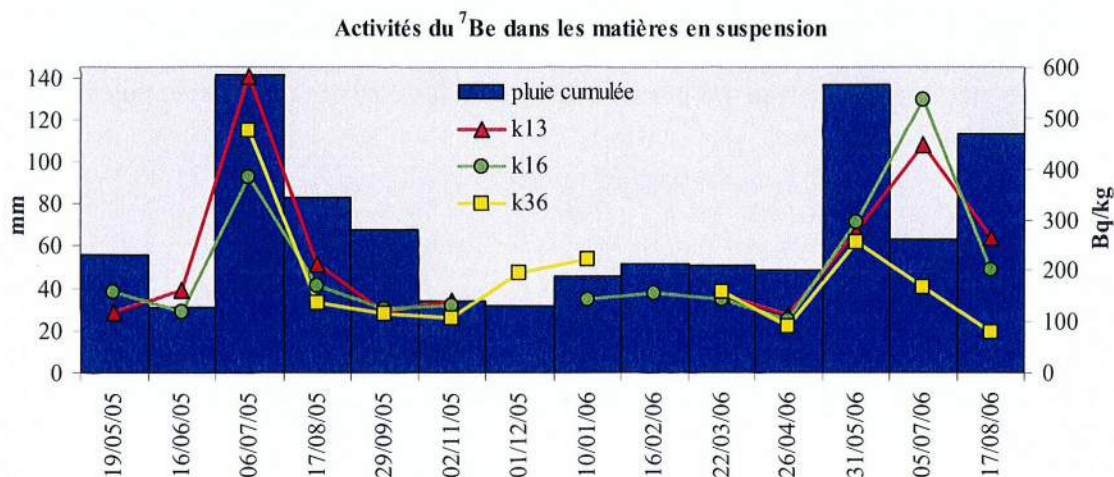
Les matières en suspension vont nous servir de référence pour estimer l'importance des apports en  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude. Le tableau 4.6 donne les activités en  $^7\text{Be}$  mesurées dans les matières en suspension prélevées entre mai 2005 et août 2006 dans la Scarpe, et à l'entrée de la station de relevage. L'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension est corrigée de la décroissance radioactive entre l'installation et le prélèvement du piège : on considère que le  $^7\text{Be}$  décroît à partir de la mise en place du piège dans l'eau. Lorsque les matières en suspension n'ont pas pu être prélevées (perte, vol du piège), l'activité du  $^7\text{Be}$  n'a pas pu être mesurée. Le tableau 4.6 présente également les données de pluie cumulée pour la même période.



Activités du <sup>7</sup> Be (Bq.kg <sup>-1</sup> ) dans les matières en suspension														
n°campagne	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15
date	19/5/05	16/6/05	6/7/05	17/8/05	29/9/05	2/11/05	1/12/05	10/1/06	16/2/06	22/3/06	26/4/06	31/5/06	5/7/06	17/8/06
Δt (jours)	30	28	20	42	43	34	29	40	37	34	35	35	35	43
<b>k13</b>	120	162	582	215	120	139				153	112	278	448	264
± (2σ)	14	14	31	4	3	5				5	4	5	10	12
<b>k16</b>	158	120	384	171	126	131		144	156	144	102	297	535	201
± (2σ)	5	6	8	4	3	6		3	9	5	4	8	7	9
<b>k36</b>		141	474	137	117	108	196	223		159	91	256	168	81
± (2σ)		20	12	3	3	4	5	10		6	5	7	6	7
<b>SR Vallée</b>				815	583	344	303					250	918	
± (2σ)				16	18	32	6					6	31	
<b>pluie cumulée, mm</b>	61	42	137	86	51	35	35	46	52	51	48	137	63	113

**Tableau 4. 6 : Activité du <sup>7</sup>Be dans les matières en suspension prélevées en k13, k16 et k36 et dans la station de relevage, et pluviométrie, entre mai 2005 et août 2006.**

L'activité du <sup>7</sup>Be dans les matières en suspension prélevées dans la Scarpe varie entre 81 et 582 Bq.kg<sup>-1</sup>. L'activité du <sup>7</sup>Be varie au cours de l'année pour un site d'échantillonnage donné et d'un site d'échantillonnage à l'autre pour une période de temps considérée. Les apports en <sup>7</sup>Be sont donc hétérogènes au cours du temps et entre les sites de prélèvement dans le cours d'eau. Les matières en suspension prélevées à l'entrée de la station de relevage contiennent généralement plus de <sup>7</sup>Be que les matières en suspension dans la Scarpe (jusqu'à 918 Bq.kg<sup>-1</sup>). L'enrichissement en <sup>7</sup>Be dans les matières en suspension de la station est attribué à l'origine des particules entrant dans la station. La station de relevage permet en effet de refouler les eaux d'origine pluviale vers la Scarpe et le <sup>7</sup>Be est principalement apporté à la surface par la pluie. Dans la mesure où l'apport de <sup>7</sup>Be présent dans les horizons superficiels est principalement contrôlé par les précipitations humides (Olsen *et al.*, 1985 ; Baskaran, 19995 ; Bonté *et al.*, 2000 ; Caillet *et al.*, 2001 ; Ciffroy *et al.*, 2003 ; Le Cloarec *et al.*, 2007), la pluviométrie doit jouer un rôle sur les activités en <sup>7</sup>Be mesurées dans les matières en suspension. La figure 4.6 présente l'évolution des activités en <sup>7</sup>Be dans les matières en suspension prélevées dans la Scarpe en k13, k16 et k36, ainsi que la pluviométrie (pluie cumulée). Cette figure permet d'illustrer l'influence des variations saisonnières (pluie) sur les activités mesurées.



**Figure 4. 6 : Activités du <sup>7</sup>Be dans les matières en suspension prélevées en k13, k16 et k36, et pluie cumulée entre avril 2005 et août 2006.**

Nous distinguons quatre zones sur le graphique :

- En juillet 2006, le pic de  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension prélevées en k13, k16 et k36 ( $> 380 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) est parfaitement corrélé au pic de pluviométrie cumulée (141 mm). C'est donc bien la pluie qui est responsable de l'apport de  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension du cours d'eau. En juillet 2006, les précipitations quotidiennes sont particulièrement importantes, avec un pic de 85 mm deux jours avant la campagne de prélèvement (cf. figure 4.7). La corrélation observée entre les pics de pluie et d'activité suggère une réactivité rapide du  $^7\text{Be}$  avec les particules sédimentaires. Les matières en suspension ont rapidement enregistré le signal de  $^7\text{Be}$  délivré par la pluie.
- De mai à juin 2005 et de septembre 05 à avril 06, la pluviométrie cumulée n'est pas très importante ( $\leq 60 \text{ mm}$ ) et les activités du  $^7\text{Be}$  non plus ( $\leq 220 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). Les matières en suspension dans le cours d'eau contiennent peu de  $^7\text{Be}$  car l'apport de  $^7\text{Be}$  par la pluie n'est pas très important. De plus, l'activité varie peu en général entre les trois sites échantillonnés. Au mieux, les activités sont équivalentes (septembre 2006). Au maximum, elles varient d'un facteur 1,5 (janvier 2006). Ici, l'information importante est que les activités restent faibles car la pluie n'est pas importante.
- Entre avril et juillet 2006, l'évolution de la pluie et des activités soulève d'autres questions. Entre avril et mai, l'augmentation des activités en k13, k16 et k36 est liée à celle de la pluviométrie. De nouveau, la variation du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension est liée aux variations saisonnières. Cependant, alors que le pic d'activité en k36 est très bien corrélé au pic de pluie en mai, le pic d'activité en k13 et k16 n'apparaît que lors de la campagne suivante (juillet 2006). Il y a donc un décalage dans le temps entre l'enregistrement du signal de  $^7\text{Be}$  en k36 et k13-k16. Ce décalage ne peut être attribué à l'idée que l'adsorption du  $^7\text{Be}$  serait moins efficace en k13 et k16 par rapport à k36, car les activités du  $^7\text{Be}$  en mai 2006 sont similaires entre elles et équivalentes à celles de la station de relevage (cf. tableau 4.6). En mai 2006, l'apport de  $^7\text{Be}$  par la pluie est donc le même pour toutes les matières en suspension prélevées dans le cours d'eau et dans l'eau de la station. Nous pensons que l'apparition tardive des pics de  $^7\text{Be}$  en k13 et k16 en juillet 2006 est liée aux caractéristiques de l'épisode pluvieux. En effet, bien que la pluviosité en avril-mai 2006 soit équivalente à celle de juin-juillet 2005, la pluie n'est pas tombée de la même manière (cf. figure 4.7). En juin-juillet 2005, la pluie est très forte durant un laps de temps court (85 mm en 7 h), tandis qu'en avril-mai 2006, il pleut souvent, mais pas forcément beaucoup ( $< 20 \text{ mm}$  par jour). L'apport élevé de  $^7\text{Be}$  par la pluie est ponctuel en juillet 2005 et continu en avril-mai 2006. L'apparition tardive des pics d'activités en k13 et k36 en juillet 2006 suggère un apport tardif de  $^7\text{Be}$ . Tout le  $^7\text{Be}$  apporté par la pluie n'est pas encore présent dans la Scarpe au moment de la campagne de prélèvement. D'ailleurs, l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension de la station n'est maximale qu'en juillet ( $918 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). Le décalage observé traduit une certaine inertie entre l'apport de  $^7\text{Be}$  par la pluie et l'enregistrement du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension. Toujours en juillet 2006, malgré un apport, certes tardif, mais important de  $^7\text{Be}$  dans le milieu, l'activité du  $^7\text{Be}$  diminue en k36. Cette diminution de l'activité du  $^7\text{Be}$  entre les matières en suspension prélevées à l'amont (k13-k16) et à l'aval (k36) suggère l'occurrence d'un processus de mélange entre des particules récemment marquées au  $^7\text{Be}$  et des particules âgées.
- Entre juillet et août 2006, l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension diminue alors que la pluviométrie cumulée augmente. La pluviométrie quotidienne (figure 4.7) montre deux apports ponctuels assez élevés ( $\geq 30 \text{ mm}$ ) dont un, peu de temps avant la campagne d'août. On peut supposer que le  $^7\text{Be}$

apporté par la pluie est délivré dans la Scarpe avec un temps de retard et que l'activité des matières en suspension augmentera plus tard (hélas, fin du suivi de terrain !). Dans ce cas, l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension est au moins égale à l'activité mesurée précédemment, moins la fraction de  $^7\text{Be}$  qui a décré. La comparaison entre les activités théoriques et mesurées du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension ne montre pas d'écart en k13 et fait apparaître un déficit de  $^7\text{Be}$  en k16 (~ 30 %) et k36 (~ 15 %). L'existence d'un déficit suggère à nouveau l'occurrence de processus de mélange entre des sédiments en suspension plus ou moins âgés.

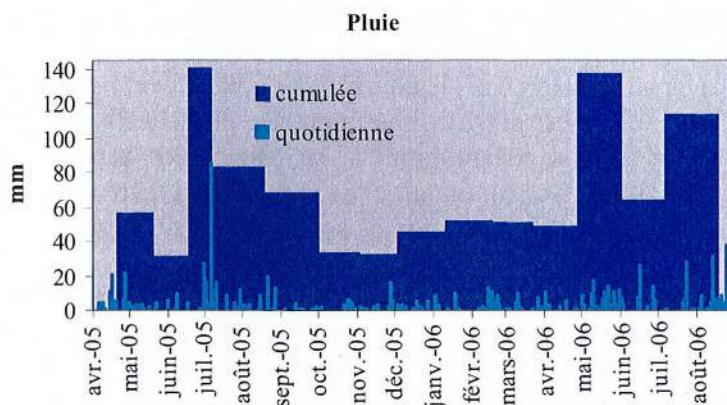


Figure 4. 7 : Evolution de la pluie au cours du temps : pluie quotidienne, et pluie cumulée sur la période de temps séparant deux campagnes de prélèvement.

L'évolution du stock nouveau de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments avait mis en évidence un stock particulièrement important en k16 en mai 2006, en comparaison avec k13 et k36 (cf. § 4.2.1.3). Deux hypothèses avaient été formulées : soit l'apport de sédiment est plus important en k16 par rapport à k13 et k36, soit l'activité du matériel déposé en k16 contient plus de  $^7\text{Be}$ . En admettant que les matières en suspension contiennent une partie de l'information enregistrée par les sédiments de surface, on sait à présent que l'importance du stock nouveau est surtout liée à la quantité des sédiments déposés, puisque l'activité des matières en suspension est équivalente entre k16 et k13-k36. Ce cas illustre bien la nécessité de s'affranchir des variations des apports en  $^7\text{Be}$  dans le milieu si on veut considérer que les variations de stock nouveau dans les sédiments dépendent uniquement de la dynamique sédimentaire (dépôt/érosion).

Les autres facteurs pouvant influencer les activités de  $^7\text{Be}$  mesurées dans les matières en suspension sont :

- la distribution du  $^7\text{Be}$  entre phase dissoute et particulaire et la cinétique de transfert (Bloom et Crecelius, 1983 ; Hawley *et al.*, 1986 ; Olsen *et al.*, 1986 ; Dibb et Rice, 1989b ; Steinmann *et al.*, 1999) ;
- l'hétérogénéité des particules (Olsen *et al.*, 1986).

Dans la Scarpe, nous avons cherché s'il y avait une relation entre la charge particulaire et les activités en  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension. La charge particulaire a été déterminée de manière ponctuelle dans le temps et l'espace : entre avril 2005 et août 2006 toutes les 4-6 semaines, en k13, k16 et k36 (dans le cadre du suivi de terrain). Ponctuellement, la charge particulaire varie entre 9 et 60 mg.L<sup>-1</sup> (données C. Alary, communication personnelle). Ces variations illustrent l'hétérogénéité de la colonne d'eau. Entre avril 2005 et août 2006, en moyenne, la charge particulaire est équivalente entre les différents sites (~ 20 mg.L<sup>-1</sup>). Et, l'évolution des activités du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension en fonction de la charge particulaire n'a pas montré de tendance claire.

Dans la Scarpe nous avons aussi cherché s'il y avait une relation entre la fraction fine (*i.e.*  $\varnothing \leq 50 \mu\text{m}$ ) et l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension. Entre avril 2005 et août 2006, la fraction fine vaut 56-71 % en k13, 54-70 % en k16 et 55-82 % en k36. Aucune relation n'a été mise en évidence car la fraction fine évolue peu au regard des activités en  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension.

Pour conclure, l'apport de  $^7\text{Be}$  dans la Scarpe est largement assuré par la pluie. L'enregistrement du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension dépend surtout de la quantité de pluie tombée et de la nature de l'événement pluvieux, mais aussi de l'origine des particules. L'occurrence de processus de mélange dans la colonne d'eau entre des particules plus ou moins âgées et donc de provenances différentes (remise en suspension de sédiments âgés) peut également affecter le signal du  $^7\text{Be}$ . Signalons que l'utilisation du rapport d'activités  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  permet de quantifier les processus de mélange se déroulant dans la colonne d'eau (Matisoff *et al.*, 2005). L'utilisation de ce rapport est proposée dans l'annexe 5.

#### 4.2.4 Taux de dépôt et d'érosion des sédiments de surface

##### 4.2.4.1 Résultats et suivi temporel

Afin de caractériser une dynamique sédimentaire sur une échelle de temps mensuelle avec des flux de dépôt et des flux d'érosion, nous avons proposé d'utiliser la méthode du  $^7\text{Be}$  exposée auparavant. Pour rappel, la méthode du  $^7\text{Be}$  est basée sur la variation du stock de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments de surface entre deux périodes d'échantillonnage successives. Pour chaque campagne de prélèvement, le stock nouveau est calculé à partir de la différence entre le stock total et le stock résiduel :  $I_N = I_T - I_R$ , le stock résiduel étant calculé à partir du stock total déterminé auparavant et corrigé de la décroissance du  $^7\text{Be}$ . Lorsque le stock nouveau est positif, il indique une période de dépôt de sédiments récents et lorsqu'il est négatif, il indique une période d'érosion. Cependant, l'apport de  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude dépend des variations saisonnières (pluie). Afin de quantifier les flux de dépôt et d'érosion, il convient donc de normaliser le stock nouveau de  $^7\text{Be}$  ( $I_N$ ) par rapport à l'activité du matériel sédimentaire qui s'est déposé ou érodé. Ainsi, nous suggérons de prendre l'activité du  $^7\text{Be}$  déterminée dans les matières en suspension prélevées dans la Scarpe. En effet, nous avons montré que l'enregistrement sédimentaire du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension tient compte de la variabilité des apports de  $^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude et de la variabilité des sources de  $^7\text{Be}$ . Nous prendrons l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension comme facteur de correction afin de s'affranchir de tous les facteurs de variation du  $^7\text{Be}$  autres que la dynamique des sédiments. Et, le stock de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments ainsi corrigé ne varie plus qu'en fonction de la quantité de sédiment déposée/érodée.

Le flux de dépôt/d'érosion est déterminé à partir du rapport :

$$\frac{I_N}{A(^7\text{Be})_{\text{Matières En Suspension}}},$$

où  $I_N$  désigne le stock nouveau de  $^7\text{Be}$  et  $A(^7\text{Be})_{\text{MES}}$  l'activité des matières en suspension en  $^7\text{Be}$ .

Ici, nous ferons l'hypothèse que les sédiments une fois érodés sont capables d'être transportés vers l'aval dans le cours d'eau.

Le tableau 4.7 reprend l'ensemble des valeurs de stocks de  $^7\text{Be}$  total ( $I_T$ ), résiduel ( $I_R$ ) et nouveau ( $I_N = I_T - I_R$ ), et les activités de  $^7\text{Be}$  nécessaires au calcul du flux de Dépôt/Erosion

(= flux D/E) des sédiments en k13, k16 et k36, entre avril 2005 et août 2006. Le stock nouveau de  $^7\text{Be}$  est déterminé pour une période de temps (mensuelle) et normalisé à l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension prélevées au cours de la même période. Lorsque les matières en suspension n'ont pas été prélevées (perte, vol du piège), l'activité du  $^7\text{Be}$  correspond à l'activité ou la moyenne des activités obtenues pour le ou les autres. C'est le cas pour les matières en suspension prélevées en k13 entre décembre 2005 et février 2006, en k16 en mai 2005 et février 2006, et en k36 en mai 2005 et février 2006. Durant ces périodes, la pluviosité n'étant pas très élevée, l'activité des matières reste *a priori* faible et équivalente d'un site à l'autre. On néglige néanmoins la possibilité de processus de mélange entre des sédiments en suspension plus ou moins âgés.

Calcul du taux de dépôt/érosion des sédiments																
n°campagne	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	Bilan d'avril 05 à août 06
date prélèvement	19/4/05	19/5/05	16/6/05	6/7/05	17/8/05	29/9/05	2/11/05	1/12/05	10/1/06	16/2/06	22/3/06	26/4/06	31/5/06	5/7/06	17/8/06	
	$\Delta t$ (jour)	48	30	28	20	42	43	34	29	40	37	34	35	35	43	
k13	$I_r$ , mBq/cm <sup>2</sup>		31	15	95	55	45	16	30	14	6	15	5	16	48	16
	$I_e$ , mBq/cm <sup>2</sup>		33	21	12	55	31	29	11	18	8	4	9	3	10	28
	$I_N$ , mBq/cm <sup>2</sup>		-2	-6	84	0	14	-13	20	-5	-2	11	-4	13	38	-11
	$A(^7\text{Be})$ MES, Bq/kg		120	162	582	215	120	139	196	183	156	153	112	278	448	264
	Taux D/E, g/cm <sup>2</sup>		-0.01	-0.04	0.14	0.00	0.11	-0.10	0.10	-0.02	-0.01	0.07	-0.04	0.05	0.09	-0.04
k16	$I_r$ , mBq/cm <sup>2</sup>	151	29	39	67	59	51	54	47	26	16	19	10	98	56	55
	$I_e$ , mBq/cm <sup>2</sup>		102	20	30	39	34	33	37	28	16	10	12	6	62	32
	$I_N$ , mBq/cm <sup>2</sup>		-73	19	37	20	17	22	10	-2	0	9	-2	92	-6	23
	$A(^7\text{Be})$ MES, Bq/kg		158	120	384	171	126	131	196	144	156	144	102	297	535	201
	Taux D/E, g/cm <sup>2</sup>		-0.46	0.16	0.10	0.12	0.14	0.17	0.05	-0.02	0.00	0.06	-0.02	0.31	-0.01	0.11
k36	$I_r$ , mBq/cm <sup>2</sup>	43	13	25	87	103	50	40	50	16	15	13	13	28	32	8
	$I_e$ , mBq/cm <sup>2</sup>		29	9	20	50	59	32	28	30	10	9	8	9	18	18
	$I_N$ , mBq/cm <sup>2</sup>		-16	16	67	53	-9	8	23	-14	5	3	5	19	15	-11
	$A(^7\text{Be})$ MES, Bq/kg		139	141	474	137	117	108	196	223	156	159	91	256	168	81
	Taux D/E, g/cm <sup>2</sup>		-0.11	0.11	0.14	0.39	-0.08	0.08	0.12	-0.06	0.03	0.02	0.06	0.07	0.09	-0.13

Tableau 4. 7 : Calcul du flux de dépôt/érosion dans les sédiments en k13, k16, k36, entre avril 2005 et août 2006.

Le flux moyen annuel de dépôt/érosion vaut 0,2 et 0,5 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>, respectivement pour k13 et k16-k36 ; ce qui correspond à une hauteur de dépôt d'environ 1 à 3 cm de sédiment brut. Par période, les flux maximaux de dépôt et d'érosion sont équivalents, soit +0,4 (k16) à -0,5 g.cm<sup>-2</sup> (k36) ; ce qui correspond à une hauteur de dépôt/d'érosion d'environ 2 cm de sédiment brut. Le flux annuel d'accumulation sédimentaire obtenu à l'aide du  $^7\text{Be}$  reste du même ordre de grandeur que les flux de sédimentation déterminés à partir du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{XS}}$  (0,2 - 0,5 g.cm<sup>-2</sup>.an<sup>-1</sup>). La méthode du  $^7\text{Be}$  est ainsi « validée » par celle du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}$ . Dans la Scarpe, les processus gouvernant la distribution du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments pendant 1 an sont donc similaires aux processus sédimentaires se déroulant sur les 20-30 dernières années.

Les figures 4.8-10 représentent l'évolution du flux de dépôt/d'érosion en fonction du temps pour les trois sites k13, k16 et k36, entre avril 2005 et août 2006. Les données sont issues du tableau 4.7.

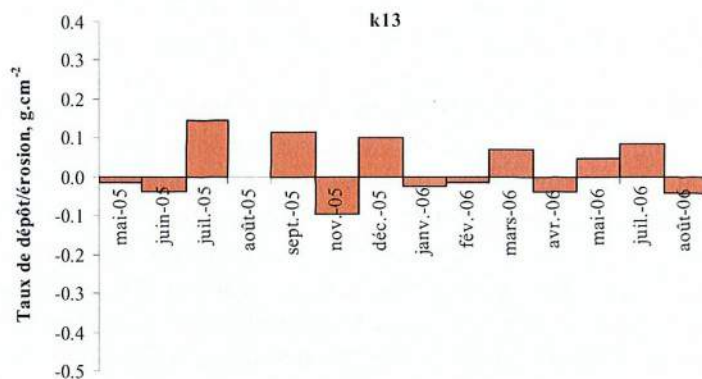


Figure 4. 8 : Evolution du flux de dépôt/érosion dans les sédiments prélevés en k13 entre avril 2005 et août 2006.

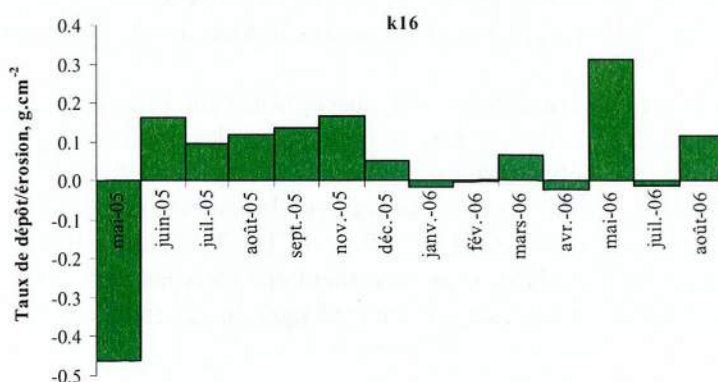


Figure 4. 9 : Evolution du flux de dépôt/érosion dans les sédiments prélevés en k16 entre avril 2005 et août 2006.

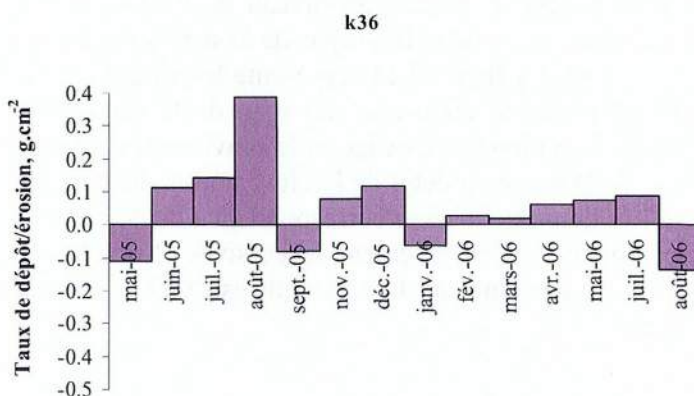


Figure 4. 10 : Evolution du flux de dépôt/érosion dans les sédiments prélevés en k36 entre avril 2005 et août 2006.

Le flux de sédimentation/érosion varie au cours du temps pour un site d'échantillonnage donné et d'un site à l'autre pour une période de temps donnée. Pour chaque site de prélèvement, l'évolution du flux de dépôt/érosion dans le temps montre une succession de périodes d'accumulation/érosion sédimentaire. Cette variation illustre le caractère aléatoire de la dynamique sédimentaire lorsqu'elle est étudiée sur une échelle de temps courte (*i.e.* mensuelle). La fréquence de dépôt pour chaque site sédimentaire varie dans l'ordre  $k36 \sim k16 > k13$ . La fréquence d'érosion pour chaque site sédimentaire varie dans l'ordre  $k13 > k36 \sim k16$ . Bien que les périodes de dépôt et d'érosion diffèrent d'un site à l'autre, les périodes de dépôt sont les plus fréquentes et elles se font simultanément sur les trois sites le plus souvent.

(campagnes n°4-8-11-13). Cependant, malgré la faible longueur du tronçon de canal étudié (3 300 m), chaque site sédimentaire se caractérise par sa propre dynamique sédimentaire. Le site k13 se situe dans une zone sédimentaire instable car la fréquence d'érosion est la plus élevée et le bilan d'accumulation le plus faible, tandis que le site k36 se situe dans une région sédimentaire favorable à l'accumulation. Ces résultats sont cohérents avec les observations tirées de l'étude du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les sédiments prélevés pour ces mêmes sites. En effet, nous avons montré dans le chapitre 3 que l'enregistrement sédimentaire du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}$  dans les sédiments en k13 était perturbé et qu'il ne permettait pas de conclure sur le flux de sédimentation à long terme, alors qu'en k36, la sédimentation s'est déroulée de manière beaucoup plus régulière et était favorable à la quantification d'une vitesse de sédimentation. Le site k16 est éventuellement soumis à l'influence de la station de relevage, à en juger par l'importance des remous observés dans le cours d'eau au moment du refoulement. Les rejets de la station de relevage seraient capables de générer des courants forts dans la Scarpe, et donc de perturber l'interface eau-sédiment et provoquer l'érosion des sédiments de surface. Cependant, les résultats du  $^7\text{Be}$  ne confirment pas cette supposition faite sur le terrain, car le bilan sédimentaire en k16 est équivalent à celui de k36 identifié comme zone d'accumulation.

Certains phénomènes naturels sont susceptibles de provoquer des perturbations à l'interface eau-sédiment. La dynamique sédimentaire des sédiments peut être reliée aux paramètres hydriques (*i.e.* débit, turbidité, courant) (Fitzgerald *et al.*, 2001 ; Giffin et Reide Corbett, 2003, Old *et al.*, 2003) ou aux paramètres climatiques (*i.e.* orages, vents) (Canuel *et al.*, 1990 ; Giffin et Reide Corbett, 2003 ; Zhou et Li, 2005) du milieu aquatique. Afin de comprendre l'évolution de la dynamique sédimentaire dans les sédiments superficiels de la Scarpe, nous allons étudier le fonctionnement hydrique du secteur d'étude.

#### 4.2.4.3 Hydrologie

Les données hydrologiques disponibles dans le secteur d'étude sont (i) la pluviométrie quotidienne, (ii) le débit quotidien mesuré au niveau de l'écluse Fort de Scarpe située à l'amont du secteur d'étude et (iii) le débit des rejets de la station de relevage Vallée de Scarpe située juste à l'amont de k16. La figure 4.11 représente les variations au cours du temps du débit de l'écluse, du débit mesuré au niveau du rejet de la station de relevage, et de la pluviométrie. Le débit de la station de relevage et la pluviométrie sont des données fournies par la Société des Eaux de Douai et le débit de l'écluse nous a été communiqué par les Voies Navigables de France. Les données de débit correspondent à la moyenne des débits quotidiens mesurés entre deux campagnes de prélèvement successives (4-6 semaines). Les données de pluviométrie correspondent au cumul de la pluie qui est tombée entre deux campagnes de prélèvement successives.

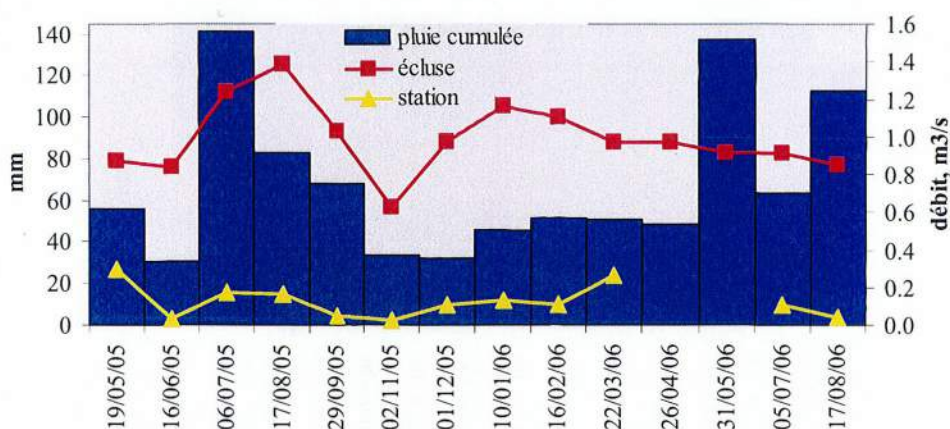


Figure 4. 11 : Débits de l'écluse et de la station de relevage, et pluviométrie, entre avril 2005 et août 2006 (première donnée en mai 2005).

Entre juin et juillet 2005, le débit du canal augmente avec la pluviométrie. Entre juillet et août 2006, alors que la pluviométrie diminue, le débit atteint sa valeur maximale ( $1,4 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ). On observe un décalage entre le pic de pluviométrie et le pic de débit. Les pluies tombées entre juin et juillet ont été suffisamment importantes pour maintenir une valeur de débit élevée dans le canal après juillet. Entre avril et juillet 2006, le débit du canal reste relativement constant, alors que la pluviométrie augmente d'un facteur 3 entre avril et mai. Le comportement du canal ne répond pas de la même manière aux variations climatiques. Cette différence est attribuée à la nature de l'épisode pluvieux et à la présence des écluses dans le canal. En juillet 2005, le pic de débit quotidien est parfaitement corrélé au pic de pluviométrie quotidienne (figure 4.12). Pendant la durée de l'événement pluvieux, le débit passe très rapidement de  $1$  à  $6,5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . Après l'événement pluvieux, le débit diminue et se stabilise à  $1,5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . La valeur du débit est stationnaire avant et après l'événement pluvieux. La réponse du canal face aux variations climatiques est donc très rapide. En mai 2005, la pluie quotidienne n'est pas si remarquable mais très fréquente. Le milieu aquatique se caractérise alors par une certaine inertie et une capacité à réguler l'apport d'eaux pluviales. Entre avril 2005 et août 2006, bien que l'évolution du débit présente des variations, le système aquatique semble capable de retourner à un état d'équilibre caractérisé par un débit faible ( $\leq 1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ). Cette capacité à réguler le débit du canal est liée à la présence d'ouvrages hydrauliques (écluses) et aux aménagements du cours d'eau. Entre août et novembre 2005, la diminution du débit est corrélée à la diminution des apports par la pluie. Cependant, entre novembre 2005 et janvier 2006, alors que la pluviométrie varie peu (30-40 mm), le débit double de valeur. L'eau de la Scarpe a probablement été détournée à l'amont pour alimenter un autre secteur du réseau hydrographique.

Le fonctionnement hydrique de la Scarpe dans le secteur d'étude semble donc davantage lié aux événements remarquables ponctuels (pluie très intense) plutôt qu'à des variations saisonnières de crue/étiage. De plus, le fonctionnement hydrique est soumis aux interventions humaines.



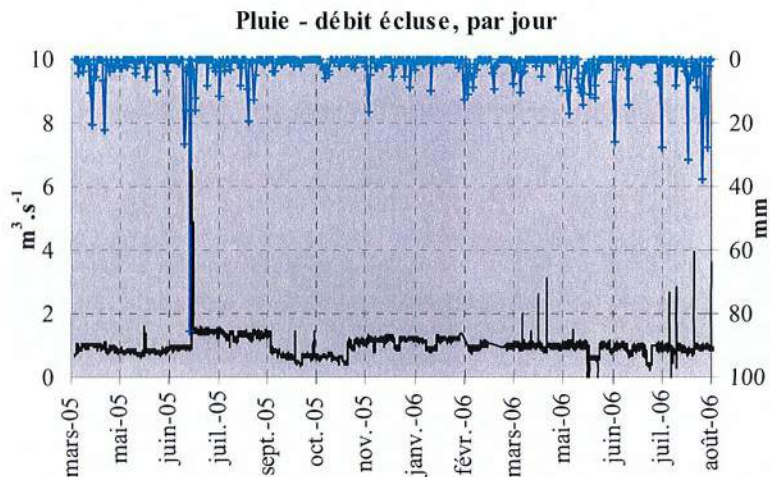


Figure 4. 12 : Variation de la pluviométrie et du débit du canal par jour entre avril 2005 et août 2006.

D’après la figure 4.11, entre juin et août 2005, l’augmentation du débit de la station de relevage est corrélée à l’augmentation de la pluviométrie. La station de relevage collectant les eaux d’origine pluviale, on peut supposer que son fonctionnement hydrique est associé à l’apport de pluie. La figure 4.13 représente le volume refoulé par la station vers la Scarpe et la pluviométrie au quotidien entre avril 2005 et août 2006.

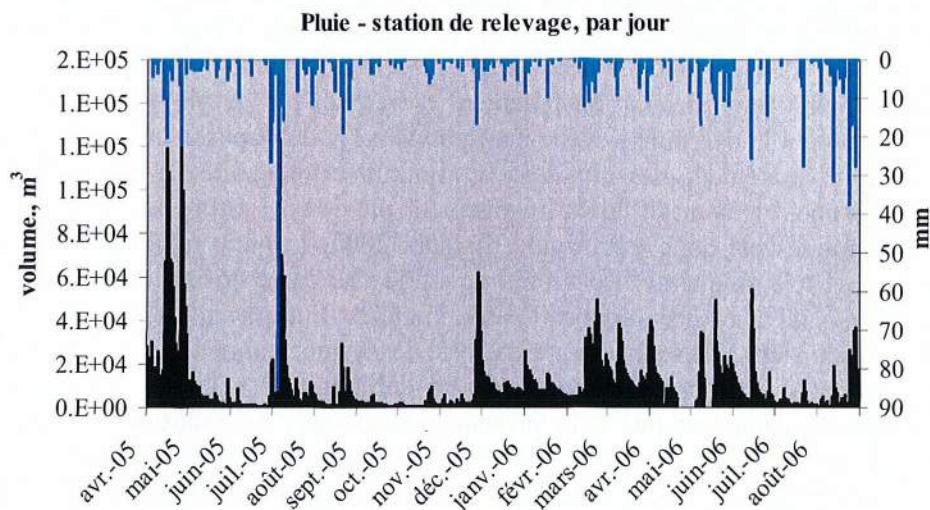


Figure 4. 13 : Volume déversé par la station de relevage et pluviométrie par jour entre avril 2005 et septembre 2006.

La station de relevage refoule l’eau vers la Scarpe de manière continue. La quantité d’eau refoulée est corrélée à la pluviométrie pour des épisodes pluvieux majeurs. Par exemple, en mai et juillet 2005, il y a trois pics de volume refoulé parfaitement corrélés à la pluviométrie. Cependant, la relation entre le volume refoulé (ou le débit quotidien) de la station et la pluviométrie n’a pas montré de relation directe. Cette absence de relation suggère que le fonctionnement de la station de relevage n’est pas soumis uniquement aux facteurs climatiques. Le réseau d’alimentation de la station de relevage est relativement complexe et comporte d’autres stations de relevage (cf. chapitre 2).

Pour conclure, le secteur d’étude est compris dans un bief situé dans une région urbanisée et caractérisée par un réseau hydrographique complexe où la régulation du débit par les écluses est importante et où la présence de rejets (station d’épuration, station de relevage) peut modifier localement les paramètres hydriques dans la Scarpe. Nous proposons de

discuter l'évolution des flux de dépôt/érosion en k13, k16 et k36 en fonction de l'évolution du débit de l'écluse (figure 4.14) et de celui de la station de relevage (cf. figures 4.11 et 4.13).

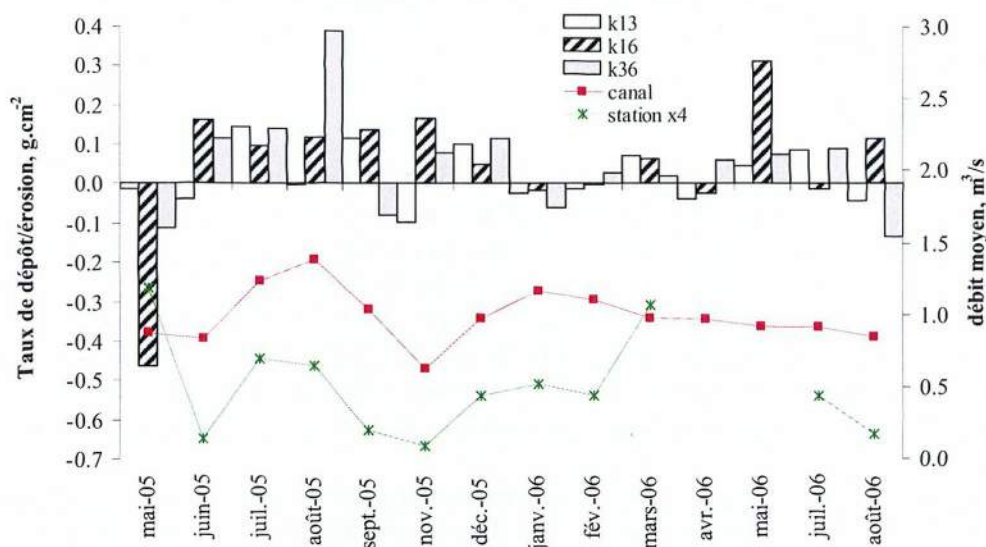


Figure 4. 14 : Dynamique sédimentaire à court-terme en k13, k16 et k36, et débit moyen du canal et de la station (x 4), entre mai 2005 et août 2006.

En k36, entre mai et août 2005, quand le débit de la Scarpe augmente rapidement, le flux de dépôt des sédiments augmente avec une amplitude de variation élevée. De janvier à août 2006, alors que la valeur du débit retourne lentement à la normale ( $\sim 1 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ), le flux de dépôt/érosion de la Scarpe présente des variations de plus faible amplitude. La variation de débit semble donc exercer une influence sur l'accumulation des sédiments en k36. Une augmentation rapide du débit est favorable à un dépôt important de sédiment. Quand la variation de débit est relativement faible, les sédiments ont tendance à s'accumuler avec des vitesses d'accumulation moindres. En k13, k16, il n'y a pas de corrélation franche entre l'évolution de la dynamique sédimentaire à la surface des sédiments et le débit de la rivière.

Le transport des sédiments dans les rivières est régi par des mécanismes généralement interdépendants et concernant des disciplines variées (*e.g.* mécanique des fluides, hydrodynamisme). Néanmoins, des relations entre l'hydrologie et la dynamique sédimentaire ont pu être mises en évidence ponctuellement dans la Scarpe. Les résultats sont d'ordre qualitatif.

L'événement pluvieux responsable de l'augmentation d'un facteur 6 du débit du canal s'est déroulé deux jours avant la campagne de prélèvement de juillet 2005. En juillet 2005, les flux de dépôt/érosion montrent que les particules sédimentaires se sont accumulées pour les trois sites. Ainsi, l'augmentation du débit aurait contribué à augmenter la quantité des matières en suspension apportées dans le secteur d'étude qui se sont ensuite déposées à la surface des sédiments. En août 2005, lors de la campagne suivante, le sédiment s'est accumulé en k16 et k36, tandis qu'il s'est érodé, ou ne s'est pas déposé, en k13. Entre juillet et août 2005, le débit quotidien du canal est relativement constant mais reste élevé avec  $4 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ . Le site k13 se situe dans une zone instable où l'érosion est facile, tandis que les sites k16 et k36 sont situés dans des zones d'accumulation sédimentaire favorisée par un débit moyen élevé. En k36, en septembre 2005, le sédiment s'est érodé après trois périodes d'accumulation sédimentaire. Il est probable que les sédiments déposés en quantité auparavant n'étaient pas suffisamment consolidés pour résister à un processus d'érosion. En mai 2005, les rejets de la station auraient pu perturber les sédiments de surface en k16 et causer leur érosion ; en effet, le débit moyen est élevé ( $0,6 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et le débit quotidien atteint des valeurs importantes (jusqu'à  $1,6 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  le 25/4/5). Cependant, en mars 2006, le débit moyen est équivalent ( $0,5 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ) et l'analyse du

$^7\text{Be}$  montre que les particules sédimentaires ont pu s'accumuler à la surface des sédiments en k13, k16 et k36. Durant cette période, le débit des rejets n'atteint pas des valeurs particulièrement élevées (jusqu'à  $0,6 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  le 21/2/6). Il est possible qu'il existe un seuil à partir duquel les rejets de la station de relevage provoquent l'érosion des sédiments.

## Conclusion

L'utilisation du  $^7\text{Be}$  a permis de caractériser *in situ* les processus sédimentaires de dépôt et d'érosion dans les sédiments de surface dans la Scarpe. L'utilisation du  $^7\text{Be}$  en tant que traceur des particules sédimentaires suppose que l'adsorption du  $^7\text{Be}$  soit rapide, totale et irréversible. La méthode d'utilisation du  $^7\text{Be}$  repose sur la variation de stock (ou inventaire) de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments de surface entre deux campagnes d'échantillonnage. La distribution du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments dépend des apports de  $^7\text{Be}$  par la pluie, de l'origine des particules sédimentaires qui vont se déposer et de la dynamique sédimentaire. On suppose que la vitesse de décantation est suffisamment rapide pour ne pas influencer la distribution du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments.

Les matières en suspension constituent une information intégrée sur l'ensemble des processus affectant la variabilité des activités du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments. Les matières en suspension sont capables d'enregistrer la variation du signal de  $^7\text{Be}$  due aux variations saisonnières (pluie) et à l'occurrence de processus de mélange dans la colonne d'eau entre des particules sédimentaires d'âge différent et issues de sources différentes.

Les apports du  $^7\text{Be}$  sont principalement assurés par la pluie. Afin de caractériser la dynamique sédimentaire à partir de la variation de stock, il est nécessaire de s'affranchir des autres facteurs de variation. Dans l'hypothèse où les matières en suspension collectées à l'aplomb des sédiments sont celles qui se déposent à la surface des sédiments ou qui proviennent de l'érosion des sédiments, la variation de stock de  $^7\text{Be}$  dans les sédiments sur une période mensuelle est normalisée par rapport à l'activité du  $^7\text{Be}$  dans les matières en suspension collectées au cours de la même période.

Dans le secteur d'étude, le flux de dépôt moyen annuel obtenu à partir du  $^7\text{Be}$  est du même ordre de grandeur que le flux de sédimentation obtenu à partir du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}$ . Les processus gouvernant la distribution du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments pendant 1 an dans cette étude sont donc similaires aux processus sédimentaires se déroulant sur les 20-30 dernières années.

Entre avril 2005 et août 2006, les sédiments de surface sont soumis à des épisodes de dépôt et d'érosion. L'évolution du flux de dépôt/érosion dans les sédiments de surface dépend de l'hydrologie locale ponctuellement. Cependant, l'étude de l'influence des paramètres hydriques sur les résultats de la dynamique sédimentaire peut s'avérer délicate car la dynamique des sédiments est caractérisée à l'échelle du mois tandis que les fluctuations de la pluviométrie et du débit peuvent être de grande amplitude sur une échelle de temps plus réduite.

Enfin, la méthode du  $^7\text{Be}$  a permis de quantifier les flux de dépôt/érosion sur une échelle de temps mensuelle mais rien n'exclut qu'au cours d'une période de dépôt, une succession d'épisodes de dépôt/érosion ne se déroulent sur une échelle de temps plus courte.

## 5. TRANSFERT DES POLLUANTS METALLIQUES A L'INTERFACE EAU-SEDIMENT

Dans les milieux aquatiques, le devenir et le transport des composés métalliques dépend des processus chimiques et physiques (e.g. Eggleton et Thomas, 2004). Les perturbations physiques à l'interface eau-sédiment, causées par des phénomènes naturels et/ou d'origine anthropique, peuvent provoquer la remise en suspension des sédiments contaminés et la remobilisation des métaux initialement associés aux sédiments vers l'eau (e.g. Petersen *et al.*, 1997 ; Van den Berg *et al.*, 2001 ; Zoumis *et al.*, 2001).

Dans les systèmes aquatiques, le transfert des polluants métalliques entre le sédiment et l'eau peut se faire par voie particulaire et par voie dissoute.

Dans le cas du dépôt de sédiment, les particules sédimentaires sont le vecteur de transport des polluants métalliques qui leur sont associés.

Dans le cas de la remise en suspension des sédiments contaminés, un flux érosif de contaminants sous forme particulaire est généré. La remise en suspension des sédiments provoque également la rupture du confinement des eaux interstitielles qui se traduit par une « dilution » des eaux porales enrichies en métaux dissous par rapport à l'eau sus-jacente.

A la surface des sédiments, la diagénèse précoce peut induire un flux diffusif des espèces chimiques réactives par diffusion moléculaire à travers l'interface eau-sédiment ; les sédiments contaminés sont alors susceptibles de constituer une source supplémentaire de contamination pour l'eau.

La remobilisation des métaux depuis le sédiment vers l'eau dépend aussi de la modification des paramètres biogéochimiques environnementaux lors d'une perturbation à l'interface eau-sédiment (dépôt et/ou érosion).

La figure 5.1 est une représentation schématique du transfert des métaux à l'interface eau-sédiment en relation avec la dynamique des sédiments.

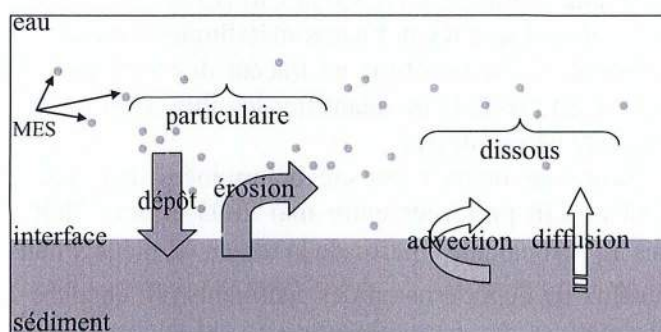


Figure 5.1 : Représentation schématique des flux particulaire (dépôt, érosion) et dissous (diffusion, advection) des polluants métalliques à l'interface eau-sédiment dans un cours d'eau.

L'étude de l'impact de la dynamique sédimentaire sur le transfert des métaux à l'interface eau-sédiment doit tenir compte de la dynamique sédimentaire impliquée dans le transport des particules et des mécanismes physico-chimiques impliqués dans les échanges chimiques des métaux à l'interface eau-sédiment.

La caractérisation de la dynamique sédimentaire (dépôt, érosion) sur une échelle de temps mensuelle a fait l'objet du chapitre 4 (utilisation du  $^7\text{Be}$ ). Dans ce chapitre, sont présentés les flux particulaires et dissous des polluants métalliques induits par la dynamique physique des sédiments (dépôt, érosion) et par l'évolution chimique des paramètres biogéochimiques (pH, Eh,  $\text{O}_2$ ).

Les flux particulaires de dépôt et d'érosion ont été déterminés dans les sédiments de surface (tranche 0-3 cm) prélevés en k13, k16 et k36 entre mai 2005 et août 2006 (figure 5.2). Les flux dissous (diffusion/advection) ont été déterminés dans les sédiments provenant de k36 entre décembre 2005 et août 2006. Enfin, le transfert par remobilisation des métaux à la suite de perturbation biogéochimiques a été mesuré dans les sédiments de surface (tranche 0-3 cm) prélevés en k36 entre mars et juillet 2006.

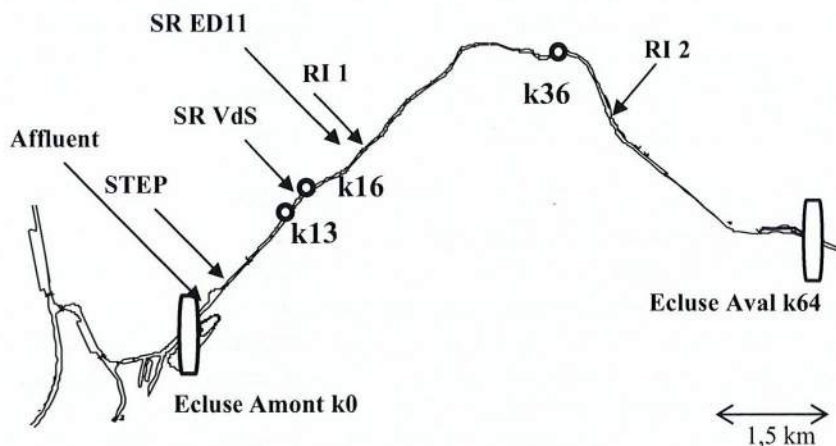


Figure 5. 2 : Représentation du secteur d'étude. Localisation de l'affluent « La Cunette », des rejets de la Station d'Épuration (=STEP), des Stations de Relevage (=SR) et des Rejets Industriels (=RI). Localisation du site de prélèvement k36.

## 5.1. Transfert particulaire-particulaire

La méthode du  $^7\text{Be}$  a permis de mettre en évidence une succession de périodes de dépôt/érosion à la surface des sédiments. Or, les sédiments présents dans le canal de la Scarpe sont contaminés en métaux lourds (Zn, Pb, Cd et Cu) (Chapitre 3). Dans la mesure où le  $^7\text{Be}$  est un marqueur des particules et que les polluants métalliques sont largement associés à la phase particulaire des sédiments, le  $^7\text{Be}$  constitue un traceur des particules contaminées. A partir des flux de dépôt/érosion, il est possible de quantifier les flux de polluants associés aux particules sédimentaires à l'interface eau-sédiment.

Les concentrations en métaux ont été déterminées dans les Matières En Suspension (= MES) en k13, k16 et k36 prélevées entre mai 2005 et août 2006. Le flux particulaire de polluants métalliques  $F_p$  est calculé à partir de la teneur en métaux dans les MES  $[\text{métaux}]_{MES}^o$  (cf. chapitre 3) et du flux de dépôt/érosion des sédiments (cf. chapitre 4). Ici, on considère que les MES sont représentatives des particules qui se sont déposées ou érodées à la surface des sédiments.

$$F_p = [\text{métaux}]_{MES}^o \times \text{taux dépôt / érosion} .$$

Le tableau 5.1 présente les flux totaux de dépôt et d'érosion des polluants métalliques à l'interface eau-sédiment dans les sédiments de la Scarpe, en fonction du site d'échantillonnage, au cours des seize mois de suivi (d'avril 2005 à août 2006). Les flux de polluants sont sous-estimés puisque toutes les matières en suspension n'ont pas pu être prélevées au cours du suivi. Ces flux correspondent donc à des valeurs minimales.

Flux total, g/m <sup>2</sup>	Site	Zn	Cd	Pb	Cu
Dépôt	k13	5	0.04	1	0.7
	k16	26	1	4	2
	k36	29	2	4	2
Erosion	k13	-3	-0.03	-0.8	-0.4
	k16	-16	-2	-2	-1
	k36	-7	-0.4	-1	-0.5

Tableau 5. 1 : Flux total de dépôt et flux total d'érosion pour le Zn, le Pb, le Cd et le Cu, à la surface des sédiments en k13, k16 et k36, entre mai 2005 et août 2006.

Le flux de dépôt et d'érosion des polluants métalliques est une fonction de la dynamique sédimentaire et du degré de contamination des sédiments. Quel que soit le polluant considéré, k16 est le site qui présente le flux d'érosion le plus élevé, par rapport à k13 et k36, car le flux d'érosion et la quantité de métaux sont tous les deux élevés. Pour l'ensemble des sites échantillonnés, le Zn est le contaminant dont les flux de dépôt et d'érosion sont les plus importants car sa teneur dans les sédiments est la plus élevée.

Le tableau 5.2 présente le rapport entre les flux totaux de dépôt et d'érosion à partir des valeurs présentées dans le tableau 5.1.

	Site	Zn	Cd	Pb	Cu
Rapport Flux	k13	2	1	2	2
Dépôt /	k16	2	1	2	2
Erosion	k36	4	5	4	4

Tableau 5. 2 : Rapport entre le flux total de dépôt et le flux total d'érosion.

Entre mai 2005 et avril 2006, le rapport entre le flux de dépôt et le flux d'érosion par site sédimentaire et par polluant est généralement supérieur à 1 (valeurs comprises entre 2 et 5), excepté dans le cas du Cd où le rapport est proche de 1 en k13 et k16. Lorsque le rapport est supérieur à 1, l'accumulation des contaminants dans les sédiments est le processus dominant (par rapport à l'érosion), et les sédiments se comportent donc comme des pièges vis-à-vis de la contamination particulaire. Les sédiments constituent ainsi des pièges efficaces pour le Zn, le Pb et le Cu pour l'ensemble des sites sédimentaires étudiés. Et, l'efficacité du piège augmente d'autant plus que les sédiments se trouvent à l'aval des sources de contamination (cas du cadmium apporté par la station de relevage).

## 5.2. Transfert particulaire-dissous. Remobilisation

La spéciation et la réactivité chimique des métaux dans les environnements aquatiques exercent un contrôle important sur leur disponibilité et leur toxicité. Le comportement des métaux potentiellement toxiques dans les sédiments à proximité de l'interface eau-sédiment est important à considérer car la dynamique des processus chimiques est responsable de la transformation et de la spéciation des métaux susceptibles d'être remobilisés ou piégés.

La sédimentation et l'érosion sont des processus capables de modifier les paramètres physico-chimiques à l'interface eau-sédiment et de provoquer la remobilisation des métaux initialement associés aux sédiments : les métaux passent alors de la forme particulaire à la forme dissoute où ils deviennent potentiellement biodisponibles. La remobilisation des métaux à l'issue des variations des paramètres environnementaux constitue un facteur supplémentaire de contamination pour l'eau.

La fraction « réactive » des métaux contenus dans les sédiments correspond à la fraction des particules susceptibles de relarguer les métaux initialement sous forme particulaire après des changements biogéochimiques, lors d'une remise en suspension par exemple (Di Toro *et al.*, 1990 ; Leventhal et Taylor, 1990 ; Cooper et Morse, 1998 ; Simpson *et al.*, 2000).

La fraction « réactive » des métaux contenus dans les sédiments a été obtenue à l'issue d'une extraction sélective sur du sédiment brut, à température ambiante, avec de l'HCl(aq) 1N (Leventhal et Taylor, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1990 ; Cooper et Morse, 1998 ; Billon, 2001).

Afin de quantifier la part « réactive » des métaux, les attaques chimiques ont été réalisées sur les sédiments de surface prélevés en k36. Le protocole de l'attaque acide ménagée est décrit dans le chapitre 2. Les sédiments de surface présents en k36 ont été sélectionnés car ils présentent une contamination importante et la distribution granulométrique est relativement homogène (cf. annexe 2.2.2). Les attaques chimiques ont été réalisées sur la tranche 0-3 cm des carottes prélevées en mars, avril, mai et juillet 2006, afin d'évaluer la variabilité saisonnière (pas de prélèvement en juin). La figure 5.3 présente la fraction réactive du Zn, Pb, Cd et Cu dans les sédiments de surface prélevés en k36 entre mars et juillet 2006. Les incertitudes tiennent compte de la variabilité des concentrations entre les trois réplicats de carotte (a b c).

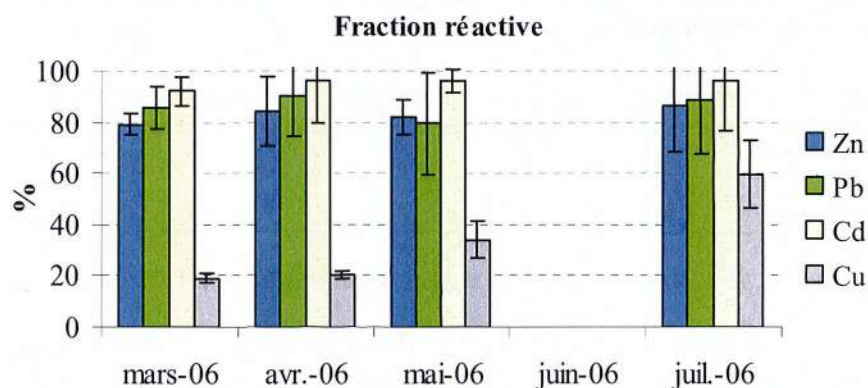


Figure 5.3 : Fraction réactive des métaux contenus dans les sédiments de surface (0-3 cm) prélevés en k36 entre mars et juillet 2006.

Au cours de la période d'échantillonnage, le Zn, le Pb et le Cd sont majoritairement présents dans la fraction « réactive ». La fraction « réactive » ne varie pas de manière significative et vaut en moyenne 83 %, 86 % et 95 % pour le Zn, le Pb et le Cd. La fraction « réactive » du Cu augmente avec le temps et passe de 20 à 60 % entre mars et juillet 2006. Le Cu n'est plus représenté majoritairement par la fraction réactive en juillet. Cette variation suggère un comportement non conservatif du Cu. D'après le chapitre 3, le Cu présente une affinité plus grande pour la matière organique, par rapport aux autres polluants métalliques. Une étude approfondie sur la spéciation du Cu dans les sédiments est nécessaire pour comprendre cette évolution.

Bien que les fractions « réactive » et « résiduelle » restent définies par le protocole chimique appliqué, il est néanmoins possible de comparer la capacité pour un contaminant à être remobilisé :  $Cu < Zn \approx Pb < Cd$ .

La fraction « réactive » contient les métaux associés aux monosulfures de fer, à certains hydroxydes de fer et manganèse et aux carbonates (Huerta-Diaz et Morse, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1992), et éventuellement liés à la matière organique dans le cas de sédiments riches en matière organique (Huerta-Diaz *et al.*, 1993). Dans la littérature, il est établi que les sulfures jouent un rôle important dans la formation des phases porteuses des métaux en milieu réducteur (*e.g.* Kerstern et Förstner, 1986 ; Huerta-Diaz et Morse, 1990 ; Huerta-Diaz et Morse, 1992 ;

Allen, 1994). Pour les contaminants métalliques tels que le Pb, le Zn, le Cd et le Cu, des travaux antérieurs ont montré que leur biodisponibilité était liée à la quantité de sulfures peu stables (Acide Volatils Soufrés) présents dans les sédiments (Di Toro *et al.*, 1990 ; Allen *et al.*, 1994).

D'après le chapitre 3, le Pb, le Zn, le Cd et le Cu sont associés au soufre total. Et, à l'issue d'une attaque chimique ménagée ( $\text{HCl}_{\text{aq}}$  1 M), la majeure partie du Zn, du Pb et du Cd est représentée par la fraction réactive. Ces deux observations suggèrent qu'une fraction importante des polluants métalliques est associée aux sulfures. A la suite de perturbations à la surface des sédiments, la variation des paramètres biogéochimiques des sédiments provoquerait alors une déstabilisation des sulfures insolubles résultant en une remobilisation des contaminants métalliques associés.

### 5.3. Transfert dissous-dissous : Par advection

L'étude du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments superficiels de la Scarpe a mis en évidence une succession de périodes de sédimentation et d'érosion.

L'érosion des sédiments provoque la rupture du confinement des eaux interstitielles et induit une « dilution » des métaux, contenus initialement dans les eaux porales, dans l'eau sus-jacente. Le déplacement des métaux dissous depuis les eaux porales vers l'eau sus-jacente se fait par advection à la suite d'un épisode d'érosion. Il en résulte un flux advectif des métaux dissous (Krein et Symader, 2000). A noter que, malgré une terminologie similaire, ce flux est différent du flux advectif des espèces chimiques qui serait induit par l'expulsion de l'eau lors de la compaction des sédiments (Berner, 1980).

Les flux advectifs  $F_A$  des contaminants métalliques (Zn, Pb, Cd et Cu) sont calculés à partir du produit entre le « flux d'érosion des eaux porales », c'est-à-dire de la quantité d'eau porale repassant dans la colonne d'eau et rapportée à une unité de surface, et les concentrations en métaux contenus dans les eaux porales :

$$F_A = [\text{métaux}]_{\text{eaux porales}}^{\circ} \times \text{taux érosion (eaux porales)}.$$

Dans un premier temps, il est nécessaire de déterminer la quantité d'eau porale qui repasse dans l'eau après érosion des sédiments. Pour ce faire, on calcule la hauteur de sédiment brut remis en suspension dans l'eau, puis la quantité d'eau porale repassant dans l'eau et ramenée à une unité de surface.

La hauteur de sédiment brut affectée par les processus de dépôt et d'érosion pour une période mensuelle est déterminée à partir du flux de dépôt/érosion des sédiments secs (déterminés auparavant à partir du  $^7\text{Be}$  dans le chapitre 4) :

$$\text{hauteur (séd.brut)} = \frac{\text{taux dépôt / érosion (séd.sec)}}{(1 - \phi) \times \rho},$$

où  $\phi$  désigne la porosité ( $0,92 \pm 0,01$ ) et  $\rho$  la densité sèche ( $2,3 \text{ g.cm}^{-3}$ ).

La figure 5.4 illustre la variation de la hauteur de sédiment brut affectée par les processus de dépôt/érosion dans la Scarpe, en k36, pour la période décembre 2005-août 2006 (pas de prélèvement en juin).



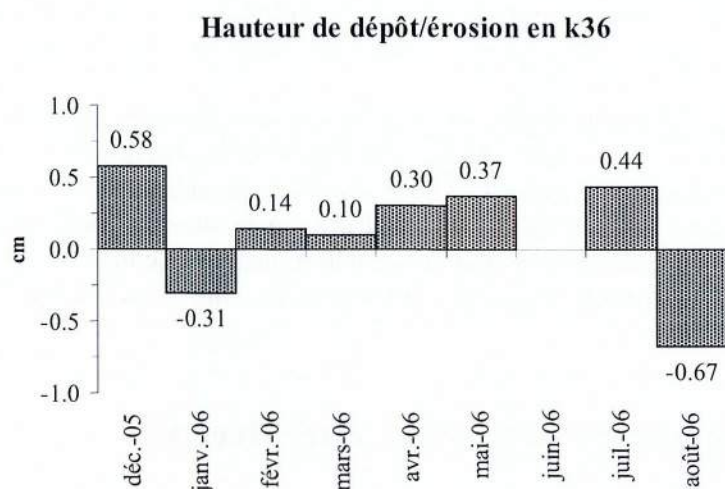


Figure 5.4 : Evolution de la hauteur des sédiments affectés par les processus de dépôt/érosion en k36 entre décembre 2005 et août 2006.

La dynamique sédimentaire affecte les sédiments superficiels sur une hauteur inférieure à 1 cm. L'érosion des sédiments provoque le transfert des eaux porales vers la colonne d'eau. Entre décembre 05 et août 06, deux périodes d'érosion ont eu lieu et ont provoqué la dilution des eaux porales comprises dans une épaisseur de sédiment de ~ 3 mm en janvier et ~ 7 mm en août. Pour déterminer la quantité d'eau porale qui repasse dans l'eau, il faut tenir compte de la teneur en eau des sédiments bruts. La quantité d'eau porale repassant dans l'eau et rapportée à une unité de surface (« flux d'érosion des eaux porales ») est alors obtenue à partir du flux d'érosion des sédiments bruts et de la teneur en eau  $W$  :

$$\text{taux érosion (eaux porales)} = \frac{\text{taux érosion (séd.brut)}}{1 - W}, \text{ avec } W = \frac{\text{masse (séd.brut)}}{\text{masse (eau)}}.$$

Dans un deuxième temps, il est nécessaire de déterminer la quantité de métaux contenus dans les eaux porales qui repassent dans l'eau après érosion des sédiments. Au cours de ces mêmes périodes, les concentrations moyennes des métaux contenus dans les eaux porales des sédiments ont été quantifiées et sont présentées dans le tableau 5.3. Les métaux contenus dans les eaux porales ont été échantillonnés avec des DET et analysés en ICP MS. Enfin, les valeurs du flux advectif pour le Zn, le Pb, le Cd et le Cu sont présentées dans le tableau 5.3.

Le flux est négatif car le flux d'érosion est négatif. Néanmoins il s'agit bien d'un flux d'éléments depuis le sédiment vers l'eau. Le flux advectif de Zn est le plus élevé en comparaison avec le Pb, le Cd et le Cu, car les teneurs du Zn dans les eaux interstitielles sont les plus fortes. Entre janvier et août 2006, le flux advectif ne varie pas pour le Cu, augmente d'un facteur 2 pour le Zn et d'un facteur 6 pour le Cd et le Pb. Cette augmentation est due à celle du flux d'érosion des sédiments. Pour le Cu, les sédiments prélevés en janvier sont plus contaminés qu'en août.

Flux advectif					
	Janvier 06		Août 06		
taux érosion (séd. sec)	-0.061		-0.135		$\text{g.cm}^{-2}.\Delta t$
W	83		78		%
$\Delta t$	40		43		j
taux érosion (séd. brut)	-0.009		-0.014		$\text{g.cm}^{-2}.\text{j}^{-1}$
hauteur (séd. brut)	-0.3		-0.6		cm
[Pb] <sup>o</sup> eaux porales	25	± 1	94	± 3	
[Cd] <sup>o</sup> eaux porales	2	± 0.3	8	± 2	
[Zn] <sup>o</sup> eaux porales	284	± 14	382	± 100	$\mu\text{g.L}^{-1}$
[Cu] <sup>o</sup> eaux porales	17	± 6	12	± 8	
$F_A$ (Pb)	-1.8	± -0.1	-10.4	± -0.3	
$F_A$ (Cd)	-0.15	± -0.03	-0.9	± -0.2	
$F_A$ (Zn)	-21	± -1	-42	± -11	$\mu\text{g.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$
$F_A$ (Cu)	-1.3	± -0.4	-1.4	± -0.9	

Tableau 5.3 : Détermination du flux advectif du Pb, Cd, Zn et Cu lors des épisodes d'érosion en janvier et août 2006 en k36.  $\Delta t$  désigne la période pendant laquelle les sédiments se sont érodés, soit entre deux campagnes de prélèvement successives.

## 5.4. Transfert dissous-dissous : Par diffusion. Mécanismes diagénétiques

L'étude de la remobilisation des éléments dans les milieux aquatiques et le calcul des flux de polluants entre l'eau et le sédiment passe par la mesure précise des gradients de concentrations dans les eaux interstitielles ainsi que d'autres paramètres tels que l'oxygène dissous, le potentiel redox, etc... (e.g. Docekalova *et al.*, 2002 ; Tankere-Muller *et al.*, 2007 ; Miao *et al.*, 2006).

Dans la Scarpe, l'étude du transfert des polluants à l'interface eau-sédiment par diffusion a été menée en deux étapes. Le transfert a été étudié sur le site k36 car il s'agit d'un site où les sédiments sont fins et riches métaux. Dans un premier temps, une carotte de sédiment a été prélevée afin d'effectuer une caractérisation globale des eaux interstitielles. Dans un deuxième temps, les échanges à l'interface eau-sédiment sont discutés en fonction du temps. Pour ce faire, les sédiments ont été prélevés régulièrement dans le cadre du suivi de terrain, entre décembre 2005 et août 2006.

Les concentrations en métaux dissous ont été mesurées à l'aide d'une sonde DET (analyses ICP MS). Le pH, l'Eh, les concentrations en O<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O dissous ont été mesurés avec des microélectrodes.

Enfin, les mécanismes diagénétiques affectant la distribution des métaux sont présentés.

### 5.4.1 Caractérisation des eaux interstitielles. Mécanismes diagénétiques.

Les processus diagénétiques se déroulant dans les sédiments de la Scarpe sont discutés à partir des profils verticaux des concentrations en oxygène et nitrates dissous, du potentiel redox (Eh) et du potentiel hydrogène (pH) et des concentrations en métaux (Zn, Pb, Cd, Fe et Mn) mesurés dans les eaux interstitielles. Pour ce faire, une carotte de sédiment a été spécialement prélevée en août 2006 en k36.

### 5.4.1.1 Eh, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, pH

Le potentiel hydrogène (pH), le potentiel d'oxydoréduction (Eh), la concentration en oxygène dissous (O<sub>2</sub>) et la concentration en protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O) ont été mesurés dans les eaux interstitielles des sédiments de la Scarpe prélevés en k36. Les mesures sont faites avec des microélectrodes. Les profils verticaux obtenus sur une hauteur de 10 mm sont présentés sur les figures 5.5-8.

- **Eh** : Le profil vertical du potentiel redox Eh a été déterminé dans les carottes de sédiments prélevées en mars et avril 2006 (figure 5.5). Le potentiel redox Eh diminue entre l'eau sus-jacente et l'eau interstitielle avant de devenir constant en profondeur. L'Eh diminue d'un facteur 2 entre la surface et la profondeur des sédiments. Au-delà de 3 mm de profondeur pour mars 2006 et de 1,3 mm pour avril 2006, le sédiment est en milieu anoxique.

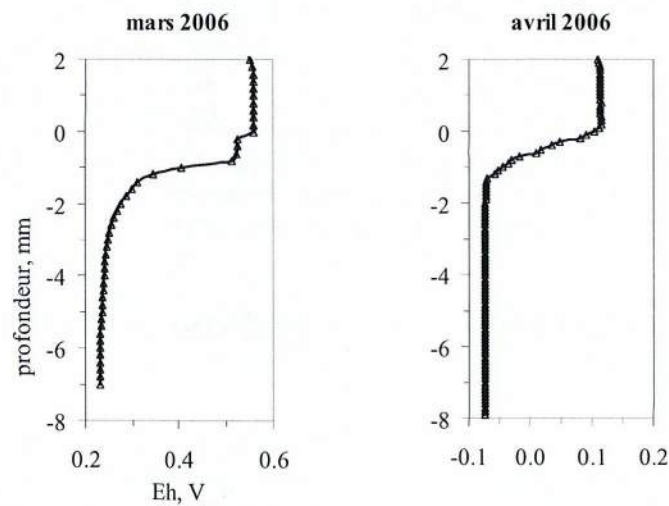


Figure 5. 5 : Evolution du potentiel redox Eh avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36, en mars et avril 2006.

Après enfouissement dans les sédiments, la matière organique subit une dégradation progressive pilotée par des processus d'oxydoréduction et catalysée par l'activité bactérienne. Il en résulte une oxydation de la matière organique. Chaque étape fait intervenir un donneur d'électron (le carbone organique) qui sera oxydé et un accepteur d'électron (l'oxydant) qui sera réduit (Berner, 1980).

Dans un système aquatique et en particulier dans un milieu confiné (sédiments), une succession d'agents oxydants (accepteurs d'électrons) peut être décrite lors de la dégradation bactérienne de la matière organique. La matière organique est en premier lieu oxydée par l'oxygène.

L'oxygène dissous dans l'eau interstitielle est activement consommé par les processus de dégradation de la matière organique. Sa réduction constitue la première étape de la dégradation de la matière organique qui peut être illustrée par la réaction simple (oxydation de la matière organique CH<sub>2</sub>O) :



-**O<sub>2</sub>** : Les profils verticaux d'oxygène obtenus dans les carottes prélevées en mars, avril, mai et juillet 2006 montrent une diminution de la concentration en oxygène au passage de l'interface eau-sédiment (figure 5.6). Au-delà de 2 mm, le sédiment est en milieu anoxique, alors que l'eau de surface est saturée en oxygène.

Le gradient de concentration d'oxygène dissous à l'interface eau-sédiment se manifeste par la diffusion de l'oxygène depuis l'eau vers le sédiment.

Les profils obtenus en mars et avril 2006 mettent en évidence une couche limite de diffusion de l'oxygène située juste au-dessus de l'interface (0-1 mm) : elle se caractérise par une rupture de pente au-dessus de l'interface eau-sédiment. Cette couche limite la pénétration de l'oxygène dans les sédiments.

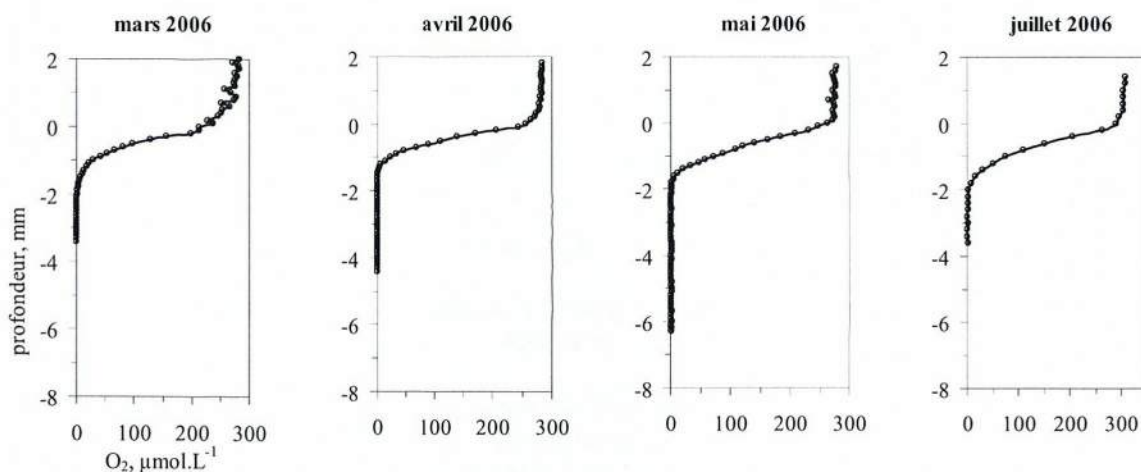


Figure 5. 6 : Evolution de la concentration en oxygène dissous avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 en mars, avril, mai et juillet 2006.

Dans les sédiments fins, l'oxygène diffuse mal à partir de l'eau sus-jacente, de sorte que l'oxygène disparaît totalement dès les premiers millimètres sous l'interface eau-sédiment. La profondeur de pénétration de l'oxygène dépend de la quantité de matière organique présente. Dans les sédiments de rivière, riches en matière organique, l'oxygène est rapidement consommé pour participer à la dégradation de la matière organique. La réduction de l'oxygène dans les sédiments est principalement attribuée à la dégradation du carbone organique par l'activité bactérienne mais aussi à l'oxydation des espèces inorganiques telles que  $\text{H}_2\text{S}$  et  $\text{Fe}^{2+}$  (Stumm et Morgan, 1981 ; Santschi *et al.*, 1990). En milieu confiné (sédiments), la quantité d'oxygène est rapidement consommée avant que la totalité du carbone organique n'ait été oxydée. La réaction de dégradation se poursuit alors avec la consommation d'autres accepteurs d'électrons comme les nitrates pour lesquels l'azote est apporté au sédiment par la matière organique principalement.

**- $\text{N}_2\text{O}$**  : Le profil vertical des concentrations en oxyde d'azote dissous montre une diminution au passage de l'interface eau-sédiment (figure 5.7). Tout le protoxyde d'azote a disparu au-delà de 2mm de profondeur dans le sédiment, alors que l'eau sus-jacente était saturée.

Le gradient de concentration établi à l'interface eau-sédiment est responsable de la diffusion des oxydes d'azote depuis l'eau vers le sédiment : les oxydes d'azote sont consommés par le sédiment au cours de la dégradation de la matière organique.

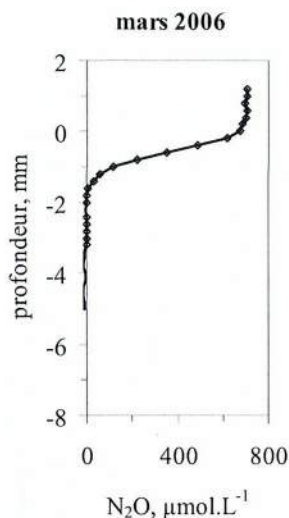
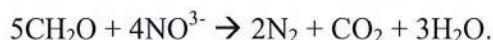


Figure 5. 7 : Evolution de la concentration en  $N_2O$  avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 en mars 2006.

L'azote d'origine organique conduit par hydrolyse à la production d'ion ammonium ( $NH_4^+$ ) qui peut à son tour être oxydé par les bactéries en nitrite ( $NO_2^-$ ) puis en nitrate ( $NO_3^-$ ). Si le milieu est légèrement réducteur, les nitrates sont réduits en azote gazeux par les bactéries dénitrifiantes. La réduction des nitrates s'accompagne d'une oxydation du carbone organique selon la réaction suivante :



- **pH** : Au passage de l'interface eau-sédiment, le pH diminue : les eaux interstitielles présentent un pH inférieur à celui de l'eau sus-jacente (figure 5.8). La diminution du pH à l'interface eau-sédiment peut atteindre 1,5 (mars 2006).

L'acidification des eaux interstitielles est due à la dégradation de la matière organique à la surface des sédiments. La production d'acide carbonique dissous contribue à l'acidification du milieu lors de l'oxydation de la matière organique.

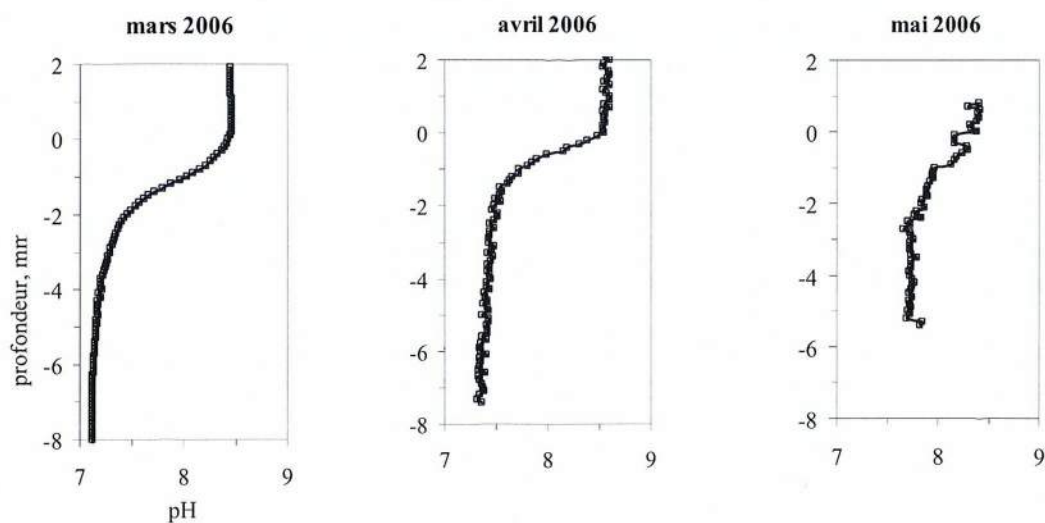


Figure 5. 8 : Evolution du pH avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 en mars, avril et mai 2006.

Les sédiments de la Scarpe prélevés en k36 présentent une zone de réduction de 1,3-4 mm d'épaisseur dans laquelle la réduction du potentiel redox Eh est liée à la consommation des espèces oxydantes O<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O dans les sédiments au cours de la dégradation de la matière organique.

### Calcul du flux diffusif d'oxygène à l'interface eau-sédiment

Le gradient de concentration en oxygène dissous à l'interface eau-sédiment induit une diffusion de l'oxygène depuis l'eau vers le sédiment. Le flux diffusif d'oxygène à l'interface eau-sédiment a été déterminé à partir de la Première Loi de Fick modifiée et appliquée aux sédiments (Berner, 1980) :  $F = -\phi \times D_s \times \frac{\partial C}{\partial z}$ , où  $F$  désigne le flux diffusif (mol.m<sup>-2</sup>.j<sup>-1</sup>),  $\phi$  la

porosité du sédiment,  $D_s$  le coefficient de diffusion du sédiment (cm<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>), et  $\frac{\partial C}{\partial z}$  le gradient de concentration pour une épaisseur  $z$  donnée (moles.cm<sup>-4</sup>). D'après Boudreau (1996),

$D_s = \frac{D_0}{1 - \ln(\phi^2)}$ , où  $D_0$  désigne le coefficient de diffusion pour des solutions infinies (Li et

Gregory, 1974) et  $\Phi$  la porosité (sans unité). Le coefficient de diffusion  $D_0$  est corrigé des effets de température en appliquant l'équation de Stock-Einstein  $\frac{D_1 \eta_1}{T_1} = \frac{D_2 \eta_2}{T_2}$  avec  $D_1$  le

coefficient de diffusion à la température de référence  $T_1$  (K) et la viscosité de l'eau  $\eta_2$ . La porosité  $\phi$  est déterminée à partir de la teneur en eau  $W$  (sans unité) et de la densité globale du

sédiment  $\rho$  (sans unité) :  $\phi = \frac{W}{W + \frac{1-W}{\rho}}$ . Dans les sédiments prélevés en k36 (tranche 0-

3 cm),  $\phi = 0,92 \pm 0,01$ .

La figure 5.9 illustre la variation de la profondeur en fonction de la concentration en oxygène dissous au voisinage de l'interface eau-sédiment dans les sédiments de la Scarpe prélevés en k36 entre mars et juillet 2006. Le gradient (ou pente) est déterminé par régression linéaire.

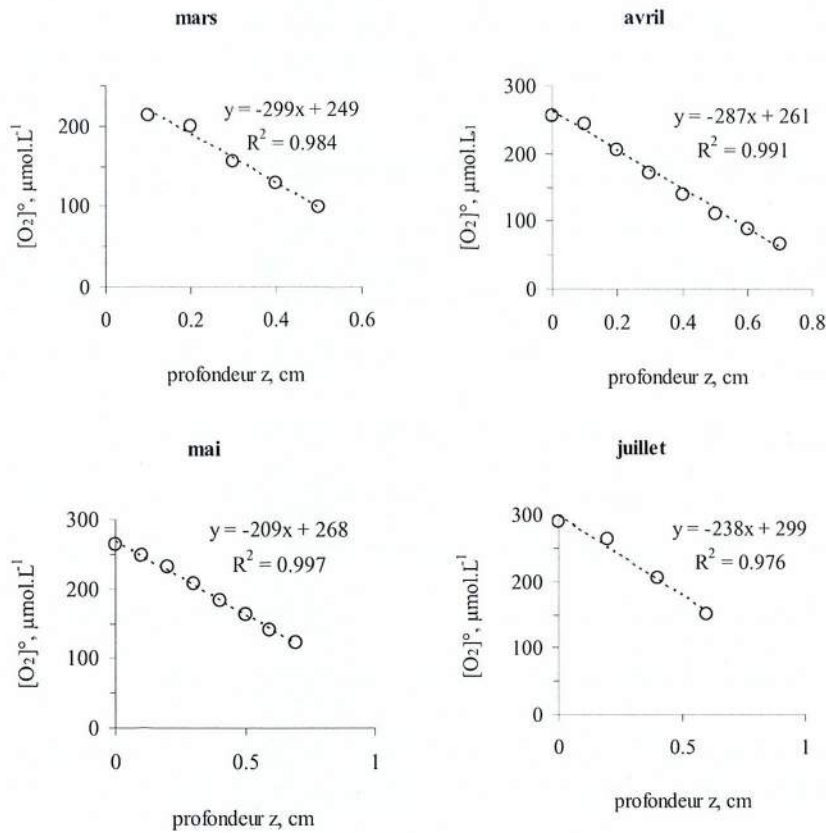


Figure 5.9 : Concentration de l'oxygène en fonction de la profondeur à proximité de l'interface eau-sédiment.

La figure 5.10 présente la variation du flux d'oxygène à l'interface eau-sédiment entre mars et juillet 2006 (pas de prélèvement en juin).

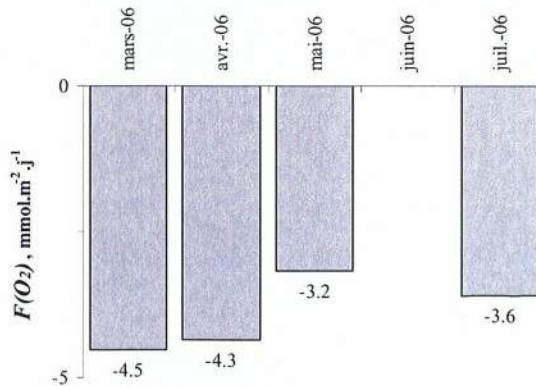


Figure 5.10 : Evolution du flux d'oxygène à l'interface eau-sédiment en k36 entre mars et juillet 2006.

Le flux d'oxygène est négatif et correspond à un flux descendant entre l'eau et le sédiment : l'oxygène est consommé au cours de la dégradation de la matière organique dans les sédiments. Le flux d'oxygène dissous varie entre -3,2 et -4,5  $\text{mmol.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ . A titre d'exemple, le flux d'oxygène mesuré à l'interface eau-sédiment à l'aide de microélectrodes varie entre  $-9 \pm 2$  et  $-88 \pm 41$   $\text{mmol.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  dans les sédiments de la lagune de Thau (France) (Dedieu *et al.*, 2007) et

vaut  $-7 \pm 5 \text{ mmol.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  dans les sédiments contaminés d'origine portuaire (Tankere-Muller *et al.*, 2007).

La différence entre les flux de consommation de l'oxygène dans les sédiments résulte de la variation (Santschi *et al.*, 1990) :

- du flux d'oxydation du carbone organique,
- des concentrations en oxygène dans l'eau sus-jacente,
- du régime hydrologique à la surface des sédiments.

### 5.4.1.2 Concentrations des métaux dans les eaux interstitielles

Les profils verticaux des concentrations en Zn, Pb, Cd, Fe et Mn dans les eaux interstitielles des sédiments en k36 sont présentés sur la figure 5.11. L'évolution des concentrations en Cu n'a pas pu être déterminée pour des raisons analytiques.

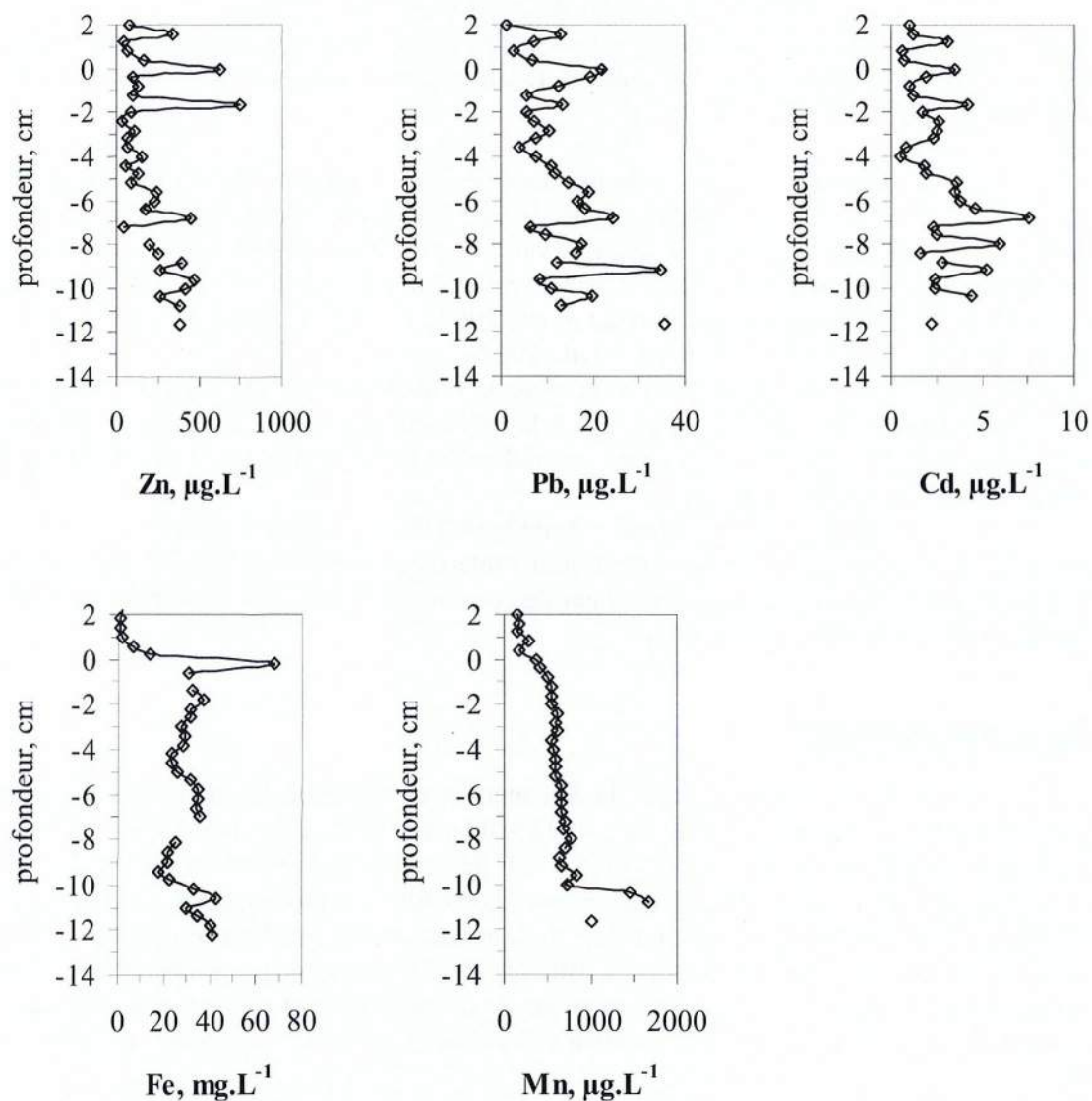


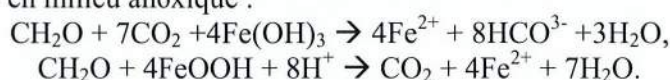
Figure 5. 11 : Profils verticaux des concentrations du Fe, Mn, Zn, Pb et Cd dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en août 2006.



### Réduction du Fe et du Mn

D'après le profil vertical du Fe dans les eaux interstitielles, les concentrations varient entre 17,6 et 67,6 mg.L<sup>-1</sup>. A l'aide des DET, Gao *et al.* (2007) ont observé une gamme de 0,170-65 mg.L<sup>-1</sup> dans les eaux interstitielles des sédiments de la Lys, Leermakers *et al.* (2005) ont obtenu des gammes de 13-400 mg.L<sup>-1</sup> et 0,5-350 mg.L<sup>-1</sup> dans les sédiments de la Rupel (Belgique), et Gao *et al.* (2006) ont observé un maximum à 86 mg.L<sup>-1</sup> dans les sédiments de la Lys et de l'Escaut (Flandres).

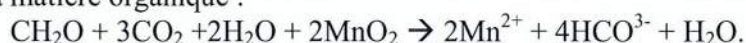
La concentration en Fe dissous augmente avec la profondeur, passe par un maximum à proximité de l'interface eau-sédiment puis diminue de moitié avant de rester relativement constante. L'augmentation des concentrations en Fe à l'interface eau-sédiment traduit une remobilisation du Fe dans les sédiments. La réduction des oxy-hydroxydes de Fe lors de la dégradation de la matière organique est un des mécanismes responsables de la production de Fe réduit Fe(II) soluble en milieu anoxique :



La présence d'un gradient de concentration à l'interface eau-sédiment pour le Fe induit une diffusion vers la colonne d'eau. Le gradient de concentration à travers l'interface eau-sédiment induit un flux diffusif de 0,35 mg.m<sup>-2</sup>.j<sup>-1</sup>.

La concentration en Mn dissous dans les eaux interstitielles varie entre 382 et 1671 µg.L<sup>-1</sup>. A titre de comparaison, les concentrations en Mn dissous dans les eaux interstitielles mesurées à l'aide des DET varient entre 144 et 4900 µg.L<sup>-1</sup> dans les eaux interstitielles des sédiments de la Lys et de l'Escaut (Gao *et al.*, 2006), entre 630 et 4900 µg.L<sup>-1</sup> dans celles des sédiments de la Lys (Gao *et al.*, 2007), et entre 125 et 2600 µg.L<sup>-1</sup> dans celles des sédiments de la Rupel (Leermakers *et al.*, 2005).

La concentration en Mn dissous augmente avec la profondeur. L'augmentation en profondeur de la concentration en Mn dissous est liée à la réduction des oxy-hydroxydes de Mn dans les sédiments (libération de Mn solubles en milieu réducteur) qui peut être induite par la dégradation de la matière organique :



La présence d'un gradient de concentration à l'interface eau-sédiment pour le Mn induit une diffusion vers la colonne d'eau. Le gradient de concentration à travers l'interface eau-sédiment induit un flux diffusif de 1,0 mg.m<sup>-2</sup>.j<sup>-1</sup>.

### Phénomènes de mélange

Les profils verticaux du Fe et du Mn mettent en évidence des processus de mélange : leurs concentrations évoluent peu entre 2 et 9 cm de profondeur. L'évolution des concentrations en Fe-Mn dissous passe par des « paliers ». En général, la concentration en Fe-Mn dans les eaux interstitielles des sédiments augmente avec la profondeur, passe par un maximum avant de diminuer : le Fe-Mn passe en solution lors de la réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn puis s'associe à d'autres espèces dissoutes afin de former des précipités insolubles. Dans les sédiments de la Scarpe, il existe des processus de mélange qui contribuent à homogénéiser les concentrations en fonction de la profondeur et à limiter la réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn.

Certains phénomènes naturels d'origine biologique peuvent induire une perturbation des sédiments de surface avec des conséquences sur l'allure des profils des teneurs en solutés dans les eaux interstitielles. Il s'agit notamment de l'activité des organismes fouisseurs et du dégazage des sédiments (Martens, 1976). Les sédiments prélevés dans la Scarpe en k36 se caractérisent par la présence de bulles de gaz liée à la dégradation de la matière organique (*e.g.*

méthanisation) dans les sédiments, et par la présence de vers de vases (annélides aquatique, chironomes) (figure 5.12).

La présence d'organismes fousseurs contribue à perturber les profils de concentrations obtenus en homogénéisant les concentrations le long de la colonne sédimentaire. Les organismes fousseurs creusent des canaux dans les sédiments qui permettent une irrigation de l'oxygène dans les sédiments en profondeur et de limiter par conséquent la remobilisation du Fe-Mn.

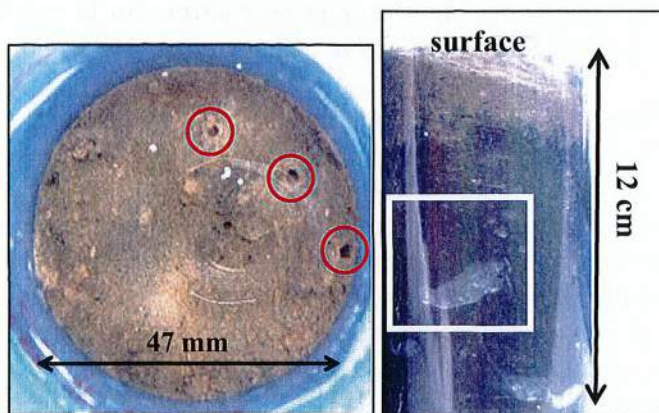


Figure 5. 12 : Surface (à gauche) et profil (à gauche) d'une carotte de sédiment prélevée en k36. Présence de canaux (à gauche) et de bulles de gaz (à droite).

### Evolution des concentrations en Zn, Pb, Cd

Dans les eaux interstitielles, les concentrations varient entre et 35 et 621  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Zn, 4 et 35  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Pb, et 1 et 8  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Cd.

A titre de comparaison, dans les sédiments de la Lys et de l'Escaut (Flandres), la concentration (mesurée à l'aide de DET) peut atteindre 1000  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Zn, 62  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Pb et 11  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Cd (Gao *et al.*, 2006). Dans les sédiments de la Rupel (Belgique), la concentration varie entre 52 et 523  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Zn, 10,2 et 78  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Pb et 0,39 et 5,5  $\mu\text{g.L}^{-1}$  pour le Cd (Leermakers *et al.*, 2005).

Les profils présentent des fluctuations le long de la colonne sédimentaire avec la présence de maxima situés localement en profondeur et à proximité de l'interface eau-sédiment. A l'interface eau-sédiment, les concentrations en Zn, Pb et Cd présentent des maxima de concentrations. La présence d'un gradient de concentration à l'interface eau-sédiment pour le Zn, le Pb et le Cd induit une diffusion vers la colonne d'eau. Le gradient de concentration à travers l'interface eau-sédiment induit un flux diffusif de 2,0  $\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  pour le Zn, 0,14  $\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  pour le Pb et 0,018  $\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  pour le Cd.

La présence de pics de concentrations pour les métaux à la surface des sédiments a déjà été observée dans la littérature (Hamilton-Taylor *et al.*, 1996 ; Zhang *et al.*, 1995 ; Leermakers *et al.*, 2005 ; Tankere-Muller *et al.*, 2007). Elle est attribuée à la mobilisation de ces métaux due à la dégradation de la matière organique fraîche récemment précipitée (Zhang *et al.*, 1995 ; Hamilton-Taylor *et al.*, 1996).

En profondeur, la remobilisation du Zn, du Pb et du Cd est concomitante entre 4 et 7 cm de profondeur. Certains maxima de concentration ne sont pas présents à la même profondeur : par exemple, à 8 cm de profondeur, un pic de concentration est observé pour le Cd et le Pb mais par pour le Pb. Ces perturbations ont également été observées dans la littérature (Docekalova *et al.*, 2002 ; Leermakers *et al.*, 2005 ; Gao *et al.*, 2006 ; Gabelle, 2006). Les facteurs de variation sont de différentes natures : les perturbations peuvent être liées aux mécanismes de remobilisation des métaux mais aussi à l'hétérogénéité spatiale de la matrice sédimentaire, ou encore aux caractéristiques du gel (*e.g.* porosité) (Fones *et al.*, 1998). Dans les sédiments de la Scarpe,

l'évolution des concentrations en Zn, Pb et Cd a été comparée à celle des paramètres physico-chimiques mesurés dans le milieu (pH, Eh) et à celle du Fe-Mn.

D'après les profils de pH, Eh, O<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>O dissous dans les eaux interstitielles, les réactions diagénétiques se mettent en place dans les premiers mm des sédiments de surface. Le milieu devient rapidement anoxique. A l'interface eau-sédiment, les processus diagénétiques pilotés par des réactions d'oxydo-réduction et catalysés par l'activité bactérienne exercent une influence locale sur la mobilité des métaux (Zn, Pb, Cd, Mn et Fe). La réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn est susceptible d'exercer un contrôle sur la mobilité de certains métaux dans les eaux interstitielles (Shaw *et al.*, 1990 ; Zhang *et al.*, 1995 ; Fones *et al.*, 2004 ; Naylor *et al.*, 2004).

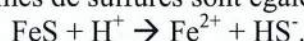
A l'interface eau-sédiment, la remobilisation du Zn, du Pb et du Cd est concomitante avec celle du Mn et surtout du Fe. Les contaminants associés aux oxy-hydroxydes de Fe-Mn dans les sédiments oxydés sont remobilisés au cours de la diagenèse illustrée ici par la réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn en milieu réduit. En profondeur, alors que la concentration en Mn présente une légère tendance à l'augmentation, le Zn, le Pb et le Cd sont localement remobilisés. La remobilisation locale et simultanée du Zn, du Pb, et du Cd peut être liée à la déstabilisation des phases porteuses de ces métaux dans les sédiments, tels que les sulfures. Cette déstabilisation en profondeur serait une conséquence de l'activité microbienne locale sur la mobilité des contaminants (Fones *et al.*, 1998).

### 5.4.1.3 Rôle des sulfures

La présence de sulfures métalliques dans les sédiments peut exercer un contrôle sur la mobilité des métaux dans les sédiments (Di Toro *et al.*, 1990 ; Morse, 1994 ; Huerta-Diaz *et al.*, 1997). L'association sulfure-fer(II) est à l'origine des précipités de FeS amorphe (troilite) (composé conférant une couleur noire aux sédiments) et, à terme, des phases cristallines plus stables telle que FeS<sub>2</sub> (la pyrite) après transformations diagénétiques.

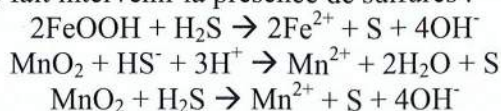
La cinétique de formation des sulfures métalliques (ZnS, CdS et PbS) est plus rapide que celle des sulfures de Fe (FeS) (Morse et Luther III, 1999). Les sulfures métalliques (CuS et CdS) sont capables de se former pour des concentrations en sulfures relativement faibles (Morse *et al.*, 1987 ; Huerta-Diaz *et al.*, 1997 ; Morse et Luther III, 1999 ; Tankere-Muller *et al.*, 2007).

L'absence de remobilisation des métaux dans les sédiments peut être due à la formation de sulfures métalliques insolubles (Tankere-Muller *et al.*, 2007), tandis que la remobilisation des métaux résulte de la déstabilisation des sulfures métalliques. Les sulfures métalliques sont sensibles à la variation de pH et à l'oxydation. L'oxydation des sulfures entraîne la remobilisation du Fe en solution et les contaminants métalliques adsorbés à la surface des sulfures de Fe ou présents sous formes de sulfures sont également remobilisés :



Naylor *et al.* (2004) ont observé une remobilisation simultanée des métaux (Fe, Mn, Ni, Zn) avec celle des sulfures à proximité de l'interface eau-sédiment dans des sédiments d'origine portuaire. Canfield *et al.* (1993) et Naylor *et al.* (2004) ont mis en évidence la présence de zones actives et locales où les réactions de décomposition de la matière organique et de réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn mais aussi des sulfates ont lieu simultanément.

Dans l'hypothèse de la présence de sulfures dans les eaux interstitielles des sédiments de la Scarpe, un autre mécanisme réactionnel de réduction des oxy-hydroxydes de Fe et de Mn (Burdige et Nealson, 1986) fait intervenir la présence de sulfures :



liques à l'interface eau-sédiment

et du PbS dans les poussières atmosphé.

### ges au cours du temps.

à l'interface eau-sédiment au cours du temps a nécessité .  
ts. Les carottes de sédiments ont été prélevées en k36 dans le  
décembre 2005 et août 2006. L'étude porte sur l'évolution des  
métalliques dans les eaux interstitielles des sédiments. Les  
corales ont été échantillonnées avec les sondes DET et analysés  
n DET par carotte, on a fait l'hypothèse que les réactions  
et qu'il existait une homogénéité horizontale.

### s des métaux dans les eaux interstitielles

t des contaminants métalliques à l'interface eau-sédiment, les  
ions en Zn, Pb, Cd et Cu ont été déterminés dans les eaux  
levés en k36 à l'aide des DET entre décembre 2005 et août  
ntent l'évolution des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans  
n de la profondeur de sédiment.

l'intervalle de variation des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu  
les sédiments de la Scarpe. A titre de comparaison, les  
Cu mesurées à l'aide des DET dans les eaux interstitielles des  
caut (Flandres) (Gao *et al.*, 2006), et de la Rupel (Belgique)  
prises.

ans les eaux interstitielles des sédiments, en  $\mu\text{g.L}^{-1}$

Scarpe	La Lys, l'Escaut	La Rupel
6374	1000	52-523
238	62	10,2-78
29.	11	0,39-5,5
289	100	20-150

trations en Zn, Pb, Cd et Cu dans les eaux interstitielles des sédiments de  
rivières.

Tableau 5.4 : Intervalles de concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans les eaux interstitielles des sédiments de rivières.

Concentrations dans les eaux interstitielles des sédiments, en µg.L <sup>-1</sup>			
Zn	Pb	Cd	Cu
31-6374	1-238	0,1-29	2-289
1000	62	11	100
52-523	10,2-78	0,39-5,5	20-150
La Scarpe		La Lys, l'Escaut	
La Scarpe		La Ruppel	

Le tableau 5.4 présente l'intervalle de variation des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans les eaux interstitielles des sédiments de la Scarpe. A titre de comparaison, les concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu mesurées à l'aide des DFT dans les eaux interstitielles des sédiments de la Lys et de l'Escaut (Flandres) (Gao *et al.*, 2006), et de la Ruppel (Belgique) (Lermakers *et al.*, 2005) sont reprises.

Afin d'étudier le transfert des contaminants métalliques à l'interface eau-sédiment, les profils verticaux des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu ont été déterminés dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en K36 à l'aide des DFT entre décembre 2005 et août 2006. Les figures 5.14-17 présentent l'évolution des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu dans les eaux interstitielles en fonction de la profondeur de sédiment.

#### 5.4.2.1 Concentrations des métaux dans les eaux interstitielles

L'évolution des échanges à l'interface eau-sédiment au cours du temps a nécessité le prélèvement régulier des sédiments. Les carottes de sédiments ont été prélevées en K36 dans le cadre du suivi de terrain, entre décembre 2005 et août 2006. L'étude porte sur l'évolution des concentrations des contaminants métalliques dans les eaux interstitielles des sédiments. Les métaux contenus dans les eaux porales ont été échantillonnés avec les sondes DFT et analysés en ICP MS. En n'utilisant qu'un DFT par carotte, on a fait l'hypothèse que les réactions diagénétiques étaient à l'équilibre et qu'il existait une homogénéité horizontale.

#### 5.4.2 Evolution des échanges au cours du temps.

non ferreux peut émettre du ZnS et du PbS dans les poussières atmosphériques (Sobanska, 1999).

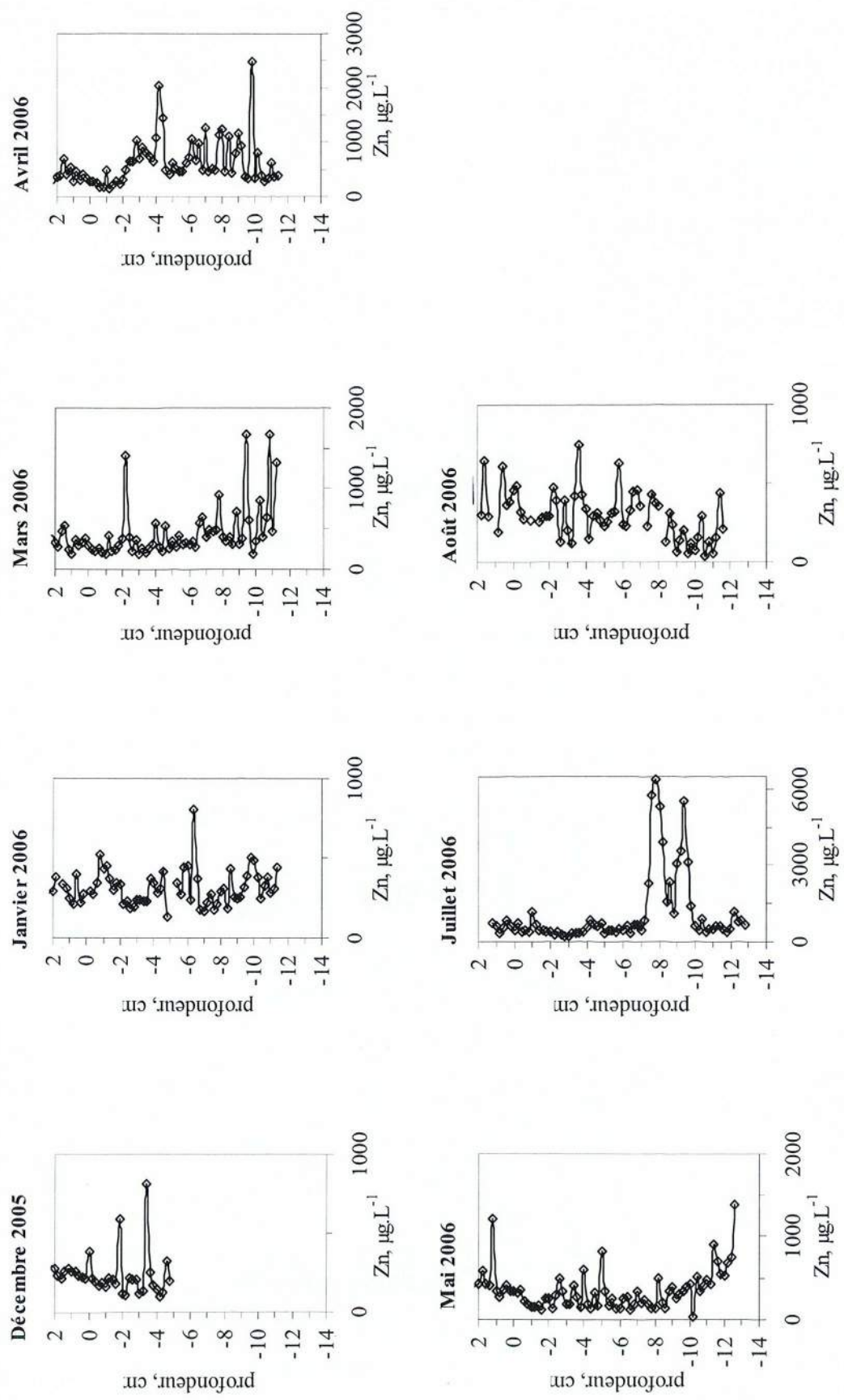


Figure 5. 14 : Evolution de la concentration du Zn avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 entre avril et août 2006.

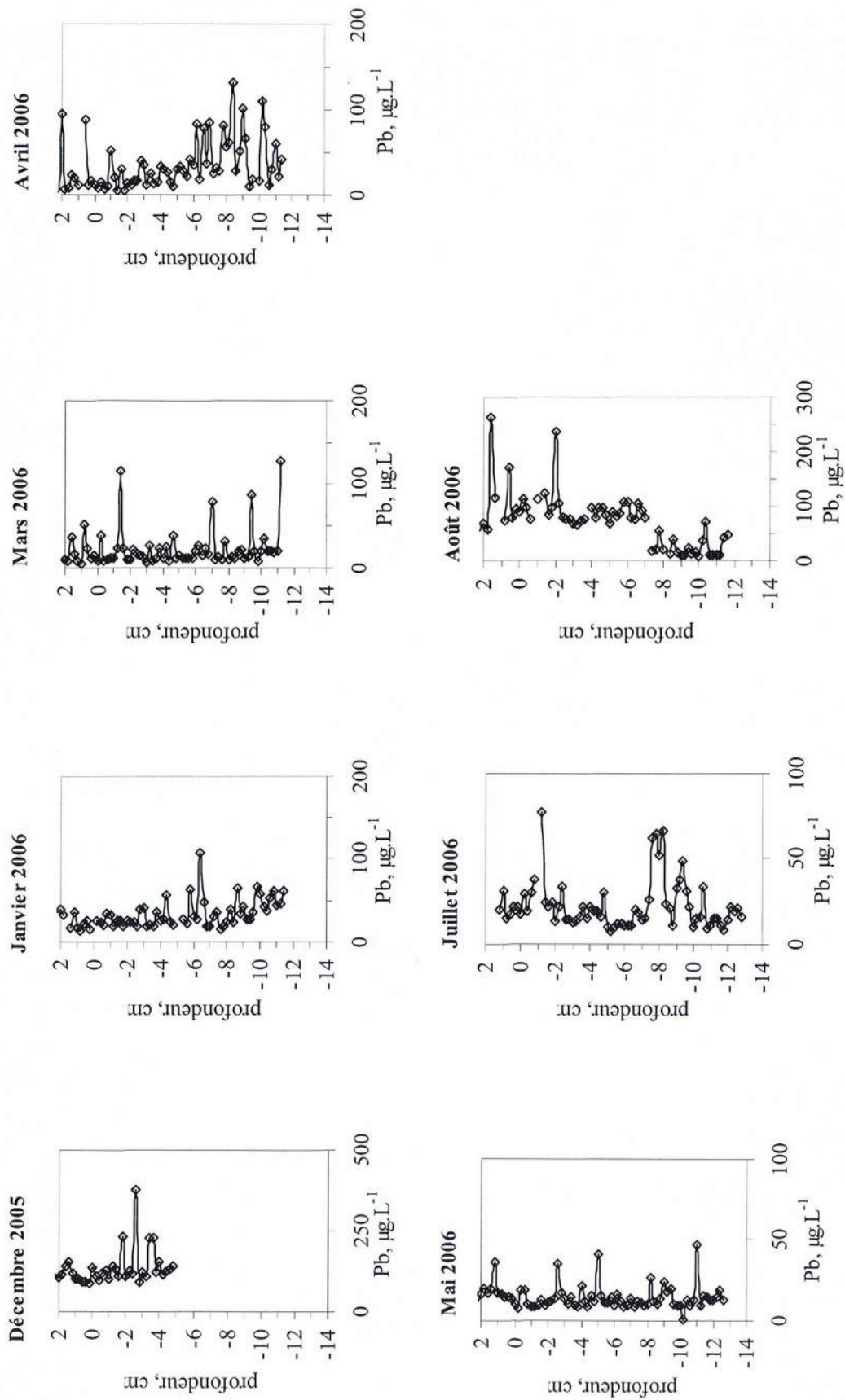


Figure 5. 15 : Evolution de la concentration du Pb avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 entre avril et août 2006.

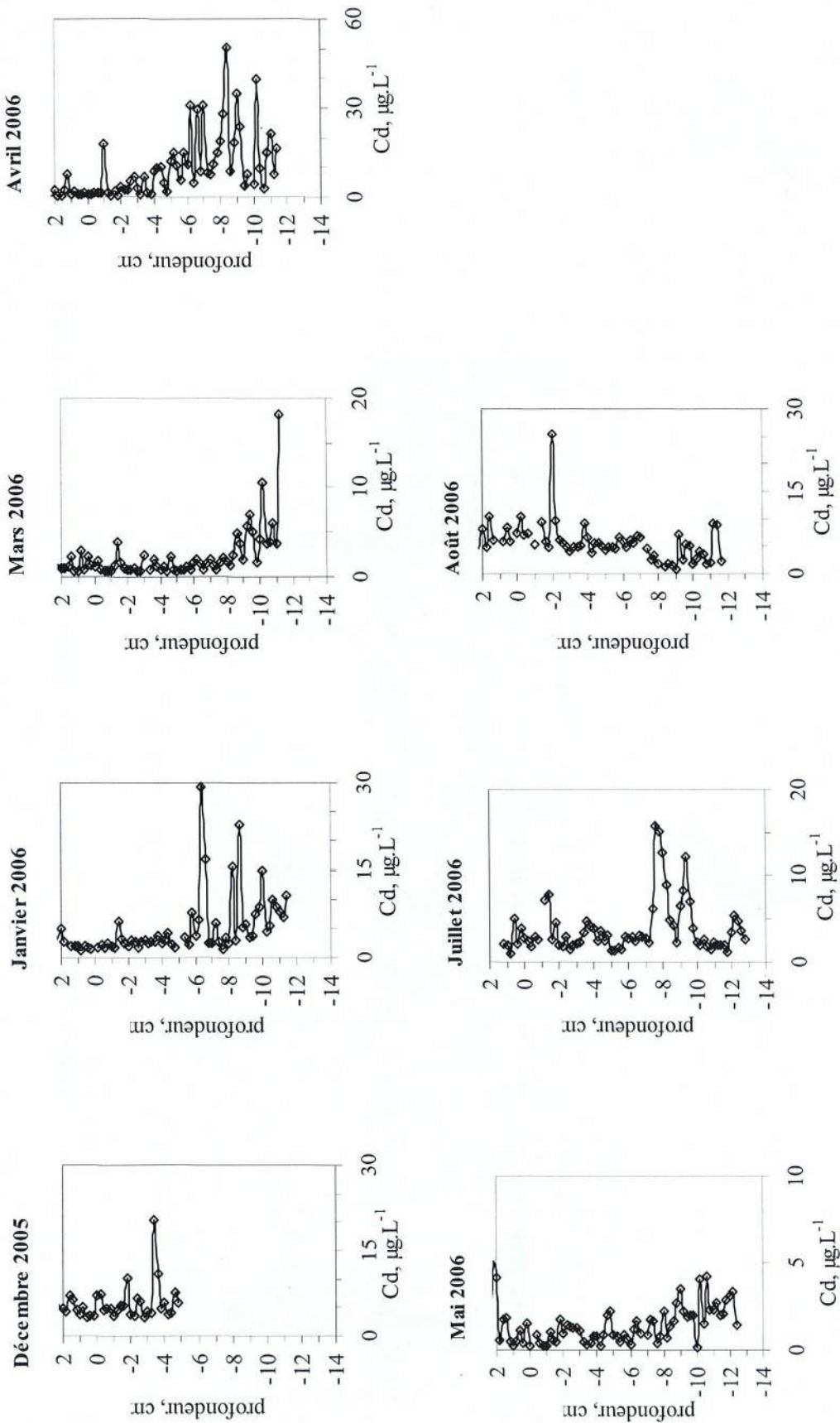


Figure 5. 16 : Evolution de la concentration de Cd avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 entre avril et août 2006.



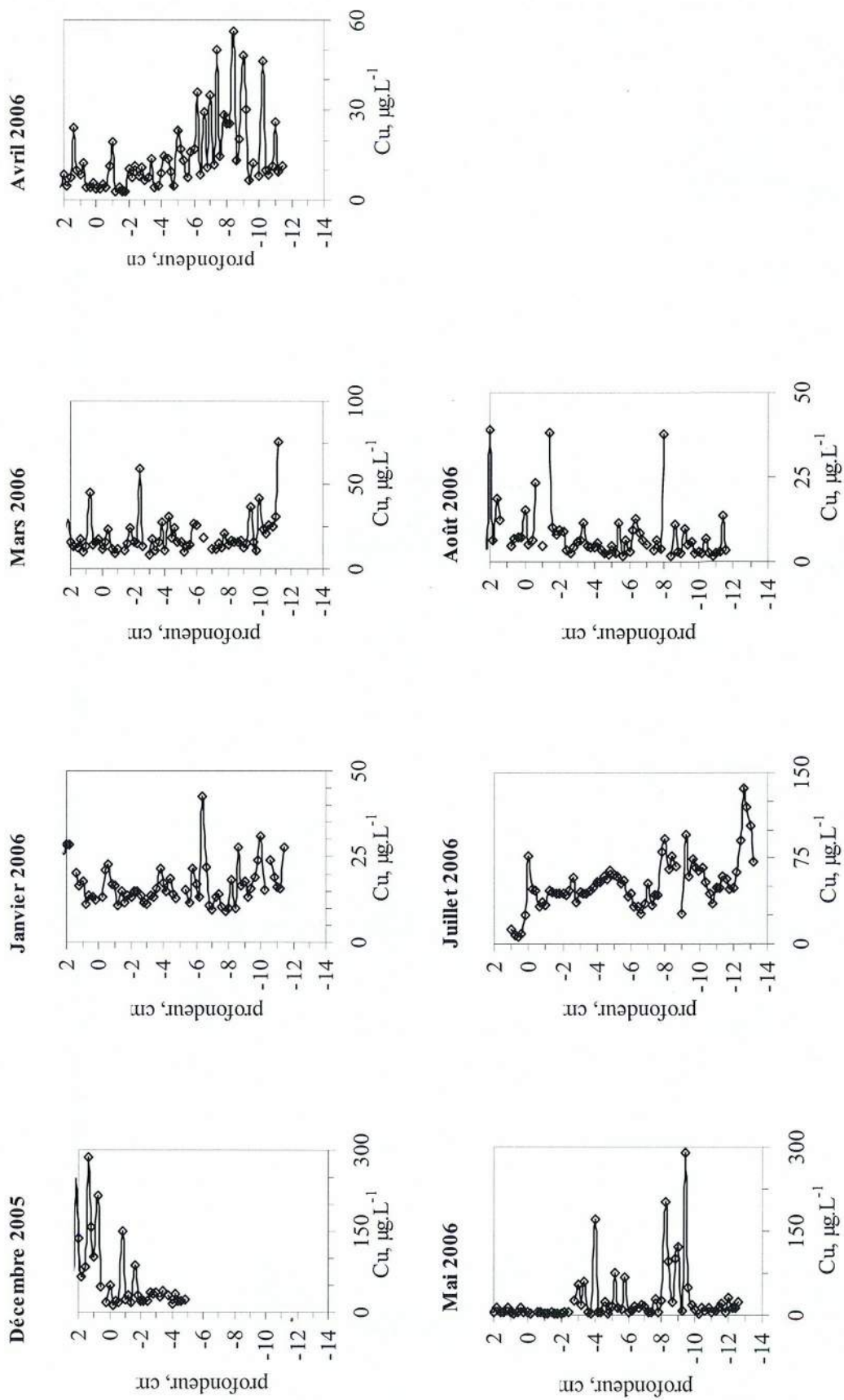


Figure 5. 17 : Evolution de la concentration du Cu avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 entre avril et août 2006.

D'après les profils verticaux du Zn, Pb, Cd et Cu, les concentrations en contaminants métalliques restent généralement inférieures à une certaine valeur « seuil » :

- pour le Zn :  $500 \mu\text{g.L}^{-1}$  ;
- pour le Pb :  $25 \mu\text{g.L}^{-1}$  en janvier (<8 cm), juillet et mai,  $50 \mu\text{g.L}^{-1}$  en janvier, mars et avril (<6 cm), et  $100 \mu\text{g.L}^{-1}$  en décembre, août et avril (>6 cm) ;
- pour le Cd :  $5 \mu\text{g.L}^{-1}$  en décembre et août, et  $2-3 \mu\text{g.L}^{-1}$  en janvier (<6 cm), mars (<8 cm), avril (<3 cm), et mai ;
- pour le Cu :  $15-20 \mu\text{g.L}^{-1}$  en janvier (<6 cm), mars (<9 cm), avril (<6 cm), mai et août, et  $40 \mu\text{g.L}^{-1}$  en décembre.

Cette valeur « seuil » est comprise dans l'intervalle de variation des concentrations en Zn, Pb, Cd et Cu mesurées dans l'eau sus-jacente. D'après le chapitre 2, il existe un enrichissement en Zn, Pb, Cd et Cu dans l'eau sus-jacente en raison d'un biais analytique potentiel : la formation de précipités d'oxy-hydroxydes de Fe-Mn colloïdaux dans les gels du DET contribue à surestimer les concentrations en Fe-Mn et métaux adsorbés (Zn, Pb, Cd, Cu).

Lorsque les concentrations sont supérieures à cette valeur « seuil », l'augmentation de la concentration est attribuée, soit à une diffusion dans les sédiments, soit à une remobilisation ponctuelle liée à la déstabilisation des phases porteuses ou à l'hétérogénéité de la matrice sédimentaire ou encore à un biais analytique (e.g. porosité du gel).

L'augmentation de la concentration du contaminant métallique est attribuée à une diffusion dans les sédiments en profondeur :

- pour le Zn : entre 2 et 3 cm de profondeur en avril, et à partir de 6 cm de profondeur en mars ;
- pour le Pb : à partir de 8 cm en janvier et 6 cm en avril ;
- pour le Cd : à partir de 6 cm en janvier, 8 cm en mars et 3 cm en avril ;
- pour le Cu : à partir de 6 cm en janvier, 9 cm en mars et 6 cm en avril.

En juillet 2006, la présence de deux maxima entre 7 et 10 cm de profondeur est observée pour le Zn, le Pb, le Cd et dans une moindre mesure le Cu. Les deux pics sont attribués à une remobilisation ponctuelle du Zn, Pb, Cd et Cu dans les sédiments.

Enfin, la présence de pics isolés et fréquents serait due à l'hétérogénéité de la matrice sédimentaire et/ou à un biais analytique.

A proximité de l'interface eau-sédiment, les profils de Zn, Pb, Cd ne présentent pas de gradient de concentration. Seul le profil du Cu obtenu en juillet 2006 présente un maximum de concentration situé juste en-dessous de l'interface eau-sédiment. De plus, les concentrations du Cu sont les plus élevées en comparaison avec l'ensemble des sédiments prélevés ( $> 40 \mu\text{g.L}^{-1}$ ). La remobilisation du Cu dans les sédiments est liée à l'oxydation de la matière organique (e.g. Tankere-Muller *et al.*, 2007). Le gradient de concentration induit un flux diffusif de  $0,75 \pm 0,07 \text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  (soit  $12 \pm 1 \mu\text{mol.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ ) pour le Cu. Le flux est positif car il s'agit d'un flux ascendant : le Cu dissous diffuse depuis le sédiment (eaux interstitielles) vers l'eau. A titre de comparaison, dans des sédiments contaminés d'origine portuaire, Tankere-Muller *et al.* (2007) ont calculé un flux ascendant diffusif de  $5-8 \mu\text{mol.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  pour le Cu à partir des gradients de concentrations en Cu obtenus à l'aide de DET.

Entre décembre 2005 et août 2006, l'évolution des profils du Zn, Pb, Cd et Cu ne présente pas de tendance générale au cours du temps. Les concentrations des métaux en profondeur sont variables d'un mois à l'autre. Les réactions diagénétiques et les conditions du milieu (oxydant/réducteur) contrôlent la distribution des contaminants dans les sédiments.

### 5.4.2.2 Remobilisation des métaux dans les sédiments. Rôle du Mn.

La solubilité des métaux dans les sédiments est contrôlée par les processus diagénétiques qui sont pilotés par des réactions d'oxydo-réduction et catalysés par l'activité bactérienne. On a montré auparavant qu'à proximité de l'interface eau-sédiment, la réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn s'accompagne d'une remobilisation des contaminants. Le cycle redox du Mn dans les milieux aquatiques pouvant affecter considérablement le devenir des contaminants (*e.g.* Balistrieri et Murray, 1986), on se propose maintenant de discuter l'évolution de la mobilité du Zn, Pb, Cd et Cu à partir des profils verticaux de Mn. Entre décembre 2005 et août 2006 les concentrations du Mn ont été déterminées dans les eaux interstitielles des sédiments à partir des DET. La figure 5.19 présente les profils verticaux de Mn dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés entre décembre 2005 et août 2006.

La concentration du Mn dissous dans les eaux interstitielles varie entre 111 et 1247  $\mu\text{g.L}^{-1}$ . A titre de comparaison, les concentrations du Mn dissous dans les eaux interstitielles mesurées à l'aide des DET varient entre 144 et 4900  $\mu\text{g.L}^{-1}$  dans les eaux interstitielles des sédiments de la Lys et de l'Escaut (Gao *et al.*, 2006), entre 630 et 4900  $\mu\text{g.L}^{-1}$  dans celles des sédiments de la Lys (Gao *et al.*, 2007), et entre 125 et 2600  $\mu\text{g.L}^{-1}$  dans celles des sédiments de la Rupel (Leermakers *et al.*, 2005).

D'après la figure 5.19, les concentrations du Mn dans les eaux interstitielles sont généralement inférieures à 500  $\mu\text{g.L}^{-1}$ , sauf pour les mois de décembre (au-delà de 2 cm dans la carotte), janvier (> 10 cm), mars (> 7 cm), avril 2006 (2 cm) et juillet (> 4 cm).

Tous les profils verticaux mettent en évidence une augmentation des concentrations en Mn dissous avec la profondeur. L'augmentation en profondeur de la concentration en Mn dissous est liée à la réduction des oxy-hydroxydes de Mn (libération de Mn solubles en milieu réducteur) lors de la dégradation de la matière organique dans les sédiments. La figure 5.18 présente la variation de la vitesse de réduction du Mn à l'interface eau-sédiment.

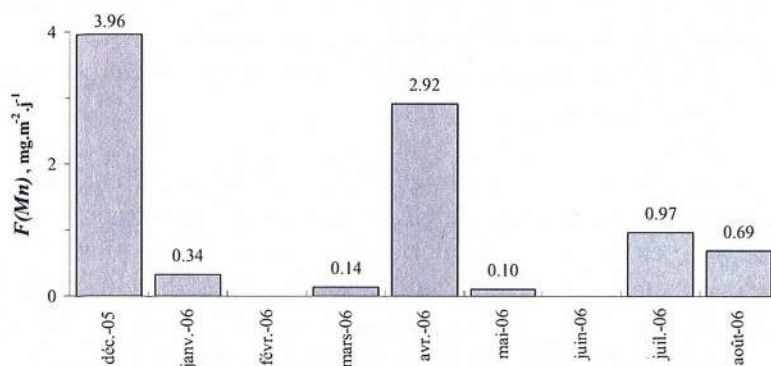


Figure 5. 18 : Evolution du flux de diffusion du Mn à travers l'interface eau-sédiment entre décembre 2005 et août 2006.

A l'interface eau-sédiment, le flux de Mn dissous varie entre 0,1 et 4  $\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ , soit entre 2 et 72  $\mu\text{mol.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ . Le flux obtenu en avril 2006 est particulier car la concentration augmente d'un facteur 2 dans un faible intervalle (0,2 cm de profondeur). A titre de comparaison, dans les sédiments de la lagune de Thau, le flux de Mn à l'interface eau-sédiment varie entre  $0,05 \pm 0,06$  et 37  $\mu\text{mol.L}^{-1}.\text{j}^{-1}$  en fonction du site échantillonné (Metzger *et al.*, 2007).

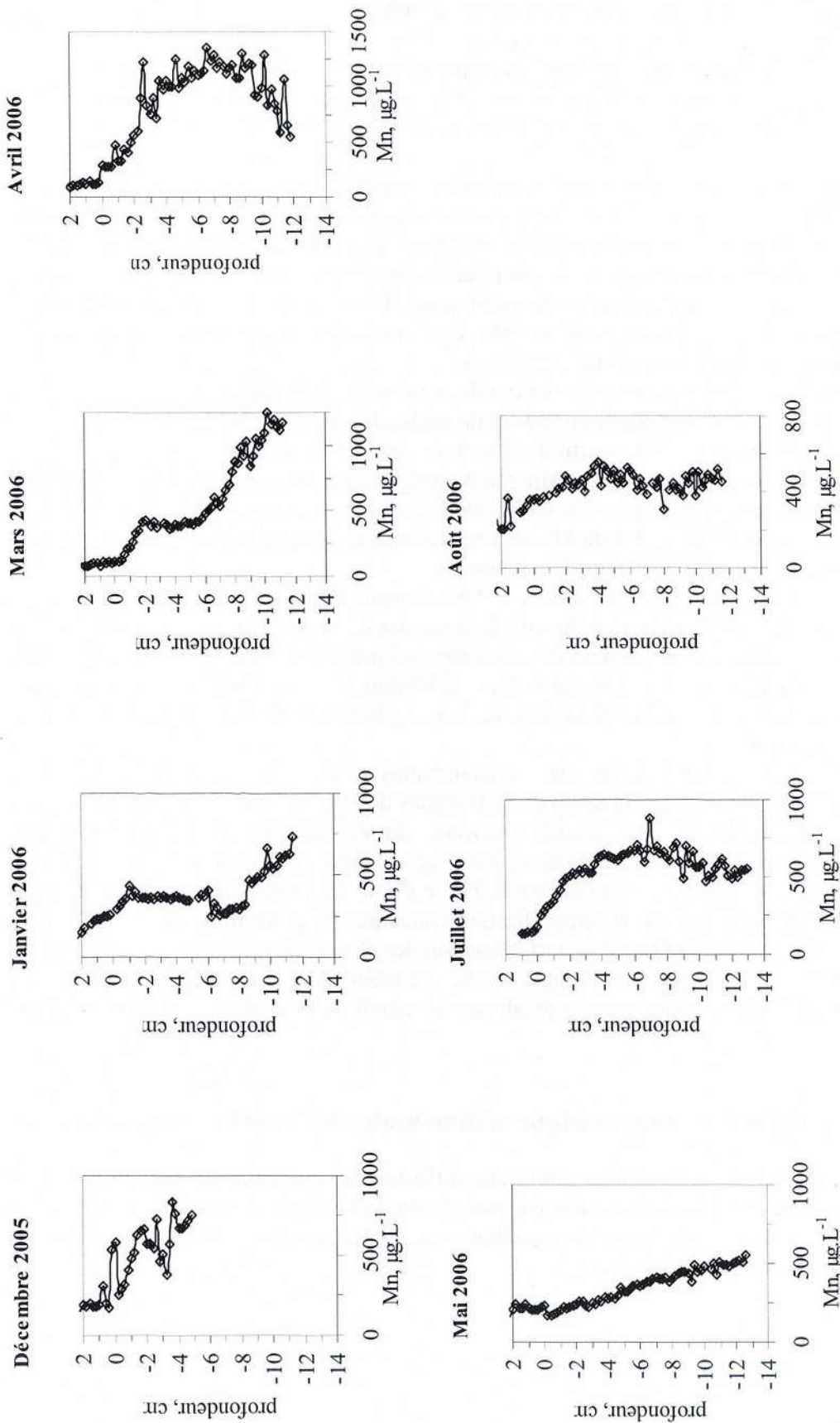


Figure 5. 19 : Evolution de la concentration du Mn avec la profondeur dans les sédiments prélevés en k36 entre avril et août 2006.

Certains profils montrent une augmentation des concentrations en Mn par « palier(s) ». La concentration du Mn reste relativement constante avant de ré-augmenter avec la profondeur :

- entre 2 et 5 cm de profondeur en janvier 2006,
- entre 2 et 6 cm de profondeur en mars 2006.

Les processus de mélange sont certainement responsables de la présence de ces « paliers ». La bioturbation (faune macroscopique) contribue à homogénéiser le signal en profondeur et la bioirrigation à limiter la réduction des oxy-hydroxydes de Mn.

L'étude comparative des profils verticaux des polluants métalliques (Zn, Pb, Cd, Cu) et du Mn utilisé comme témoin des réactions diagénétiques (*i.e.* réduction des oxy-hydroxydes de Mn) met en évidence des corrélations en profondeur dans les sédiments. A partir d'une certaine profondeur, les concentrations en contaminants métalliques sont plus élevées qu'en surface, tandis que la concentration du Mn augmente avec la profondeur. L'augmentation de la concentration en Mn dans les eaux interstitielles est corrélée à l'augmentation des concentrations (cf. § 5.4.2.1) :

- du Pb, Cd et Cu à partir de 6-8 cm de profondeur en janvier 2006,
- du Zn, Cd et Cu à partir de 6-9 cm de profondeur en mars 2006,
- du Zn, Pb, Cd et Cu à partir de 2-6 cm de profondeur en avril 2006.

La réduction des oxy-hydroxydes de Mn s'accompagne probablement d'une remobilisation des contaminants métalliques dans les sédiments de la Scarpe situés en profondeur (> 2 cm). La réduction des oxy-hydroxydes de Mn est une réaction diagénétique qui exerce un contrôle sur la mobilité des contaminants dans les sédiments.

Dans les sédiments de surface (< 2 cm), l'établissement rapide des conditions anoxiques (quelques mm) favorise la réduction des oxy-hydroxydes de Mn dont résulte la remobilisation du Mn. Et, la présence d'un gradient de concentration induit une diffusion du Mn à travers l'interface eau-sédiment. La présence des contaminants métalliques dans les eaux interstitielles peut résulter de la réduction des oxy-hydroxydes de Mn auxquels ils étaient initialement adsorbés.

Inversement, une remobilisation des contaminants dans les sédiments n'est pas nécessairement liée à la réduction des oxy-hydroxydes de Mn. En effet, en juillet 2006, entre 7 et 10 cm de profondeur, les profils verticaux du Zn, Pb, Cd et Cu montrent une remobilisation concomitante et localisée (2 pics) qui n'apparaît pas sur le profil de Mn. Il existe un processus capable de remobiliser le Zn, le Pb, le Cd et dans un moindre mesure le Cu, mais pas le Mn. En juillet, la remobilisation concomitante et localisée du Zn, du Pb, du Cd et du Cu est certainement liée à la déstabilisation des phases porteuses de ces métaux dans les sédiments (*e.g.* sulfures métalliques). Cette déstabilisation en profondeur serait une conséquence de l'activité microbienne locale sur la mobilité des contaminants (Fones *et al.*, 1998).

### **5.4.2.3 Diffusion et dynamique sédimentaire à l'interface eau-sédiment.**

Entre décembre 2005 et août 2006, une diffusion des contaminants métalliques a pu être observée pour le Cu en juillet, mais pas pour le Zn, le Pb et le Cd. Dans les sédiments de la Scarpe, la diffusion des espèces métalliques à l'interface eau-sédiment est donc un phénomène ponctuellement observé.

A cours de la période d'échantillonnage, la présence des contaminants (Zn, Pb, Cd, Cu) est observée dans les eaux interstitielles de toutes les carottes prélevées. Cependant, l'évolution de leurs concentrations à proximité de l'interface eau-sédiment ne permet pas de conclure quant à la présence d'un gradient de concentration induisant une diffusion (excepté en juillet pour le Cu). On suggère trois hypothèses pour expliquer cette absence de diffusion à l'interface eau-sédiment :

- **Hyp. 1 :** Soit les contaminants ne sont pas remobilisés et les concentrations observées proviennent d'un biais analytique (DET) : la formation d'hydroxydes de Fe-Mn colloïdaux dans les gels du DET génère un enrichissement des contaminants dans les eaux interstitielles (cf. chapitre 2). Cependant, la diffusion du Cu à l'interface eau-sédiment est observée en juillet, et la variation des concentrations mesurées à l'interface entre les eaux interstitielles et l'eau sus-jacente ne permet pas d'en douter. D'autant plus que les concentrations du Cu dans les eaux interstitielles témoignent d'une remobilisation importante et efficace en comparaison avec les autres carottes. Par conséquent, la présence des contaminants dans les eaux interstitielles à proximité de l'interface ne peut être imputée uniquement à l'existence d'un biais analytique. Les contaminants sont *a priori* capables d'être remobilisés à l'issue des réactions diagénétiques. Le comportement du Cu à l'interface se distingue de celui des autres contaminants. La différence de comportement géochimique a été observée auparavant : (i) le Cu est moins bien représenté par la fraction « réactive » des sédiments que le Zn, le Pb et le Cd ; et (ii) le Cu présente une affinité préférentielle vis-à-vis à des substrats organiques (cf. chapitre 3).

- **Hyp. 2 :** Soit les contaminants sont remobilisés, et la remobilisation est suivie d'une diffusion à l'interface eau-sédiment. Les échanges chimiques sont revenus rapidement à l'équilibre pendant le temps de pose de la sonde (24 h). Dans ce cas, la méthode utilisée pour la détermination des concentrations dans les eaux interstitielles (DET) a atteint ses limites : la cinétique des échanges chimiques est trop rapide par rapport au temps de pose des sondes DET dans les sédiments.

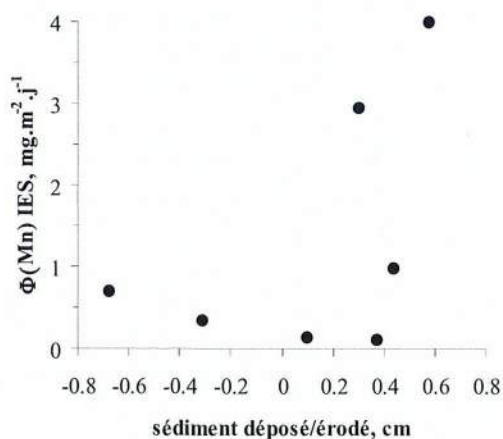
- **Hyp. 3 :** Soit les contaminants sont remobilisés mais la diffusion n'est pas significative. La remobilisation des contaminants est alors limitée par la capacité pour les phases porteuses à piéger les contaminants (sulfures, oxy-hydroxydes de Fe-Mn). Bien que les sédiments de surface (<2 cm) soient rapidement dépourvus d'oxygène (quelques mm), ils ne sont pas réducteurs pour autant. Par ailleurs, la remobilisation des métaux est d'autant plus limitée que la sédimentation est lente. La bioturbation et une sédimentation lente sont favorables au maintien des conditions oxydantes dans les sédiments avec pour conséquence probable un flux de réduction négligeable (Gerritse, 1999).

Dans le cadre du suivi temporel des concentrations en contaminants dans les eaux interstitielles, la diffusion a été mise en évidence une seule fois (juillet) et pour un seul contaminant (Cu). Lors de la caractérisation des eaux interstitielles, la remobilisation concomitante du Zn, Pb et Cd située juste sous l'interface eau-sédiment résulte en un flux diffusif de ces contaminants vers l'eau sus-jacente. La remobilisation des contaminants est un phénomène qui dépend apparemment des conditions de conservation des sédiments. Les sédiments prélevés dans le cadre du suivi n'ont pas subi de traitement tandis que les sédiments prélevés pour la caractérisation des eaux interstitielles ont séjourné 14 jours en chambre froide (cf. chapitre 2). Durant ce laps de temps, les conditions du milieu ont certainement évolué de manière à favoriser la remobilisation des contaminants à proximité de l'interface eau-sédiment. L'activité microbienne doit jouer un rôle déterminant dans la capacité pour une espèce à diffuser à l'interface.

Les perturbations physiques à l'interface eau-sédiment liées au mouvement des particules sédimentaires sont susceptibles de faire varier les paramètres physico-chimiques et d'influencer la mobilité des métaux dans les sédiments. D'après le chapitre 4, entre décembre 2005 et août 2006, en k36, les sédiments se sont déposés et érodés avec des flux de dépôt et d'érosion variables. L'alternance de dépôt et d'érosion suggère que la surface des sédiments est en mouvement, dynamique. Or, la diffusion des contaminants métalliques n'a pu être observée que ponctuellement (juillet) et pour un seul contaminant (Cu). Dans la Scarpe il est difficile de relier la vitesse de dépôt/d'érosion des particules avec la vitesse de diffusion des polluants métalliques à l'interface, car la dynamique sédimentaire a un caractère continu tandis que la diffusion à l'interface eau-sédiment ne l'est pas. On peut se demander pourquoi la diffusion des polluants métalliques à l'interface eau-sédiment n'est-elle pas systématiquement observée. Les facteurs limitant la diffusion des contaminants ont été décrits auparavant. La stratégie d'étude peut également être discutée. En effet, le flux de dépôt/d'érosion sédimentaire constitue une information intégrée sur une échelle de temps mensuelle. Or, la cinétique des échanges chimiques peut se faire sur des échelles de temps variables et plus courtes.

En revanche, le comportement géochimique du Mn diffère de celui des contaminants Zn, Pb, Cd et Cu. Dans les sédiments de surface, l'établissement rapide des conditions anoxiques (quelques mm) favorise la réduction des oxy-hydroxydes de Mn. La diffusion du Mn a été observée dans tous les sédiments prélevés dans la Scarpe au cours du suivi temporel des échanges à l'interface eau-sédiment. On se propose donc de mettre en évidence l'influence de la dynamique sédimentaire sur la vitesse de réduction du Mn à l'interface.

Certains auteurs ont mis en évidence une corrélation entre les flux de sédimentation (échelle décennale, utilisation du  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) et les flux de réduction des espèces impliquées (Mn, sulfates) dans des réactions diagénétiques (réduction) (*e.g.* Gerritse, 1999 ; Mouret *et al.*, 2007). Dans le cas du dépôt de sédiments, l'apport de matière organique fraîche devrait perturber l'équilibre des échanges chimiques à l'interface eau-sédiment en contribuant *a priori* à stimuler les réactions diagénétiques et générer un flux diffusif de Mn plus rapide. La figure 5.20 illustre la variation du flux de Mn à l'interface eau-sédiment en fonction de la dynamique sédimentaire des sédiments de surface.



**Figure 5. 20 : Variation du flux de Mn à l'Interface Eau-Sédiment (=IES) en fonction de la hauteur de sédiment déposé/érodé en k36, entre décembre 2005 et août 2006.**

Entre décembre 2005 et août 2006, il n'y a pas de relation directe entre le flux de Mn à travers l'interface et les vitesses de dépôt/érosion des sédiments de surface. Cette absence de relation directe peut être attribuée à différents facteurs liés aux processus diagénétiques et à la

dynamique sédimentaire : (i) les apports en Mn dissous et particulaire dans le milieu varient dans le temps (C. Alary, communication personnelle), (ii) la sédimentation n'est pas régulière. De plus, certains paramètres du milieu sédimentaire évoluant avec le temps (*e.g.* température) exercent une influence probable sur la cinétique des échanges chimiques à l'interface eau-sédiment et pas sur les vitesses de dépôt des sédiments. Les sédiments de surface étant continuellement perturbés par l'apport ou non de matériel sédimentaire, les échanges chimiques qui se mettent en place peuvent varier rapidement. La diffusion n'est certainement pas l'unique mode de transport pour le Mn dissous. La bioturbation ou le dégazage des sédiments contribuent au transport non diffusif du Mn dissous.

Malgré l'absence de relation directe entre les vitesses de réduction du Mn et de dépôt des sédiments, une vitesse de dépôt trop lente peut limiter la vitesse de réduction du Mn dans les sédiments par le truchement de la bioturbation (bioirrigation) (Gerritse, 1999). La bioturbation est aussi responsable du déplacement des particules sédimentaires dans les sédiments de surface. La remise en suspension/l'érosion épisodique des sédiments contribue activement à l'échange des particules entre l'eau et le sédiment. Les perturbations physiques à l'interface eau-sédiment, d'origine biologique ou non, engendrent des variations dans la remobilisation des métaux dans les eaux porales (Atkinson *et al.*, 2007 ; Ciutat *et al.*, 2007).

On souhaite signaler que, selon un raisonnement inverse, l'étude des réactions diagénétiques peut aussi mettre en évidence des périodes de temps caractérisées par une certaine stabilité sédimentaire, dans des environnements où le déplacement ou l'échange des particules sédimentaires avec l'eau sus-jacente se fait sur des échelles de temps variables et courtes : de quelques jours à la saison (Aller *et al.*, 2004).

## Conclusion

Dans les sédiments de la Scarpe, les réactions diagénétiques de dégradation de la matière organique se mettent rapidement en place : (i) consommation de l'oxygène (quelques mm) et (ii) réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn (quelques cm). La réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn peut s'accompagner de la remobilisation du Zn, Pb, Cd et Cu qui leur étaient initialement associés. Localement, l'activité microbienne peut induire une déstabilisation des sulfures qui se traduit par une remobilisation des contaminants métalliques. En surface, des pics de concentration en métaux (Zn, Pb, Cd, Fe) ont pu être ponctuellement observés juste sous l'interface eau-sédiment. La présence de ces pics résulte de la dégradation de la matière organique au cours de la diagenèse. La remobilisation concomitante du Zn, Pb, Cd et Fe dans les sédiments de surface montre l'importance de la géochimie du Fe dans le contrôle de la mobilité des métaux dans les sédiments. La remobilisation du Fe dans les eaux interstitielles résulte de la réduction des oxy-hydroxydes de Fe et/ou de la déstabilisation des sulfures.

Dans le cadre du suivi des échanges à l'interface eau-sédiment au cours du temps, la diffusion du Cu a été observée ponctuellement en juillet, et la remobilisation du Cu est attribuée à l'oxydation de la matière organique. Pour les autres contaminants métalliques (Zn, Pb et Cd), il est difficile de conclure sur leur diffusion à l'interface. La remobilisation des contaminants métalliques à proximité de l'interface eau-sédiment peut être limitée par l'activité des organismes fousseurs (bioturbation, bioirrigation). La diffusion n'est peut-être pas le seul mode de transport des solutés dans les sédiments (bioturbation, dégazage des sédiments). Enfin, une vitesse de sédimentation trop lente peut influencer sur les vitesses de réduction des espèces réactives de manière à la rendre négligeable. Dans les sédiments de la Scarpe, l'absence de relation entre la remobilisation des métaux et la dynamique sédimentaire suggère que la mobilité des métaux soit davantage associée aux processus biogéochimiques plutôt qu'aux variations physiques des vitesses de dépôt/érosion.



Dans la Scarpe, les sédiments constituent un système évolutif et hétérogène. Les facteurs de variation sont de nature chimique, biologique et physique. L'étude du compartiment sédimentaire a révélé une grande hétérogénéité dans la contamination des sédiments. L'étude de la dynamique sédimentaire à court terme a mis en évidence une hétérogénéité entre les différents sites sédimentaires échantillonnés : chaque site sédimentaire possède sa propre dynamique sédimentaire (chapitre 4). L'évolution verticale des concentrations en métaux dissous peut varier selon les périodes de prélèvement et selon les modes de conservation. Les flux calculés dans une zone sédimentaire ne peuvent être extrapolés à la totalité d'un cours d'eau qu'avec une grande prudence.

On se propose de comparer les différents flux de polluants métalliques obtenus en k36 entre décembre 05 et avril 06. Le tableau 5.5 présente les flux particuliers de dépôt et d'érosion, le flux diffusif à l'interface eau-sédiment et le flux advectif induit lors de l'érosion des sédiments, pour le Zn, le Pb, le Cd et le Cu. Les valeurs sont comprises dans un intervalle de grandeur délimité par les minima et maxima des flux calculés pour chaque campagne (cf. annexe 6). Par exemple, le flux particulaire de Zn est minimal en mars 2006 ( $14 \text{ mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ ) et maximal en décembre 2005 ( $102 \text{ mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ )

Flux	Zn	Pb	Cd	Cu	
Dépôt	14-102	2-15	1-8	1-8	$\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$
Erosion	29-81	5-12	2-4	3-6	$\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$
Diffusion	0	0	0	0-0,75	$\text{mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$
Advection	21-42	2-10	0,1-1	~ 1	$\mu\text{g.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$

**Tableau 5.5 : Flux particuliers de dépôt/érosion, flux diffusif et flux advectif des contaminants métalliques à l'interface eau-sédiment en k36 entre décembre 2005 et août 2006.**

Le flux advectif est négligeable par rapport aux autres flux. Les flux particuliers de dépôt et d'érosion sont du même ordre de grandeur et généralement les plus élevés. Le transport des contaminants métalliques (Zn, Pb, Cd, Cu) par voie particulaire est donc plus efficace que le transport par voie dissoute (diffusion et advection). Le flux diffusif du Cu reste inférieur au flux particulaire d'érosion.

La contribution diagénétique (pourcentage de remobilisation), correspond au rapport entre le flux de diffusion et le flux de dépôt (Cheevaporn *et al.*, 1995 ; Metzger *et al.*, 2007). Dans la Scarpe (en k36), en juillet 2006, le flux diffusif du Cu étant de  $0,75 \text{ mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$  et le flux de dépôt de  $5 \text{ mg.m}^{-2}.\text{j}^{-1}$ , la contribution du Cu par remobilisation diagénétique est égale à 15 % du flux de dépôt du Cu particulaire.

Dans la Scarpe, la majorité du Zn, du Cd et du Pb contenus dans les sédiments de surface est représentée par la fraction réactive. Elle est donc susceptible de repasser en solution à la suite de perturbations biogéochimiques pouvant être induites par le dépôt/érosion des sédiments. La remobilisation des contaminants métalliques à la suite des perturbations biogéochimiques constitue un paramètre supplémentaire à prendre en compte dans l'établissement des bilans à l'interface eau-sédiment.

## CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Les activités humaines liées au développement industriel et urbain ont largement contribué à l'introduction des métaux dans les cours d'eau. Dans l'eau, les contaminants métalliques s'associent préférentiellement à la matière particulaire. A long terme, les particules sédimentent et les cours d'eau soumis à l'influence des activités humaines se caractérisent par des compartiments sédimentaires souvent contaminés. Les sédiments sont capables de stocker de grandes quantités de polluants métalliques. Cependant, les sédiments contaminés peuvent devenir à leur tour une source de pollution pour le milieu aquatique. Certains événements, d'origine naturelle (crue) ou anthropique (navigation), peuvent générer des perturbations à l'interface eau-sédiment se manifestant par la remise en suspension/érosion des sédiments. Les contaminants métalliques associés aux sédiments pollués sont susceptibles de repasser dans la colonne d'eau lorsque les sédiments sont érodés : l'érosion des sédiments pollués s'accompagne alors d'un flux des contaminants initialement associés aux sédiments (i) par voie particulaire, et (ii) par voie dissoute lorsque le confinement des eaux interstitielles est rompu (advection). La diagenèse des sédiments peut également induire un flux dissous de contaminants depuis les sédiments vers l'eau sus-jacente (diffusion).

Dans l'étude du devenir des polluants métalliques associés aux sédiments contaminés, le travail de thèse a porté sur (i) l'identification et la quantification des processus sédimentaires (dépôt/érosion) sur des échelles de temps et d'espace différentes, et (ii) le devenir des contaminants métalliques dans les sédiments en profondeur et à l'interface eau-sédiment. Le site d'étude sélectionné est compris dans un bief de la Scarpe Inférieure qui est une rivière canalisée, située dans le nord de la France et soumise à l'influence des activités humaines.

Les sédiments de la Scarpe se caractérisent par une superposition de couches sédimentaires aux propriétés physiques différentes. Dans le compartiment sédimentaire, la caractérisation physique des sédiments a montré que les sédiments situés dans la couche de surface sont relativement fins et peu compactés, alors qu'en profondeur les sédiments sont mieux consolidés et plus grossiers. Les sédiments riches en eau situés dans la couche de surface constituent une fraction de sédiments plus facilement mobilisable.

Dans le compartiment sédimentaire, l'analyse chimique a mis en évidence une contamination importante en zinc, plomb, cuivre, et cadmium, avec, respectivement des valeurs moyennes de 2 300, 400, 230 et 70 mg.kg<sup>-1</sup> (m.s.), et maximales de 13 000, 2 400, 500 et 600 mg.kg<sup>-1</sup> (m.s.). A l'échelle du compartiment sédimentaire, les sédiments pollués sont enrichis d'un facteur 10-20 en Zn, Pb et Cd, par rapport au bruit de fond géochimique. La contamination est liée en partie à des activités humaines appartenant au passé : en particulier, le refoulement des eaux d'origine pluviale par la station de relevage contribue activement à la dégradation de la qualité du milieu par l'introduction de métaux (Zn, Pb, Cu et surtout Cd). La station de relevage collecte des eaux de ruissellement qui se sont écoulées à la surface des sols contaminés par l'industrie métallurgique.

Les sédiments sont également contaminés par le carbone organique. Localement, en profondeur, les teneurs en carbone organique total peuvent atteindre jusqu'à 40 à 50 % (m.s.). Dans les sédiments situés en surface la teneur en carbone organique est de l'ordre de 10-20 % (m.s.). Dans certaines carottes, la concomitance entre le carbone organique et les polluants métalliques suggère une origine anthropique commune ou des modalités d'apports et de transferts vers la rivière similaires.

L'analyse des radionucléides dans les sédiments a mis en évidence une contamination en uranium. Les sédiments sont localement enrichis en U (jusqu'à 7 mg.kg<sup>-1</sup> m.s.), probablement

en raison du comportement géochimique de cet élément dans les milieux aquatiques superficiels.

La contamination des sédiments est hétérogène d'amont en aval et entre la surface et la profondeur. L'identification des sources de contamination reste une question ouverte. Il serait intéressant de compléter le travail de thèse par une étude approfondie des sources de particules contaminées dans le secteur d'étude. La Scarpe étant un cours d'eau dont le réseau hydrographique est particulièrement complexe et hiérarchisé, une étude des sources de pollution nécessitera probablement d'intégrer d'autres compartiments (sols) et d'agrandir l'échelle d'observation (bassin versant). Avec l'avènement de techniques instrumentales plus sophistiquées, des travaux prometteurs montrent que les traceurs isotopiques constituent de formidables outils dans l'identification des sources de métaux dans l'environnement. Concernant l'étude *in situ* des mécanismes de transport des sédiments dans un cours d'eau, les oxydes de terres rares sont autant d'outils supplémentaires dans l'identification de l'origine des particules.

Dans les sédiments de la Scarpe, le Zn, le Pb et le Cd sont associés au soufre total. Le Cu présente une affinité préférentielle pour le carbone organique total, de même que l'U. Afin de mieux comprendre le comportement géochimique des métaux et le rôle de la matière organique, nous suggérons des expérimentations supplémentaires dédiées à la spéciation de ces entités.

L'utilisation des traceurs radioactifs environnementaux de période relativement longue ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ) a permis de caractériser les processus de dépôt sur une échelle de temps pluri-décennale. La vitesse de sédimentation est de  $0,2 - 0,5 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ , soit  $< 1-3 \text{ cm.an}^{-1}$ . Les sédiments de la Scarpe se caractérisent par une superposition de couches sédimentaires dont les périodes de dépôt sont différentes. Les sédiments mieux consolidés se sont déposés il y a plus de 70 ans, tandis que les sédiments peu compactés présents en surface correspondent à des dépôts plus récents et datant de moins de 30 ans. Les sédiments de la Scarpe se caractérisent donc par l'absence d'une couche sédimentaire d'âge intermédiaire dont la disparition peut être imputée aux activités humaines (curage, dragage). L'étude des profils verticaux des marqueurs radioactifs a permis de mettre en évidence des processus physiques perturbant l'accumulation des sédiments, tels que l'érosion et le mélange.

L'étude de la dynamique sédimentaire sur une échelle de temps courte a nécessité la mise en place d'une stratégie originale basée sur l'utilisation d'un traceur radioactif environnemental de période courte : le béryllium-7. La méthode du  $^7\text{Be}$  est basée sur une variation de stock dans les sédiments au cours du temps. Afin de déterminer les flux de dépôt et d'érosion des sédiments au cours d'une période de temps (*i.e.* mensuelle), la variation de stock est rapportée à l'activité des matières en suspensions qui se sont accumulées au cours de la même période. La mise en œuvre de la méthode du  $^7\text{Be}$  dans la Scarpe a nécessité un suivi de terrain avec des campagnes de prélèvement toutes les 4-6 semaines pendant seize mois (15 campagnes).

Le flux annuel d'accumulation sédimentaire obtenu à l'aide du  $^7\text{Be}$  ( $0,2 - 0,5 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ ) reste du même ordre de grandeur que les flux de sédimentation déterminés à partir du  $^{137}\text{Cs}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . La méthode du  $^7\text{Be}$  est ainsi « validée » par deux autres méthodes de datation radioactive. Dans la Scarpe, les processus gouvernant la distribution du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments pendant 1 an sont donc similaires aux processus sédimentaires se déroulant sur les 20-30 dernières années. Les sédiments de surface sont soumis à une alternance de périodes de dépôt et d'érosion. Les flux maximaux de dépôt et d'érosion sont équivalents, soit  $\pm 0,4 - 0,5 \text{ g.cm}^{-2}$ ; ce qui correspond à une hauteur de dépôt/d'érosion d'environ 2 cm de sédiment brut.

Une étude de la spéciation du  $^7\text{Be}$  dans les sédiments pourrait permettre d'affiner les résultats en permettant de discuter le comportement du  $^7\text{Be}$  à l'interface eau-sédiment. En effet, nous avons mis en évidence dans la Scarpe la réduction des oxy-hydroxydes de fer et de

manganèse à l'interface eau-sédiment ; cette réduction diagénétique pourrait s'accompagner d'une remobilisation du  $^{7}\text{Be}$  si ce dernier est associé aux oxy-hydroxydes de Fe et de Mn (Merril *et al.*, 1960). Dans ce cas, le stock de  $^{7}\text{Be}$  dans les sédiments serait sous-estimé.

L'étude des facteurs hydrologiques et climatiques a contribué en partie à comprendre le comportement dynamique des sédiments de surface. La principale difficulté dans l'étude des processus d'érosion est liée à son caractère aléatoire. Il en résulte une variabilité dans la dynamique sédimentaire en fonction du site sédimentaire étudié. La Scarpe est une rivière canalisée dont le débit est régulé et l'hydrologie du cours d'eau dépend en partie du fonctionnement des ouvrages hydrauliques. Une étude complémentaire sur le fonctionnement hydrologique permettrait de préciser les conditions nécessaires au dépôt ou à l'érosion des sédiments. Nous suggérons en outre d'utiliser la hauteur d'eau plutôt que le débit dans la caractérisation des écoulements.

La méthode développée ici dans une rivière pourrait s'appliquer à d'autres systèmes aquatiques. Le  $^{7}\text{Be}$  peut apporter des éléments de réponse concernant la dynamique d'envasement dans les réservoirs naturels ou artificiels, ou dans les estuaires. L'utilisation du  $^{7}\text{Be}$  peut aussi permettre de déterminer la quantité de sédiments déposés dans les plaines d'inondations.

L'analyse du  $^{7}\text{Be}$  dans les matrices sédimentaires est relativement facile (pas de traitement radiochimique d'extraction). En revanche, la mise en œuvre de son utilisation peut paraître contraignante (suivi de terrain) et onéreuse (analyse en spectrométrie gamma).

La quantification des flux de contaminants métalliques à l'interface eau-sédiment résulte du couplage entre la dynamique sédimentaire à court terme et les teneurs en métaux (i) dans les sédiments pour le transfert par voie particulaire (dépôt/érosion), et (ii) dans les eaux interstitielles pour le transfert par voie dissoute (diffusion, advection).

Le bilan sédimentaire pour les polluants métalliques montre que l'accumulation des contaminants particulaires dans les sédiments de la Scarpe est le processus dominant (par rapport à l'érosion). Les sédiments se comportent donc comme des pièges vis-à-vis de la contamination métallique particulaire. Cependant, lorsque les sédiments sont soumis à des périodes d'érosion, ils se comportent comme une source de contamination pour l'eau.

C'est une méthode sophistiquée reposant sur la diffusion des espèces dans un hydrogel qui a permis d'échantillonner les métaux contenus dans les eaux interstitielles (DET). Les résultats montrent que le transport des contaminants métalliques (Zn, Pb, Cd, Cu) par voie particulaire est plus efficace que le transport par voie dissoute (diffusion et advection). La diffusion des contaminants métalliques à travers l'interface eau-sédiment a été ponctuellement observée en juillet 2006 et uniquement pour le Cu. Pour le Cu, la contribution par remobilisation diagénétique est égale à 15 % du flux de dépôt du Cu. Dans les sédiments de surface, la majorité du Zn, du Cd et du Pb est représentée par la fraction réactive (> 80 %). Elle est donc susceptible de repasser en solution dans l'eau à la suite de perturbations biogéochimiques à la surface des sédiments. Ces contaminants étant très certainement associés aux sulfures, lors de la remise en suspension/l'érosion des sédiments, la modification des paramètres physico-chimiques (Eh typiquement) peut induire une déstabilisation des sulfures métalliques et provoquer la remobilisation des contaminants qui leurs étaient associés.

L'étude des propriétés physico-chimiques des sédiments a permis d'identifier les mécanismes impliqués dans les échanges des métaux à l'interface eau-sédiment. Dans les sédiments de la Scarpe, les réactions diagénétiques de dégradation de la matière organique se mettent rapidement en place : (i) consommation de l'oxygène (quelques millimètres) et (ii) réduction des oxy-hydroxydes de Fe-Mn (quelques centimètres). L'observation des profils verticaux des concentrations du Mn a mis en évidence des processus de mélange (bioturbation) dans les sédiments de surface. Parfois, la réduction des oxy-hydroxydes de Fe et de Mn s'accompagne d'une remobilisation du Zn, Pb, Cd et Cu et, localement, dans la colonne sédimentaire, l'activité microbienne est capable d'induire une déstabilisation des sulfures qui se traduit aussi par une remobilisation des contaminants métalliques. La

géochimie du soufre et du fer dans les sédiments mérite une attention particulière et une étude approfondie dans la mesure où elle est capable de contrôler la mobilité des métaux dans les sédiments.

La diagénèse des sédiments étant un processus complexe où l'activité bactérienne joue un rôle essentiel, l'étude des échanges à l'interface eau-sédiment nécessite également (en perspective de ce travail) une approche pluridisciplinaire avec une plus grande ouverture vers la microbiologie.

Dans le travail de thèse, le milieu d'investigation s'est limité au compartiment sédimentaire. Les échanges entre l'eau et les sédiments sont vus du point de vue des sédiments. Pourtant, le comportement des métaux à l'interface eau-sédiment s'inscrit dans un cycle : les métaux une fois ré-introduits dans la colonne d'eau sous forme dissoute ou particulaire peuvent se ré-adsorber aux particules et se re-déposer. Le travail de thèse n'a pas permis d'aborder la question du devenir des métaux dans la colonne d'eau. Une partie du projet auquel est associée la thèse a cependant été consacrée à l'étude du transfert des métaux entre phases dissoute, colloïdale et particulaire dans la colonne d'eau à partir de prélèvements *in situ*. Les résultats tirés de ce travail pourront compléter l'étude du devenir des métaux dans un système aquatique.

La principale difficulté à laquelle se heurte l'étude du devenir des contaminants dans un cours d'eau est liée à la nature même des substrats étudiés : les sédiments. Le milieu naturel est assurément évolutif, les facteurs de variabilité sont donc nombreux et interdépendants. Dans cette étude, nous avons privilégié une approche de terrain. Le projet de recherche auquel est associé le travail de thèse s'est aussi intéressé au rôle des processus physiques (décantation, cohésion, coagulation) sur la remobilisation des polluants métalliques associés au sédiment et leur (re)-distribution entre phases dissoute et particulaire au sein d'un système sédiment/colonne d'eau reconstitué en laboratoire. Pour la suite, le couplage de l'ensemble des résultats tirés de l'expérience et du terrain constituera une étape importante dans la compréhension des mécanismes impliqués dans le transfert des métaux dans un milieu aquatique en relation avec la dynamique des particules.

Pour conclure, les travaux de recherche menés dans cette thèse montrent la dualité du rôle des sédiments contaminés : les sédiments se comportent à la fois comme une source et un piège pour les contaminants métalliques. Et, cette notion de source et de piège est dépendante de l'échelle temporelle à laquelle les processus sont observés. Les sédiments constituent un environnement dynamique où les processus physiques, chimiques et biologiques sont en interaction permanente et se déroulent sur des échelles spatio-temporelles variables. Dans la Scarpe, la contamination des sédiments est liée à des sources historiques de pollution. Le refoulement des eaux de ruissellement par une station de relevage contribue activement à dégrader la qualité du milieu aquatique. Ce constat illustre le problème plus général de la contamination des eaux de ruissellement. Il importe de limiter leur déversement dans les milieux récepteurs sans traitement préalable et, au-delà de ce problème, de s'intéresser aux causes de cette contamination. On peut signaler qu'une prise de conscience est amorcée avec le projet d'une directive cadre européenne consacrée à la protection des sols.

Enfin, l'étude du caractère dynamique des sédiments pollués dans une rivière apporte des éléments de compréhension supplémentaires pour l'établissement de stratégie dans la gestion des cours d'eau.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Alkhatib E., Castor K. (2000) Parameters influencing sediments resuspension and the link to sorption of inorganic compounds. *Environmental Monitoring and Assessment*, **65**, pp. 531-546.
- Allen H.E. (1994) Partitioning of toxic metals in natural water-sediment systems. In: *Transport and Transformation of Contaminants Near the Sediment-Water Interface*, ed. DePinto J.V., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers, pp. 115-128.
- Aller R.C., Heilbrun C., Panceza C., Zhu Z., Baltzer F. (2004) Coupling between sedimentary dynamics, early diagenetic processes, and biogeochemical cycling in the Amazon-Guianas mobile mud belt: coastal French Guiana. *Marine Geology*, **208**, pp. 331-360.
- Al-Masri M.S., Aba A., Khalil H., Al-Hares Z. (2002) Sedimentation rates and pollution history of a dried lake: Al-Oteibeh Lake. *Science of the Total Environment*, **293**, pp. 177-189.
- Alonso-Hernandez C.M., Diaz-Asencio M., Munoz-Caravaca A., Delfanti R., Papucci C., Ferretti O., Crovato C. (2006) Recent changes in sedimentation regime in Cienfuegos Bay, Cuba, as inferred from  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  vertical profiles. *Continental Shelf Research*, **26**, pp. 153-167.
- Argese E., Ramieri E., Bettiol C., Pavoni B., Chiozzotto E., Sfriso A. (1997) Pollutant exchange at the water/sediment interface in the Venice canals. *Water, Air and Soil Pollution*, **99**, pp. 255-263.
- Achterberg E.P., Van den Berg C. M. G., Boussemart M., Davison W. (1997) Speciation and cycling of trace metals in Esthwaite Water: a productive English lake with seasonal deep-water anoxia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **61**, pp. 5233-5253.
- Audry S., Blanc G., Schäfer J. (2004a) Cadmium transport in the Lot-Garonne River system (France) - temporal variability and a model for flux estimation. *Science of the Total Environment*, **319**, pp. 197-213.
- Audry S., Schäfer J., Blanc G., Jouanneau J.-M. (2004b) Fifty-year sedimentary record of heavy metal pollution (Cd, Zn, Cu, Pb) in the Lot River reservoirs (France). *Environmental Pollution*, **132**, pp. 413-426.
- Balistrieri L., Murray J. (1986) The surface chemistry of sediments from the Panama Basin: the influence of Mn oxides on metal adsorption. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **50**, pp. 2235-2243.
- Barbanti A., Bergamini M.C., Frascari F., Miserochi S., Ratta M., Rosso G. (1995) Diagenetic processes and nutrient fluxes at the sediment-water interface, Northern Adriatic Sea, Italy. *Marine Freshwater Research*, **46**, pp. 55-67.
- Baskaran M., Swarzenski P.W. (2007) Seasonal variations on the residence times and partitioning of short-lived radionuclides ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^7\text{Be}$ , and  $^{210}\text{Pb}$ ) and depositional fluxes of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in Tampa Bay, Florida. *Marine Chemistry*, **10**, pp. 27-42.
- Baskaran M., Santschi P. H. (1993) The role of particles and colloids in the transport of radionuclides in coastal environments of Texas. *Marine Chemistry*, **43**, pp. 95-114.
- Benninger L.K., Aller R.C., Cochran J.K., Turekian K.K. (1979) Effects of biological sediment mixing on the  $^{210}\text{Pb}$  chronology and trace metal distribution in a long island sound sediment core. *Earth and Planetary science Letters*, **43**, pp. 241-259.
- Benninger L.K., Aller R.C., Cochran J.K., Turekian K.K. (1979) Effects of biological sediment mixing on the  $^{210}\text{Pb}$  chronology and trace metal distribution in a long island sound sediment core. *Earth and Planetary science Letters*, **43**, pp. 241-259.
- Berner R.A. (1980) Early diagenesis. A theoretical approach. Princeton University Press. 241 p.
- Billon G., Ouddane B., Recourt P., Boughriet A. (2002) Depth variability and some geochemical characteristics of Fe, Mn, Ca, Mg, Sr, S, P, Cd and Zn in anoxic sediments from Authie Bay (Northern France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **55**, pp. 167-181.
- Billon G. (2001) Géochimie des métaux et du soufre dans les sédiments des estuaires de la Seine et de l'Authie. Thèse de Doctorat, Université de Lille 1, 200 p.
- Blasco J., Saenz V., Gomez-Parra A. (2000) Heavy metals fluxes at the sediment-water interface of three coastal ecosystems from south-west of the Iberian Peninsula. *Science of the Total Environment*, **247**, pp. 189-199.
- Bloesh J. (1994) A review of methods used to measure sediment resuspension. *Hydrobiologia*, **284**, pp. 13-18.

- Bloom N.S., Crecelius E.A. (1983) Solubility behaviour of atmospheric  $^7\text{Be}$  in the marine environment. *Marine Chemistry*, **12**, pp. 323-331.
- Bogusz D. (1999) Management of contaminated sediments in France. An integrated pragmatic approach. In: *Characterisation and treatment of sediments*. 12<sup>th</sup> International Harbour Congress, Anvers, Belgique, 15-17 sept., pp. 387-393.
- Bonniwell E.C., Matisoff G., Whiting P.J. (1999) Determining the times and distances of particle transit in a mountain stream using fallout radionuclides. *Geomorphology*, **27**, pp. 75-92.
- Bonté P., Mouchel J.M., Thomas A.J., Le Cloarec M.F., Dumoulin J.P., Sogon S., Tessier L. (2000) Buffering of suspended sediment transport in lowland river during low water stages: quantification in river Seine using environmental radionuclides. *Acta Geologica Hispanica*, **35**, pp. 339-355.
- Bonté P., Thomas A., Mouchel J.-M., Le Cloarec M.-F., Sogon S., Tessier L. (1999) Temps de transit des particules dans le réseau hydrographique: l'apport des traceurs isotopiques "naturels". Rapport PIREN-SEINE, 22 p.
- Bonté P., Sogon S., Meybeck M (1998). Marqueurs radioactifs et matières en suspension. Rapport PIREN-SEINE, 15 p.
- Boudreau B.P. (1996) The diffusive tortuosity of fine-grained unlithified sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **60**, pp. 3139-3142.
- Bourg A.C.M., Loch J.P.G. (1995) Mobilization of heavy metals as affected by pH and redox conditions. In: *Biogeodynamics of pollutants in soils and sediments. Risk assessment of delayed and non-linear responses*, ed. Salomons W., Stigliani W.M., Springer, 352 p.
- Boust D., Fischer J.-C., Ouddane B., Petit F. et Wartel M. (1999) Fer et manganèse: réactivités et recyclages. Programme scientifique Seine-Aval, 39 p.
- Brügmann L. (1995) Metals in sediments and suspended matter of the river Elbe. *Science of the Total Environment*, **159**, pp. 53-65.
- Caetano M., Madureira M.-J., Vale C. (2003) Metal remobilisation during resuspension of anoxic contaminated sediment: short-term laboratory study. *Water, Air, and Soil Pollution*, **143**, pp. 23-40.
- Caille N, Tiffreau C., Leyval C., Morel J.-L. (2003) Solubility of metals in an anoxic sediment during prolonged aeration. *Science of the Total Environment*, **301**, pp. 239-250.
- Caillet S., Arpagaus P., Monna F., Dominik J. (2001) Factors controlling  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland. *Journal of Environmental Radioactivity*, **53**, pp. 241-256.
- Calmano W., Hong J., Förstner U. (1993) Binding and mobilization of heavy metals in contaminated sediments affected by pH and redox potential. *Water and Science Technology*, **28**, pp. 223-235.
- Canfield D.E., Boudreau B.P., Mucci A., Gundersen J.K. (1998) The early diagenetic formation of organic sulfur in the sediments of Mangrove Lake, Bermuda. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **62**, pp. 767-781.
- Canfield D.E., Thamdrup B., Hansen J.W. (1993) The anaerobic degradation of organic matter in Danish coastal sediments: Iron reduction, manganese reduction, and sulfate reduction. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **57**, pp. 3867-3883.
- Cantwell M.G., King J.W., Burgess R.M., Appleby P.G. (2007) Reconstruction of contaminant trends in a salt wedge estuary with sediment cores dated using a multiple proxy approach. *Marine Environmental Research*, **64**, pp. 225-246.
- Cantwell M.G., Burgess R.B. (2004) Variability of parameters measured during the resuspension of sediments with a particle entrainment simulator. *Chemosphere*, **56**, pp. 51-58.
- Canuel E.A., Martens C.S., Benninger L.K. (1990) Seasonal variations in  $^7\text{Be}$  activity in the sediments of Cape Lookout Bight, North Carolina. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **54**, pp. 237-245.
- Caplat C., Texier H., Barillier D., Lelievre C. (2005) Heavy metals mobility in harbour contaminated sediments: the case of Port-en-Bessin. *Marine Pollution Bulletin*, **50**, pp. 504-511.
- Carignan R. (1984) Interstitial water sampling by dialysis: methodological notes. *Limnology and Oceanography*, **29**, pp. 667-670.
- Cazala C., Reyss J.-L., Decossas J.-L., Royer A. (2003) Improvement in the determination of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{228-234}\text{Th}$ ,  $^{226-228}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^7\text{Be}$  by  $\gamma$  spectrometry on evaporated fresh water. *Environmental Science of Technology*, **37**, pp. 4990-4993.
- Chillrud S.N., Hemming S., Shuster E.L., Simpson H.J., Bopp R.F., Ross J.M., Pederson D.C., Chaky D.A., Tolley L.-R., Estabrooks F. (2003) Stable lead isotopes Hudson River sediment cores:

- implications for improved time stratigraphy and transport processes. *Chemical Geology*, **199**, pp. 53-70.
- Ciffroy P., Reyss J.-L., Siclet F. (2003) Determination of the residence time of suspended particle in the turbidity maximum of the Loire estuary by  $^7\text{Be}$  analysis. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **57**, pp. 553-568.
- Clifton R.J., Watson P.G., Davey J.T., Frickers P.E. (1995) A study of processes affecting the uptake of contaminants by intertidal sediments, using the radioactive tracers:  $^7\text{Be}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$ . *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **41**, pp. 459-474.
- CNRSSP 07/01. Reconnaissance assistée de sites pollués par utilisation conjointe de mesures de terrain et de traitements géostatistiques - partie 1. Conditions d'utilisation des mesures de terrain. Rapport final OUTRAGE. 105 p., 2007.
- CNRSSP 01/23. MESDERIC Devenir des polluants métalliques associés aux sédiments contaminés: Impact des phénomènes de dépôt et de remobilisation sur le transfert des métaux dans la colonne d'eau. 2001.
- CNRSSP 01/28. Impact d'une opération de curage sur un système aquatique. Cas de la rivière canalisée Scarpe moyenne. Mobilité du Pb, Zn, Cu, Cd, Hg et des PCB. 2001.
- CNRSSP 98/20. Caractérisation du spectre géochimique naturel de la région Nord-Pas-de-Calais autour de sites industriels liés à l'industrie charbonnière - Résultats d'analyse et interprétation. 37 p., 1998.
- CNRSSP 97/13. Influence de la matière organique sur la mobilité des métaux. 21 p., 1997.
- Cochran J.K., Aller R.C. (1979) Particle reworking in sediments from New York Bight Apex: Evidence from  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  disequilibrium. *Estuarine and Coastal Marine Science*, **9**, pp. 739-747.
- Cooper D.C., Morse J.W. (1998) Extractability of metal sulfide minerals in acidic solutions: application to environmental studies of trace metal contamination within anoxic sediments. *Environmental Science and Technology*, **32**, pp. 1076-1078.
- Corbett D.R., McKee B., Duncan D. (2004) An evaluation of mobile mud dynamics in the Mississippi River deltaic region. *Marine Geology*, **209**, pp. 91-112.
- Cornett R.J., Chant L.A., Risto B.A., Bonvin E. (1994) Identifying resuspended particles using isotope ratios. *Hydrobiologia*, **284**, pp. 69-77.
- Davison W., Fones G., Harper M., Teasdale P., Zhang H. (2000) Dialysis, DET and DGT : in situ diffusional techniques for studying water, sediments and soils. In: *In Situ Chemical Analysis in Aquatic Systems*, ed. J. Buffle, G. Horvai, Wiley, pp. 495-569.
- Davison W., Zhang H., Grime G.W. (1994) Performance characteristics of gel probes used for measuring the chemistry of pore waters. *Environmental Science and Technology*, **28**, pp. 1623-1632.
- Davison W., Zhang H. (1994). In situ speciation measurements of trace components in natural waters using thin-film gels. *Nature*, **367**, pp. 546-548.
- Davison W., Grime G.W., Morgan J.A., Clarke K. (1991) Distribution of dissolved iron in sediment pore waters at submillimetre resolution. *Nature*, **352**, pp. 323-325.
- DeMaster D.J., McKee B.A., Nittrouer C.A., Brewster D.C., Biscaye P.E. (1985) Rates of sediment reworking at the Hebble Site based on measurements of Th-234, Cs-137 and Pb-210. *Marine Geology*, **66**, pp. 133-148.
- DePinto J.V., Lick W., Paul J.F. (1994a) Introduction. In: *Transport and Transformation of Contaminants near the Sediment-Water Interface*. Ed. DePinto J.V., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers. 351 p.
- DePinto J.V., Theis T.L., Young T.C., Thompson Leach S. (1994b) Predicting metals partitioning during resuspension events. In *Transport and Transformation of Contaminants near the Sediment-Water Interface*. Ed. DePinto J.V., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers. 351 p.
- Dibb J. E., Rice D.L. (1989a) Temporal and spatial distribution of Beryllium-7 in the sediments of Chesapeake Bay. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **28**, pp. 395-406.
- Dibb J. E., Rice D.L. (1989b) The geochemistry of Beryllium-7 in Chesapeake Bay. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **28**, pp. 379-394.
- Di Gregorio D.E., Fernandez Niello J.O., Huck H., Somacal H., Curutchet G. (2007)  $^{210}\text{Pb}$  dating of sediments in a heavily contaminated drainage channel to the La Plata estuary in Buenos Aires, Argentina. *Applied Radiation and Isotopes*, **65**, pp. 126-130.



- Di Toro D.M., Mahony J.D., Hansen D.J., Scott K.J., Hicks M.B., Mayr S.M., Redmond M.S. (1990) Toxicity of cadmium in sediments: the role of acid volatile sulfide. *Environmental Toxicology and Chemistry*, **9**, pp. 1487-1502.
- Docekalova H., Clarisse O., Salomon S., Wartel M. (2002) Use of constrained DET probe for a high-resolution determination of metals and anions distribution in the sediment pore water. *Talanta*, **57**, pp. 145-155.
- Dominik J., Schuler C., Santschi P.H. (1989) Residence times of  $^{234}\text{Th}$  and  $^7\text{Be}$  in Lake Geneva. *Earth Planetary Science Letters*, **93**, pp. 345-358.
- Dominik J., Burrus D., Vernet J.-P. (1987) Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed. *Earth and Planetary Science Letters*, **84**, pp. 165-180.
- Dong D., Derry L.A., Lion L.W. (2003) Pb scavenging from a freshwater lake by Mn oxides in heterogeneous surface coating materials. *Water Research*, **37**, pp. 1662-1666.
- Dong D., Nelson Y.M., Lion L.W., Shuler M.L., Ghiorse W.C. (2000) Adsorption of Pb and Cd onto metal oxides and organic material in natural surface coatings as determined by selective extractions: new evidence for the importance of Mn and Fe oxides. *Water Research*, **34**, pp. 427-436.
- Droppo I.G., Walling D.E., Ongley E.D. (2000) The influence of floc size, density and porosity on sediment and contaminant transport. In: *The Role of Erosion and Sediment Transport in Nutrient and Contaminant Transfer*. IAHS Publ., **263**, pp. 141-148.
- Dupont J.-P., Guézennec L., Lafite R., Le Hir P., Lesueur P. (2001) Matériaux fins: le cheminement des particules en suspension. Programme scientifique Seine-Aval, 39 p.
- Edgington D.N., Val Klump J., Robbins J.A., Kusner Y.S., Pampura V.D., Sandimirov I.V. (1991) Sedimentation rates, residence times and radionuclide inventories in Lake Baikal from  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in sediment cores. *Nature*, **350**, pp. 601-604.
- Eggleton J., Thomas K.V. (2004) A review of factors affecting the release and bioavailability of contaminants during sediment disturbance events. *Environmental International*, **30**, pp. 973-980.
- Evans G., Howarth R.J., Nombela M.A. (2003) Metals in the sediments of Ensenada de San Simon (inner Ria de Vigo), Galicia, NW Spain. *Applied Geochemistry*, **18**, pp. 973-996.
- Fan W., Wang W.-X., Chen J., Li X., Yen Y.-F. (2002) Cu, Ni, and Pb speciation in surface sediments from contaminated bay of northern China. *Marine Pollution Bulletin*, **44**, pp. 816-822.
- Feng J., Yang Z., Niu J., Shen Z. (2007) Remobilization of polycyclic aromatic hydrocarbons during the resuspension of Yangtze River sediments using a particle entrainment simulator. *Environmental Pollution*, **149**, pp. 193-200.
- Feng H., Han X., Zhang W., Yu L. (2004) A preliminary study of heavy metal contamination in Yangtze River intertidal zone due to urbanization. *Marine Pollution Bulletin*, **49**, pp. 910-915.
- Feng H., Cochran J.K., Hirschberg D.J. (1999b)  $^{234}\text{Th}$  and  $^7\text{Be}$  as tracers for transport and sources of particle-associated contaminants in the Hudson River Estuary. *Science of the Total Environment*, **237/238**, pp. 401-418.
- Feng H., Cochran J.K., Hirschberg D.J. (1999c)  $^{234}\text{Th}$  and  $^7\text{Be}$  as tracers for the transport and dynamics of suspended particles in a partially mixed estuary. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **63**, pp. 2487-2505.
- Feng H., Cochran J.K., Hirschberg D.J. (1999a)  $^{234}\text{Th}$  and  $^7\text{Be}$  as tracers for the sources of particles to the turbidity maximum of the Hudson River Estuary. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **49**, pp. 629-645.
- Fitzgerald S.A., Val Klump J., Swarzenski P.W., Mackenzie R.A., Richards K.D. (2001) Beryllium-7 as a tracer of short-term sediment deposition and resuspension in the Fox River, Wisconsin. *Environmental Science Technology*, **35**, pp. 300-305.
- Fones G.R., Davison W., Hamilton-Taylor J. (2004) The fine-scale remobilization of metals in the surface sediment of the North-East Atlantic. *Continental Shelf Research*, **24**, pp. 1485-1504.
- Fones G.R., Davison W., Holby O., Jorgensen B.B., Thamdrup B. (2001) High-resolution metal gradients measured by in situ DGT/DET deployment in Black Sea sediments using an autonomous benthic lander. *Limnology and Oceanography*, **4**, pp. 982-988.
- Fones G.R., Davison W., Grime G.W. (1998) Development of constrained DET for measurements of dissolved iron in surface sediments at sub-mm resolution. *Science of the Total Environment*, **221**, pp. 127-137.
- Förstner U. (2004) Sediment dynamics and pollutant mobility in rivers: An interdisciplinary approach. *Lakes & Reservoirs: Research and Management*, **9**, pp. 25-40.

- Förstner U. (2004) Traceability of sediment analysis. *Trends in Analytical Chemistry*, **23**, pp. 217-236.
- Förstner U. (1995) Non-linear release of metals from aquatic sediments. In: *Biogeochemistry of pollutants in soils and sediments. Risk assessment of delayed and non-linear responses*, ed. Salomons W., Stigliani W.M., Springer, 352 p.
- Gabelle C. (2006) Etude de la contamination des sédiments par les métaux dans les canaux et rivières du nord de la France. Thèse de Doctorat, Université de Lille 1, 206 p.
- Gao Y., Leermakers M., Elskens M., Billon G., Ouddane B., Fischer J.-C., Baeyens W. (2007) High resolution profiles of thallium, manganese and iron assessed by DET and DGT techniques in riverine sediment pore waters. *Science of the Total Environment*, **373**, pp. 526-533.
- Gao Y., Leermakers M., Gabelle C., Divis P., Billon G., Ouddane B., Fischer J.-C., Wartel M., Baeyens W. (2006) High-resolution profiles of trace metals in the pore waters of riverine sediments assessed by DET and DGT. *Science of the Total Environment*, **362**, pp. 266-277.
- Garcia-Bravo et al. (2007) Historical record of high mercury contamination in the Babeni reservoir (Olt River, Romania). *Geophysical Research Abstracts*, **9**, 11240.
- Gardner W.D. (1980) Field assessment of sediment traps. *Journal of Marine Research*, **38**, pp. 41-52.
- Gerritse R.G. (1999) Sulphur, organic carbon and iron relationships in estuarine and freshwater sediments: effects of sedimentation rate. *Applied Geochemistry*, **14**, pp. 41-52.
- Gibbs R.J. (1973) Mechanisms of trace metal transport in rivers. *Science*, **180**, pp. 71-73.
- Giffin D., Corbett D.R. (2003) Evaluation of sediment dynamics in coastal systems via short-lived radioisotopes. *Journal of Marine Systems*, **42**, pp. 83-96.
- Gouzy A., Boust D., Connan O., Billon G., Leon Vintro L., Lucey J., Bowden L., Agarande M., Lesourd S., Lesueur P., Klein A., Kershaw P.J., Mitchell P.I. (2005) Diagenetic reactivity of the plutonium in marine anoxic sediments (Cambrian mud patch - eastern Irish Sea). *Radioprotection*, **40**, pp. 541-547.
- Gratiot N. (2001) Etude expérimentale de la formation des couches de crème de vase turbulentes. Thèse de Doctorat, Université de Grenoble 1, 178 p.
- Grosbois C., Meybeck M., Horowitz A., Ficht A. (2005) The spatial and temporal trends of Cd, Cu, Hg, Pb and Zn in Seine River floodplain deposits (1994-2000). *Science of the Total Environment*, **356**, pp. 22-37.
- Grousset F.E., Jouanneau J.M., Castaing P., Lavaux G., Latouche C. (1999) A 70 year record of contamination from industrial activity along the Garonne River and its tributaries (SW France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **48**, pp. 401-414.
- He Q., Walling D.E. (1996) Interpreting particle size effects in the adsorption of  $^{137}\text{Cs}$  and unsupported  $^{210}\text{Pb}$  by mineral soils and sediments. *Journal of Environmental Radioactivity*, **30**, pp. 117-137.
- Haag I., Kern U., Westrich B. (2001) Erosion investigation and sediment quality measurements for a comprehensive risk assessment of contaminated aquatic sediments. *Science of the Total Environment*, **266**, pp. 249-257.
- Haag I., Kern U., Westrich B. (2000) Assessing in-stream erosion and contaminant transport using the end-member mixing analysis (EMMA). In: *The Role of Erosion and Sediment Transport in Nutrient and Contaminant Transfer*, IAHS Publ., **263**, pp. 293-300.
- Hamilton-Taylor J., Davison W., Morfett K. (1996) The biogeochemical cycling of Zn, Cu, Fe, Mn, and dissolved organic C in a seasonally anoxic lake. *Limnology and Oceanography*, **41**, pp. 408-418.
- Hamilton-Taylor J., Davison W., Morfett K. (1996) A laboratory study of the biogeochemical cycling of Fe, Mn, Zn and Cu across the sediment-water interface of a productive lake. *Aquatic Sciences*, **58**, pp. 191-209.
- Hamilton-Taylor J., Giusti L., Davison W., Tych W., Hewitt C.N. (1997) Sorption of trace metals (Cu, Pb, Zn) by suspended lake particles in artificial (0,005 M NaNO<sub>3</sub>) and natural (Esthwaite Water) freshwater. *Colloids and Surfaces. A: Physicochemical and Engineering Aspects*, **120**, pp. 205-219.
- Harper M.P., Davison W., Tych W. (1997) Temporal, spatial, and resolution constraints for in situ sampling devices using diffusional equilibration: dialysis and DET. *Environmental Science and Technology*, **31**, pp. 3110-3119.
- Hawley N., Robbins J.A., Eadie B.J. (1986) The partitioning of  $^7\text{Be}$  in fresh water. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **50**, pp. 1127-1131.

- He Q., Walling D.E., Owens P.N. (1996) Interpreting the  $^{137}\text{Cs}$  profiles observed in several small lakes and reservoirs in southern England. *Chemical Geology*, **129**, pp. 115-131.
- Hesslein R.H. (1976) An in situ sampler for close interval pore water studies. *Limnology and Oceanography*, **21**, pp. 912-914.
- Hirschberg D.J., Chin P., Feng H., Cochran J.K. (1996) Dynamics of sediment and contaminant transport in the Hudson River Estuary: Evidence from sediment distributions of naturally occurring radionuclides. *Estuaries*, **19**, pp. 931-949.
- Holmström H., Ljungberg J., Öhlander B. (2000) The character of suspended and dissolved phases in the water cover of the flooded mine tailings at Stekenjokk, northern Sweden. *Science of Total Environment*, **247**, pp. 15-31.
- Horowitz A.J. (2000) NASQAN: the design and implementation of a large-river suspended sediment and trace element flux programme. In: *The Role of Erosion and Sediment Transport in Nutrient and Contaminant Transfer*, IAHS Publ., **263**, pp. 3-18.
- Huang K.-M., Lin S. (2003) Consequences and implication of heavy metal spatial variations in sediments of the Keelung River drainage basin, Taiwan. *Chemosphere*, **53**, pp. 1113-1121.
- Huerta-Diaz M.A., Tessier A., Carignan R. (1997) Geochemistry of trace metals associated with reduced sulfur in freshwater sediments. *Applied Geochemistry*, **13**, pp. 213-233.
- Huerta-Diaz M.A., Carignan R., Tessier A. (1993) Measurement of trace metals associated with acid volatile sulfides and pyrite in organic freshwater sediments. *Environmental Science and Technology*, **27**, pp. 2367-2372.
- Huerta-Diaz M.A., Morse J.W. (1992) Pyritization of trace metals in anoxic marine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **56**, pp. 2681-2702.
- Huerta-Diaz M.A., Morse J.W. (1990) A quantitative method for determination of trace metal concentrations in sedimentary particles. *Marine Chemistry*, **29**, pp. 119-144.
- Huguet S., Bert V., Laboudigue A., Isaure M.P., Sarret G. (2007) Cd localization and speciation in a contaminated sediment and in the Zn and Cd hyperaccumulating plant *Arabidopsis halleri*. In: *Biogeochemistry of trace elements: environmental protection, remediation and human health*, ed. Zhu Y, Lepp N., Naidu R., Tsinghua Press, Beijing, 1036 p.
- Hutchinson S.M., Rothwell J.J. (2007) Mobilisation of sediment-associated metals from historical Pb working sites on the River Sheaf, Sheffield, UK. *Environmental Pollution*, **155**, pp. 61-71.
- Inthorn M., Rutgers van der Loeff M., Zabel M. (2006) A study particle exchange at the sediment-water interface in the Benguela upwelling area based on  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  disequilibrium. *Deep-Sea Research I*, **53**, pp. 1742-1761.
- Isaure M.-P., Manceau A., Geoffroy N., Laboudigue A., Tamura N., Marcus M.A. (2005) Zinc mobility and speciation in soil covered by contaminated dredged sediment using micrometer-scale and bulk-averaging X-ray fluorescence, absorption and diffraction techniques. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **69**, pp. 1173-1198.
- Isaure M.-P., Laboudigue A., Manceau A., Sarret G., Tiffreau C., Trocellier P., Lamble G., Hazemann J.-L., Chateigner D. (2002) Quantitative Zn speciation in a contaminated dredged sediment by m-PIXE, m-SXRF, EXAFS spectroscopy and principal component analysis. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **66**, pp. 1549-1567.
- Isaure M.P., Laboudige A., Manceau A., Sarret G., Tiffreau C., Trocellier P. (2001) Characterisation of zinc in slags originated from a contaminated sediment by coupling  $\mu$ -PIXE,  $\mu$ -RBS,  $\mu$ -EXAFS and powder EXAFS spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **181**, pp. 598-602.
- Isaure M.-P. (2001) Spéciation et transfert du zinc dans un dépôt de sédiment de curage contaminé : évolution le long du profil pédologique. Thèse de Doctorat, Université de Grenoble 1, 321 p.
- Jenne E.A. (1995) Metal adsorption onto and desorption from sediments. II. Artifact effects. *Marine and freshwater research*, **46**, pp. 1-18.
- Jeter H.W. (2000) Determining the ages of recent sediments using measurements of trace radioactivity. *Terra et Aqua*, **78**, pp. 21-28.
- Jones C., Lick W. (2001) Sediment erosion rates: their measurement and use in modeling. ASCE Conference on Environmental Dredging.
- Kabata-Pendias, A. et H. Pendias (1992) *Trace elements in soils and plants*, 2<sup>nd</sup> ed., CRC Press, Boca Raton, Florida, 365 p.
- Kern U., Westrich B. (1997) Sediment budget analysis for river reservoirs. *Water, Air and Soil Pollution*, **99**, pp. 105-112.

- Kersten M., Förstner U. (1986) Chemical fractionation of heavy metals in anoxic estuarine and coastal sediments. *Water Science and Technology*, **18**, pp. 121-130.
- Klingbeil A., Sommerfield C.K. (2005) Latest Holocene evolution and human disturbance of a channel segment in the Hudson River Estuary. *Marine Geology*, **218**, pp. 135-153.
- Kozerski H.-P. (1994) Possibilities and limitations of sediment traps to measure sedimentation and resuspension. *Hydrobiologia*, **284**, pp. 93-100.
- Krein A., Symader W. (2000) Pollutant sources and transport patterns during natural and artificial flood events in the Olewiger Bach and Kartelbornsbach basins, Germany. In: The role of erosion and sediment transport in nutrient and contaminant transfer, IAHS Publ., **263**, pp. 167-173.
- Krishnaswami S., Lal D., Martin J.M., Meybeck M. (1971) Geochronology of lake sediments. *Earth and Planetary Science Letters*, **11**, pp. 407-411.
- Krishnaswami S., Benninger L.K., Aller R.C., von Damm K.L. (1980) Atmospherically-derived radionuclides as tracers of sediment mixing and accumulation in near-shore marine and lake sediments: evidence from  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ , and  $^{239,240}\text{Pu}$ . *Earth and Planetary Science Letters*, **47**, pp. 307-318.
- Lacal J., da Silva M.P., Garcia R., Teresa Sevilla M., Procopio J.R., Hernandez L. (2003) Study of fractionation and potential mobility of metal sludge from pyrite mining and affected river sediments: changes in mobility over time and use of artificial ageing as a tool in environmental impact assessment. *Environmental Pollution*, **124**, pp. 291-305.
- Lal D., Malhotra P.K., Peters B. (1958) On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology. *Journal of Atmospheric and Terrestrial Physics*, **12**, pp. 306-328.
- Lambert G., Le Cloarec M.-F., Ardouain B., Le Roulley J.C. (1985/1986) Volcanic emission of radionuclides and magma dynamics. *Earth Planetary Science Letters*, **76**, pp. 185-192.
- Lambert G., Polian G., Sanak J., Ardouain B., Jegou A., Leroullay J.C. (1982) Cycle du radon et des ses descendants: application à l'étude des échanges troposphère-stratosphère. *Annual Geophysics*, **38**, pp. 497-531.
- Latimer J.S., Davis W.R., Keith D.J. (1999) Mobilization of PAHs and PCBs from in-place contaminated marine sediments during simulated resuspension events. *Estuarine Coastal and Shelf Science*, **49**, pp. 577-595.
- Lead J.R., Hamilton-Taylor J., Davison W., Harper M. (1999) Trace metal sorption by natural particles and coarse colloids. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **63**, pp. 1661-1670.
- Lead J. R., Hamilton-Taylor J., Davison W. (1998) The effect of sequential extractions of suspended particulate matter on trace metal sorption and microbial cell stability. *Science of Total Environment*, **209**, pp. 193-199.
- Le Cloarec M.-F., Bonté P.H., Lestel L., Lefèvre I., Ayrault S. (In Press, Corrected Proof) Sedimentary record of metal contamination in the Seine River during the last century. *Physics and Chemistry of the Earth*.
- Le Cloarec M.-F., Bonté P., Lefèvre I., Mouchel J.-M., Colbert S. (2007) Distribution of  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in watersheds of different scales in the Seine River basin: Inventories and residence times. *Science of the Total Environment*, **375**, pp. 125-139.
- Le Cloarec M.F., Ardouin B., Cachier H., Liousse C., Neveu S., Nho E.-Y. (1995)  $^{210}\text{Po}$  in Savanna Burning Plumes. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **22**, pp. 111-122.
- Lee S., Moon J.-W., Moon H.-S. (2003) Heavy metals in the bed and suspended sediments of Anyang River, Korea: implications for water quality. *Environmental Geochemistry and Health*, **25**, pp. 433-452.
- Leermakers M., Gao Y., Gabelle C., Lojen S., Ouddane B., Wartel M., Baeyens W. (2005) Determination of high resolution pore water profiles of trace metals in sediments of the Rupel River (Belgium) using DET (Diffusive Equilibrium in Thin films) and DGT (Diffusive Gradients in Thin Films) techniques. *Water, Air and Soil Pollution*, **166**, pp. 265-286.
- Legeleux F., Reyss J.-L., Schmidt S. (1994) Particle mixing rate in sediments of the northeast tropical Atlantic: Evidence from  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{228}\text{Th}_{\text{xs}}$  and  $^{234}\text{Th}_{\text{xs}}$  downcore distributions. *Earth and Planetary Science Letters*, **128**, pp. 545-562.
- Le Guern F., Le Roulley J.C., Lambert G. (1982) Condensation du polonium dans les gaz volcaniques. *Compte-Rendus de l'Académie des Sciences de Paris*, **294**, pp. 887-890.
- Lerman A. (1978) Chemical exchange across sediment-water interface. *Annual Review of Earth Planetary Science*, **6**, pp. 281-303.

- Leventhal J., Taylor C. (1990) Comparison of methods to determine degree of pyritization. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **54**, pp. 2621-2625.
- Li Y.-H., Gregory S. (1974) Diffusion of ions in sea water and deep-sea sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **88**, pp. 703-714.
- Li Y., Zhang B.Y., Huang G.H., Dong D., Hua X. (2003) Relationship between Pb/Cd adsorption and metal oxides on surface coatings at different depths in Lake Jingyuetan. *Hydrobiologia*, **494**, pp. 31-35.
- Li X., Shen Z., Wai O.W.H., Li Y.-S. (2001) Chemical forms of Pb, Zn and Cu in the sediment profiles of the Pearl River Estuary. *Marine Pollution Bulletin*, **42**, pp. 215-223.
- Li X., Shen Z., Wai O.W.H., Li Y.-S. (2000) Chemical partitioning of heavy metals contaminants in sediments of the Pearl River Estuary. *Chemical Speciation and Bioavailability*, **12**, pp. 17-25.
- Lick W. (1994) The flocculation, deposition, and resuspension of fine-grained sediment. In: Transport and Transformation of Contaminants near the Sediment-Water Interface, ed. DePinto J.J., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers, 351 p.
- Ligero R.A., Barrera M., Casas-Ruiz M., Sales D., Lopez-Aguayo F. (2002) Dating of marine sediments and time evolution of heavy metal concentrations in the Bay of Cadiz, Spain. *Environmental Pollution*, **118**, pp. 97-108.
- Lijklema L., Hans Aalderink R., Blom G., VanDuin E.H.S. (1994) Sediment transport in Shallow lakes-Two case studies related to eutrophication. In: Transport and Transformation of Contaminants near the Sediment-Water Interface, ed. DePinto J.J., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers, 351 p.
- Lors C., Tiffreau C., Laboudigue A. (2004) Effects of bacterial activities on the release of heavy metals from contaminated dredged sediments. *Chemosphere*, **56**, pp. 619-630.
- Lowri J.D. Hoxie D.C., Moreau E. (1987) Extreme levels of  $^{222}\text{Rn}$  and U in a private water supply. In: Radon, Radium and other radioactivity in ground water, ed. B. Graves, Lewis Chelsea, pp. 363-375.
- Lu X., Matsumoto E. (2005) Recent sedimentation rates derived from  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{137}\text{Cs}$  methods in Ise Bay, Japan. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **65**, pp. 83-93.
- Luoma, S.N., 1989. Can we determine the biological availability of sediment-bound trace elements? *Hydrobiologia*, **176/177**, pp. 379-396
- Man K.-W., Zheng J., Leung A.P.K., Lam P.K.S., Lam M.H.-W., Yen Y.-F. (2004) Distribution and behaviour of trace metals in the sediment and porewater of a tropical coastal wetland. *Science of the Total Environment*, **327**, pp. 295-314.
- Martens C.S. (1976) Control of methane sediment-water bubble transport by macroinfaunal irrigation in Cape Lookout Bight, North Carolina. *Science*, **192**, pp. 998-.
- Martin D., Ardouin B., Bergameti G., Carbonnelle J., Faivre-Pierret R., Lambert G., Le Cloarec M.F., Sennequier G. (1986) Geochemistry of sulfur in Mount Etna Plume. *Journal of Geophysical Research*, **91**, pp. 12,249-12,254.
- Martin J.-M., Meybeck M. (1979) Elemental mass-balance of material carried by major world rivers. *Marine Chemistry*, **7**, pp. 173-206.
- Masqué P., Cochran J.K., Hirschberg D.J., Dethleff D., Hebbeln D., Winkler A., Pfirman S. (2007) Radionuclides in Arctic sea ice: Tracers of sources, fates and ice transit times scales. *Deep-Sea Research I*, **54**, pp. 1289-1310.
- Mastalerz M., Souch C., Filipelli G.M., Dollar N.L., Perkins S.M. (2001) Anthropogenic organic matter in the Great Marsh of the Indiana Dunes National Lakeshore and its implications. *International Journal of Coal Geology*, **46**, pp. 157-177.
- Matisoff *et al.* (2005) The  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  ratio as an indicator of suspended sediment age or fraction new sediment in suspension. *Earth Surface Processes and Landforms*, **30**, pp. 1191-1201.
- Matisoff G., Bonniwell E.C., Whiting P.J. (2002) Soil erosion and sediments sources in an Ohio watershed using beryllium-7, cesium-137, and lead-210. *Journal of Environmental Quality*, **31**, pp. 54-61.
- Merrill J.R., Lyden E.F.X., Honda M., Arnold J.R. (1960) The sedimentary geochemistry of the beryllium isotopes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **18**, pp. 108-129.
- Metzger E., Simonucci C., Viollier E., Sarazin G., Prévot F., Elbaz-Poulichet F., Seidel J.-L., Jézéquel D. (2007) Influence of diagenetic processes in Thau lagoon on cadmium behaviour and benthic fluxes. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **72**, pp. 497-510.

- Meybeck M., Lestel L., Bonté P., Moilleron R., Colin J.-L., Rousselot O., Hervé D., de Pontevès C., Grosbois C., Thévenot D. (2007) Historical perspective of heavy metals contamination (Cd, Cr, Cu, Hg, Pb, Zn) in the Seine River basin (France) following a DPSIR approach (1950-005). *Science of the Total Environment*, **375**, pp. 204-231.
- McNeil J., Taylor C., Lick W. (1996) Measurements of erosion of undisturbed bottom sediments with depth. *Journal of Hydraulic engineering*, **122**, 316-324.
- Meyer J.S., Davison W., Sundby B., Oris J.T., Lauren D.J., Förstner U., Hong J., Crosby D.G. (1994) The effects of variable redox potentials, pH, and light on bioavailability in dynamic water-sediment environments. In: Bioavailability - physical, chemical, and biological interactions, ed. Hamelink J., Landrum P.F., Bergman H.L., Benson W.H., Lewis Publ., Boca Raton, pp. 155-170.
- Miao S., DeLaune R.D., Jugsujinda A. (2006) Influence of sediment redox conditions on release/solubility of metals and nutrients in a Louisiana Mississippi River deltaic plain freshwater lake. *Science of the Total Environment*, **371**, pp. 334-343.
- Mil-Homens M., Stevens R.L., Boer W., Abrantes F., Cato I (2006) Pollution history of heavy metals on the Portuguese shelf using  $^{210}\text{Pb}$ -geochronology. *Science of the Total Environment*, **367**, pp. 466-480.
- Moore W.S., DeMaster D.J., Smoak J.M., McKee B.A., Swarzenski P.W. (1995) Radionuclide tracers of sediment-water interactions on the Amazon shelf. *Continental Shelf Research*, **16**, pp. 645-665.
- Morris H.W., Livens F.R., Noland L., Hilton J. (1994) Determination of Thorium-234/Uranium-238 disequilibrium in freshwater systems. *Analyst*, **119**, pp. 2403-2406.
- Morse J.W., Luther III G.W. (1999) Chemical influences on trace metal-sulfide interactions in anoxic sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **63**, pp. 3373-3378.
- Morse J.W. (1994) Interactions of trace metals with authigenic sulfide minerals: implications for their bioavailability. *Marine Chemistry*, **46**, pp. 1-6.
- Motelica-Heino M., Naylor C., Zhang H., Davison W. (2003) Simultaneous release of metals and sulfide in lacustrine sediment. *Environmental Science and Technology*, **37**, pp. 4374-4381.
- Mouret, A.; Anschutz, P.; Chaillou, G.; Hyacinthe, C.; Deborde, J.; Lecroart, P.; Jorissen, F.; Schmidt, S.; Jouanneau, J.-M. (2007) Early diagenesis of manganese and the sediment accumulation rate. *Geophysical Research Abstracts*, **9**, 07830.
- Mullenbach B.L., Nittrouer C.A., Puig P., Orange D.L. (2004) Sediment deposition in a modern submarine canyon: Eel Canyon, northern California. *Marine Geology*, **211**, pp. 101-119.
- Mullenbach B.L., Nittrouer C.A. (2000) Rapid deposition of fluvial sediment in the Eel Canyon, northern California. *Continental Shelf Research*, **20**, pp. 2191-2212.
- Müller B., Sigg L. (1990) Interaction of trace metals with natural particle surfaces: comparison between adsorption experiments and field measurements. *Aquatic Sciences*, **52**, pp. 75-92.
- Müller G. (1979) Schwermetalle in den Sedimenten des Rheins-Veränderungen seit. *Umschau*, **79**, pp. 133-149.
- Mundschenk H. (1996) Occurrence and behaviour of radionuclides in the Moselle River-Part I: Entry of natural and artificial radionuclides. *Journal of Environmental Radioactivity*, **30**, pp. 199-213.
- Murphy W.M., Shock E.L. (1999) Aqueous geochemistry of actinides. In: URANIUM: Mineralogy, Geochemistry and the Environment, *Reviews in Mineralogy*, ed. Burns P.C., Finch R., series ed. Ribbe P.H., Mineralogical Society of America, **38**, 679 p.
- Naylor C., Davison W., Motelica-Heino M., Van Den Berg G.A., Van Der Heijden L.M. (2004) Simultaneous release of sulfide with Fe, Mn, Ni and Zn in marine harbour sediment measured using a combined metal/sulfide DGT probe. *Science of the Total Environment*, **328**, pp. 275-286.
- Nealson K.H., Stahl D.A. (2000) Microorganisms and biogeochemical cycles: what can we learn from layered microbial communities? In: Reviews of Mineralogy, Geomicrobiology: Interactions between microbes and minerals, ed. Banfield J.F., Nealson K.H., **35**, pp. 5-34.
- Neal A.L., Techkarnjanaruk S., Dohnalkova A., McCready D., Peyton B.M., Geesey G.G. (2001) Iron sulphides and sulfur species produced at hematite surfaces in the presence of sulfate-reducing bacteria. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **65**, pp. 223-235.
- Nieto J.M., Sarmiento A.M., Olias M., Canovas C.R., Riba I., Kalman J., Angel Delvalls T. (2007) Acid mine drainage pollution in the Tinto and Odiel rivers (Iberian Pyrite Belt, SW Spain) and bioavailability of the transported metals to the Huelva Estuary. *Environment International*, **33**, pp. 445-455.

- Nho E.-Y., Ardouin B., Le Cloarec M.F., Ramonet M. (1996) Origins of  $^{210}\text{Po}$  in the atmosphere at Lamto, Ivory coats: biomass burning and Sharan dusts. *Atmospheric Environment*, **30**, pp. 3705-3714.
- Noji T.T., Noji C.I.-M., Klungsoyr J. (2002) The role of sedimentation and resuspension for the transport of sediments and contaminants in the Skagerrak. *Hydrobiologia*, **469**, pp. 99-108.
- Old G.H., Leeks G.J.L., Packman J.C., Stokes N., Williams N.D., Smith B.P.G., Hewitt E.J., Lewis S. (2004) Dynamics of sediment-associated metals in a highly urbanised catchment: Bradford, West Yorkshire. *Journal of the Chartered Institution of water and Environmental Management*, **18**, pp. 11-16.
- Old G.H., Leeks G.J.L., Packman J.C., Smith B.P.G., Lewis S., Hewitt E.J., Holmes M., Young A. (2003) The impact of a convectional summer rainfall event on river flow and fine sediment transport in a highly urbanised catchment: Bradford, West Yorkshire. *Science of the Total Environment*, **314-316**, pp. 495-512.
- Olsen C.R., Thein M., Larsen I.L., Lowry P.D., Mulholland P.J., Cutshall N.H., Byrd J.T., Windom H.L. (1989) Plutonium, Lead-210, and Carbon isotopes in the Savannah Estuary: riverborne versus marine sources. *Environmental Science and Technology*, **23**, pp. 1475-1481.
- Olsen C.R., Larsen I.L., Lowry P.D., Cutshall H. (1986) Geochemistry and deposition of  $^7\text{Be}$  in river-estuarine and coastal waters. *Journal of Geophysical Research*, **91**, pp. 896-908.
- Olsen C.R., Larsen I.L., Lowry P.D., Cutshall H., Todd J.F., Wong G.T.F., Casey W.H. (1985) Atmospheric fluxes and marsh-soil inventories of  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$ . *Journal of Geophysical Research*, **90**, pp. 10 487-10 495.
- Olsen C.R., Cutshall N.H., Larsen I.L. (1982) Pollutant-particle associations and dynamics in coastal marine environments: a review. *Marine Chemistry*, **11**, pp. 501-533.
- Panfili F., Manceau A., Sarret G., Spadini L., Kirpichtchikova T., Bert V., Laboudigue A., Marcus M.A., Ahamdach N., Libert M.-F. (2005) The effect of phytostabilisation on Zn speciation in a dredged contaminated sediment using scanning electron microscopy, X-ray fluorescence, EXAFS spectroscopy, and principal components analysis. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **69**, pp. 2265-2284.
- Petersen W., Willer E., Willamowski C. (1997) Remobilisation of trace elements from polluted anoxic sediments after resuspension in oxic water. *Water, Air and Soil Pollution*, **99**, pp. 515-522.
- Petersen W., Wallmann K., Li P., Schroeder F., Knauth H.-D. (1995) Exchange of trace elements at the sediment-water interface during early diagenesis processes. *Marine and Freshwater Research*, **46**, pp. 19-26.
- Phillips J.M., Russell M.A., Walling D.E. (2000) Time-integrated sampling of fluvial suspended sediment: a simple methodology for small catchments. *Hydrological Processes*, **14**, pp. 2589-2602.
- Pomerol C., Lagabrielle Y., Renard M. (2000) *Eléments de géologie*, 12<sup>ème</sup> édition, Masson Sciences, Dunod, 746 p.
- Qin B., Hu W., Gao G., Luo L., Zhang J. (2004) Dynamics of sediment resuspension and the conceptual schema of nutrient release in the large shallow Lake Taihu, China. *Chinese Science Bulletin* 2004, **49**, pp. 54-64.
- Quevauvillier Ph., van der Sloot H.A., Ure A., Muntau H., Gomez A., Rauret G. (1996) Conclusions of the workshop: harmonization of leaching/extraction tests for environmental risk assessment. *Science of the total technology*, **178**, pp. 133-139.
- Quevauvillier P., Maier E.A., Griepink B., Fortunati U., Vercoutere K., Muntau H. (1996) Certified reference materials of soils and sewage sludges for the quality control of trace element environmental monitoring. *Trends in analytical chemistry*, **15**, pp.504-512.
- Radakovitch O., Cherry R.D., Heussner S. (1999)  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$ : tracers of particle transfer on the Rhône continental margin (NW Mediterranean). *Deep-Sea Research I*, **46**, pp. 1539-1563.
- Radakovitch O., Cherry R.D., Heyraud M., Heussner S. (1998) Unusual  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  ratios in the surface water of the Gulf of Lions. *Oceanologica Acta*, **21**, pp. 459-468.
- Rauret G., Lopez-Sanchez J.F., Sahuquillo A., Rubio R., Davidson C., Ure A., Quevauvillier Ph. (1998) Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials. *Journal of Environmental Monitoring*, **1**, pp. 57-61.
- Reeburgh W.S. (1983) Rates of biogeochemical processes in anoxic sediments. *Annual Review of Earth Planetary Science*, **11**, pp. 269-298.

- Robbins J.A., Edgington D.N. (1975) Determination of recent sedimentation rates in Lake Michigan using Pb-210 and Cs-137. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **39**, pp. 285-304.
- Ruiz-Fernandez A.C., Paez-Osuna F., Urrutia-Fucugauchi J., Preda M. (2005)  $^{210}\text{Pb}$  geochronology of sediment accumulation rates in Mexico City Metropolitan Zone as recorded at Espejo de los Lirios lake sediments. *Catena*, **61**, pp. 31-48.
- Rutgers van der Loeff M., Sarin M.M., Baskaran M., Benitez-Nelson C., Buesseler K.O., Charrette M., Dai M., Gustafsson Ö., Masque P., Morris P.J., Orlandini K., Rodriguez y Baena A., Savoye N., Schmidt S., Turnewitsch R., Vöge I., Waples J.T. (2006) A review of present techniques and methodological advances in analyzing  $^{234}\text{Th}$  in aquatic systems. *Marine Chemistry*, **100**, pp. 190-212.
- Rutgers van der Loeff M.M., Meyer R., Rudels B., Rachor E. (2002) Resuspension and particle transport in the Benthic Nepheloid Layer in and near Fram Strait in relation to faunal abundances and  $^{234}\text{Th}$  depletion. *Deep-Sea Research I*, **49**, pp. 1941-1958.
- Rutgers van der Loeff M.M., Boudreau B.P. (1997) The effect of resuspension on chemical exchanges at the sediment-water interface in the deep sea. A modelling and natural radiotracer approach. *Journal of Marine Systems*, **11**, pp. 305-342.
- Salomons W., de Rooij N.M., Kerdijk H., Bril J. (1987) Sediments as a source for contaminants? *Hydrobiologia*, **149**, pp. 13-30.
- Santschi P.H., Guo L., Asbill S., Allison M., Kepple A.B., Wen L.-S. (2001) Accumulation rates and sources of sediments and organic carbon on the Palos Verdes shelf based on radioisotopic tracers ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  and  $^{14}\text{C}$ ). *Marine Chemistry*, **73**, pp. 125-152.
- Santschi P.H., Allison M.A., Asbill S., Britt Perlet A., Cappellino S., Dobbs C., McShea L. (1999) Sediment transport and Hg recovery in Lavaca Bay, as evaluated from radionuclide and Hg distributions. *Environmental Science Technology*, **33**, pp. 378-391.
- Santschi P. (1986) Radionuclides as Tracers for Sedimentation and Remobilization Processes in the Ocean and in Lakes. In: *Sediments & Water Interaction*, ed. Sly, Springer-Verlag, New York, N. Y., pp. 435-447.
- Santschi P. (1984) Particle flux and trace metal residence time in natural waters. *Limnology and Oceanography*, **25**, pp. 1100-1108.
- Santschi P.H., Adler D., Amdurer M., Li Y.-H., Bell J.J. (1980) Thorium isotopes as analogues for "particle-reactive" pollutants in coastal marine environments. *Earth and Planetary Science Letters*, **47**, 327-335.
- Sarin M.M., Kim G., Church T.M. (1999)  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in the South-equatorial Atlantic: distribution and disequilibrium in the upper 500 m. *Deep-Sea Research II*, **46**, pp. 907-917.
- Saulnier I., Mucci A. (2000) Trace metal remobilization following the resuspension of estuarine sediments: Saguenay Fjord, Canada. *Applied Geochemistry*, **15**, pp. 203-222.
- Schmidt S., Jouanneau J.-M., Weber O., Lecroart P., Radakovitch O., Gilbert F., Jézéquel D. (2007). Sedimentary processes in the Thau Lagoon (France): From seasonal to century time scales. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **72**, pp. 534-542.
- Schmidt S., Andersen V., Belviso S., Marty J.-C. (2002) Strong seasonality in particle dynamics of north-western Mediterranean surface waters as revealed by  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ . *Deep-Sea Research, Part I: Oceanographic Research Papers*, **49**, pp. 1507-1518.
- Schuler C., Wieland E., Santschi P.H., Sturm M., Lueck A., Bollhalder S., Beer J., Bonani G., Hofmann H.J., Suter M., Wolfi W. (1991) A multitracer study of radionuclides in Lake Zurich, Switzerland. 1. Comparison of atmospheric and sedimentary fluxes of  $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$  and  $^{137}\text{Cs}$ . *Journal of Geophysical Research*, **96**, pp. 17,051-17,065.
- Shaw T.J., Gieskes J.M., Jahnke R.A. (1990) Early diagenesis in differing depositional environments: the response of transition metals in pore waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **54**, pp. 1233-1246.
- Shimmield G.B., Ritchie G.D., Fileman T.W. (1995) The impact of marginal ice zone processes on the distribution of  $^{210}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{234}\text{Th}$  and implications for new production in the Bellingshausen Sea, Antarctica. *Deep-Sea Research II*, **42**, pp. 1313-1335.
- Shipley H.J., Gao Y., Kan A.T., Tomson M.B. (2004) The mobilization of metals and inorganic compounds during resuspension of anoxic sediment. ACS National Meeting, **45**, pp. 630-638.
- Shuttleworth S.M., Davison W., Hamilton-Taylor J. (1999) Two-dimensional and fine structure in the concentrations of iron and manganese sediment pore-waters. *Environmental Science and Technology*, **33**, pp. 4169-4175.



- Simpson S.L., Rochford L., Birch G.F. (2002) Geochemical influences on metal partitioning in contaminated estuarine sediments. *Marine and Freshwater Research*, **53**, pp. 9-17.
- Simpson S.L., Apte S.C., Batley G.A. (2000) Effect of short-term resuspension events on the oxidation of cadmium, lead, and zinc sulfide phases in anoxic estuarine sediments. *Environmental Science and Technology*, **34**, pp. 4533-4537.
- Simpson S.L., Apte S.C., Batley G.A. (1998) Effect of short-term resuspension events on trace metal speciation in polluted sediments. *Environmental Science Technology*, **32**, pp. 620-625.
- Sobanska S. (1999) Etude de la spéciation du plomb et du zinc dans des poussières industrielles et dans un sol contaminé. Approches par méthodes spectroscopiques. Thèse de Doctorat, l'Université des Sciences et Technologies de Lille, 137 p.
- Sogon S. (1999) Erosion des sols cultivés et transport des matières en suspension dans un bassin versant de Brie. Application des traceurs radioactifs naturels et magnétiques. Thèse de Doctorat, Université Paris I, 304 p.
- Sommerfield C.K., Nittrouer C.A., Alexander C.R. (1999)  $^7\text{Be}$  as a tracer of flood sedimentation on the northern California continental margin. *Continental Shelf Research*, **19**, pp. 335-361.
- Spagnoli F., Bergamini M.C. (1997) Water-sediment exchange of nutrients during early diagenesis and resuspension of anoxic sediments from the Northern Adriatic Sea shelf. *Water, Air and Soil Pollution*, **99**, pp. 541-556.
- Steinmann P., Billen T., Loizeau J.-L., Dominik J. (1999)  $^7\text{Be}$  as a tracer to study mechanisms and rates of metal scavenging from lake surface waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **63**, pp. 1621-1633.
- Stigliani W.M. (1991) Chemical time bombs: definition, concepts, and examples. Executive report **16** (CTB basic document). IIASA Laxenburg, Austria, 23 p.
- Stumm W. et Morgan J.J. (1996) Aquatic chemistry. Chemical equilibria and rates in natural waters, 3<sup>rd</sup> ed., John Wiley & Sons Inc., 1022 p.
- Tack F.M., Callewaert O.W.J.J., Verloo M.G. (1996) Metal solubility as a function of pH in a contaminated, dredged sediment affected by oxidation. *Environmental Pollution*, **91**, pp. 199-208.
- Tankere-Muller S., Zhang H., Davison W., Finke N., Larsen O., Stahl H., Glud R.N. (2007) Fine scale remobilisation of Fe, Mn, Co, Ni, Cu and Cd in contaminated marine sediment. *Marine Chemistry*, **106**, pp. 192-207.
- ten Hulscher Th.E.M., Mol G.A.J., Lüers F. (1992) Release of metals from polluted sediments in a shallow lake: quantifying resuspension. *Hydrobiologia*, **235/236**, pp. 97-105.
- Tessier A., Carignan R., Belzile N. (1994) Reactions of trace elements near the sediment-water interface in lakes. In: Transport and Transformation of Contaminants near the Sediment-Water Interface, ed. DePinto J.V., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers, 351 p.
- Tessier A., Campbell P.G.C. (1987) Partitioning of trace metals in sediments: Relationships with bioavailability. *Hydrobiologia*, **149**, pp. 43-52.
- Tessier A., Rapin F., Carignan R. (1985) Trace metals in oxic lake sediments: possible adsorption onto iron oxy-hydroxides. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **49**, pp. 183-194.
- Tessier A., Campbell P.G.C., Bisson M. (1979) Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Analytical Chemistry*, **51**, pp. 844-851.
- Thévenot D.R., Moilleron R., Lestel L., Gromaire M.-C., Rocher V., Cambier P., Bonté P., Colin J.-L., de Pontevès C., Meybeck M. (2007) Critical budget of metal sources and pathways in the Seine River basin (1994-2003) for Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb and Zn. *Science of the Total Environment*, **375**, pp. 180-203.
- Tsai L.-J., Yu K.-C., Chen S.-F., Kung P.-Y., Chang C.-Y., Lin C.-H. (2003) Partitioning variation of heavy metals in contaminated river sediment via bioleaching: effect of sulfur added to total solids ratio. *Water Research*, **37**, pp. 4623-4630.
- Turekian K.K., Benninger L.K., Dion E.P. (1983)  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$  total deposition fluxes at New Haven, Connecticut and at Bermuda. *Journal of Geophysical Research*, **88**, pp. 5411-5415.
- Urban N.R., Ernst K., Bernasconi S. (1999) Addition of sulfur to organic matter during early diagenesis of lake sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **63**, pp. 837-853.
- Ure A.M. (1996) Single extraction schemes for soils analysis and related applications. *Science of the Total Environment*, **178**, pp. 3-10.
- Val Klump J., Edgington D., Waples J.T., Szmania D.C., Brown B.E., Orlandini K.A. (2003) Sampling methods and approaches using radionuclide tracers in the study of sediment

- resuspension and cross margin transport in nearshore of the Laurentian Great Lakes. *International Journal of Sediment Research*, **18**, pp. 266-277.
- van den Berg G.A., Meijers G.G.A., Van der Heijdt L.M., Zwolsman J.J.G. (2001) Dredging-related mobilisation of trace metals: a case study in the Netherlands. *Water Research*, **35**, pp. 1979-1986.
- van den Berg G.A., Loch J.P.G., Zwolsman J.J.G., van der Heijdt (1998) Non-steady state behaviour of heavy metals in contaminated freshwater sediments. *Water Science and Technology*, **37**, pp. 39-46.
- Van den Berg G.A., Loch J.P.G., van der Heijdt L.M., Zwolsman J.J.G. (1999) Mobilisation of heavy metals in contaminated sediments in the river Meuse, the Netherlands. *Water, Air, and Soil Pollution*, **116**, pp. 567-586.
- van der Perk M., Jetten V.G., Karssen D., He Q., Walling D.E., Laptev G.V., Voitsekhovitch O.V., Svetlichnyi A.A., Slavik O., Linnik V.G., Korobova E.M., Kivva S., Zheleznyak M. (2000) Assessment of spatial redistribution of Chernobyl-derived radiocaesium within catchments using GIS-embedded models. In: *The Role of Erosion and Sediment Transport in Nutrient and Contaminant Transfer*. IAHS Publ., **263**, pp. 277-284.
- Vogler S., Jung M., Mangini A. (1996) Scavenging of  $^{234}\text{Th}$  and  $^7\text{Be}$  in Lake Constance. *Limnology and Oceanography*, **41**, pp. 1384-1393.
- Walling D.E., Owens P.N., Carter J., Leeks G.J.L., Lewis S., Meharg A.A., Wright J. (2003) Storage of sediment-associated nutrients and contaminants in river channel and floodplains systems. *Applied Geochemistry*, **18**, pp. 195-220.
- Wallmann K., Kersten M., Gruber J., Förstner U. (1993) Artifacts in the determination of trace metal binding forms in anoxic sediments by sequential extraction. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, **51**, pp. 187-200
- Waples J.T., Benitez-Nelson C., Savoye N., Rutgers van der Loeff M., Baskaran M., Gustafsson Ö. (2006) An introduction to the application and future use of  $^{234}\text{Th}$  in aquatic systems. *Marine Chemistry*, **100**, pp. 166-189.
- Waples J.T., Orlandini K.A., Edgington D.N., Val Klump J. (2004) Seasonal and spatial dynamics of  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  disequilibria in southern Lake Michigan. *Journal of Geophysical Research*, **109**, 38 p.
- Waples J.T., Orlandini K.A., Weckerly K.M., Edgington D.N., Val Klump J. (2003) Measuring low concentrations of  $^{234}\text{Th}$  in water and sediment. *Marine Chemistry*, **80**, pp. 265-281.
- Westrich B. (1986) Hydromechanic aspects of contaminated sediment transport in fluvial systems. In: *Sediments and Water Interactions*, ed. P.G. Sly, Chapter 6, pp. 63-68.
- Winkler R., Rosner G. (2000) Seasonal and long-term variation of  $^{210}\text{Pb}$  concentration in air, atmospheric deposition rate and total deposition velocity in south Germany. *Science of the Total Environment*, **263**, pp. 57-68.
- Whitfield M. (1979) The mean oceanic residence time (MORT) concept—a rationalization. *Marine Chemistry*, **8**, pp. 101-123.
- Yeager K.M., Santschi P.H. (2003) Invariance of isotope ratios of lithogenic radionuclides: more evidence for their use as sediment source tracers. *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol; **69**, pp. 159-176.
- Young E.A., Dawson E.J., Macklin M.G., Zhao Y. (2007) Mobilisation and deposition of metal contaminated sediments in the River Swale, North Yorkshire, UK. *Geophysical Research Abstracts*, **9**, 03971.
- Zhang H., Davison W., Mortimer R.J.G., Krom M.D., Hayes P.J., Davies I.M. (2002) Localised remobilization of metals in a marine sediment. *Science of the Total Environment*, **296**, pp. 175-187.
- Zhang H., Davison W., Miller S., Tych W. (1995) In situ high resolution measurements of fluxes of Ni, Cu, Fe, and Mn and concentrations of Zn and Cd in porewaters by DGT. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **59**, pp. 4181-4192.
- Zhang J., Huang W.W., Wang J.H. (1994) Trace-metal chemistry of the Huanghe (Yellow River), China. Examination of the data from in situ measurements and laboratory approach. *Chemical Geology*, **114**, pp. 83-94.
- Zhou J.-F., Li J.-C. (2005) Modeling storm-induced current circulation and sediment transport in a schematic harbor. *Journal of waterway, port, coastal, and ocean engineering*, pp. 25-32.

- Ziegler C.K., Lick W., Lick J. (1994) The transport of fine-grained sediments in the Trenton Channel of the Detroit river. In: Transport and Transformation of Contaminants near the Sediment-Water Interface, ed. DePinto J.J., Lick W., Paul J.F., Lewis Publishers, 351 p.
- Zonta R., Zaggia L., Argese E. (1994) Heavy metal and grain-size distributions in estuarine shallow water sediments of the Cona Marsh (Venice Lagoon, Italy). *Science of the Total Environment*, **151**, pp. 19-28.
- Zoumis T., Schmidt A., Grigorova L., Calmano W. (2001) Contaminants in sediments: remobilisation and demobilisation. *Science of the Total Environment*, **266**, pp. 195-202.

# ANNEXES

<b>LISTE DES ILLUSTRATIONS</b>	<b>239</b>
<b>ANNEXE 1 : LISTE DES REFERENCES</b>	<b>241</b>
<b>ANNEXE 2 : SEDIMENTS</b>	<b>243</b>
2.1    LES « GRANDES » CAROTTES DE SEDIMENTS	243
2.1.1    Teneur en eau - activités des radionucléides – excès d'U	243
2.1.2    Distribution granulométrique	247
2.1.3    Concentrations des métaux	249
2.1.4    Concentrations des éléments majeurs	253
2.1.5    Facteur d'Enrichissement Géochimique (FEG) et Index d'accumulation géochimique ( $I_{géo}$ )	257
2.2    LES « PETITES » CAROTTES DE SEDIMENTS	260
2.2.1    Activités et stocks du $^7Be$	260
2.2.2    Distribution granulométrique	263
2.2.3    Concentrations des métaux	269
2.2.4    Concentrations des éléments majeurs	270
2.3    FRACTION REACTIVE DES METAUX DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE	271
<b>ANNEXE 3 : MATIERES EN SUSPENSION</b>	<b>273</b>
3.1    DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE	273
3.2    CONCENTRATIONS DES METAUX	274
3.3    CONCENTRATIONS DES ELEMENTS MAJEURS	275
<b>ANNEXE 4 : EAUX INTERSTITIELLES</b>	<b>277</b>
<b>ANNEXE 5 : UTILISATION DU RAPPORT <math>^7Be/^{210}Pb_{xs}</math></b>	<b>285</b>
<b>ANNEXE 6 : FLUX DE DEPOT ET D'EROSION DES METAUX A LA SURFACE DES SEDIMENTS</b>	<b>291</b>



## LISTE DES ILLUSTRATIONS

FIGURE 1 : EVOLUTION DU RAPPORT D'ACTIVITES ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES EN K13, K16 ET K36, ENTRE AVRIL 2005 ET AOUT 2006.	286
TABEAU 1 : TENEUR EN EAU – ACTIVITES DES RADIONUCLIDES – EXCES D'U DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K06 ET K09.	243
TABEAU 2 : TENEUR EN EAU – ACTIVITES DES RADIONUCLIDES – EXCES D'U DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13, K16 ET K22.	244
TABEAU 3 : TENEUR EN EAU – ACTIVITES DES RADIONUCLIDES – EXCES D'U DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36.	245
TABEAU 4 : TENEUR EN EAU – ACTIVITES DES RADIONUCLIDES – EXCES D'U DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K47 ET K49.	246
TABEAU 5 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DES SEDIMENTS PRELEVES EN K13.	247
TABEAU 6 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DES SEDIMENTS PRELEVES EN K16.	247
TABEAU 7 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DES SEDIMENTS PRELEVES EN K47.	248
TABEAU 8 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DES SEDIMENTS PRELEVES EN K49.	248
TABEAU 9 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K06 ET K09.	249
TABEAU 10 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13, K16 ET K22.	250
TABEAU 11 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36.	251
TABEAU 12 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K47 ET K49.	252
TABEAU 13 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K06.	253
TABEAU 14 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K09.	253
TABEAU 15 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13.	254
TABEAU 16 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K16.	254
TABEAU 17 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K22.	254
TABEAU 18 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36.	255
TABEAU 19 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K47.	255
TABEAU 20 : CONCENTRATIONS EN ELEMENTS MAJEURS (M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K49.	256
TABEAU 21 : FEG ET <i>I<sub>GEO</sub></i> DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K06 ET K09.	257
TABEAU 22 : FEG ET <i>I<sub>GEO</sub></i> DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K13, K16 ET K22.	258
TABEAU 23 : FEG ET <i>I<sub>GEO</sub></i> DANS LES SEDIMENTS PRELEVES EN K36, K47 ET K49.	259
TABEAU 24 : ACTIVITES (BQ.KG <sup>-1</sup> M.S.) ET STOCK TOTAL DE ${}^7\text{Be}$ (BQ.CM <sup>-2</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES ENTRE AVRIL ET AOUT 2005.	260
TABEAU 25 : ACTIVITES (BQ.KG <sup>-1</sup> M.S.) ET STOCK TOTAL DE ${}^7\text{Be}$ (BQ.CM <sup>-2</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES ENTRE SEPTEMBRE 2005 ET MARS 2006.	261
TABEAU 26 : ACTIVITES (BQ.KG <sup>-1</sup> M.S.) ET STOCK TOTAL DE ${}^7\text{Be}$ (BQ.CM <sup>-2</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS PRELEVES ENTRE AVRIL ET AOUT 2006.	262
TABEAU 27 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN MAI 2005.	263
TABEAU 28 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN JUIN 2005.	264
TABEAU 29 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN JUILLET 2005.	265
TABEAU 30 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN MARS 2006.	266
TABEAU 31 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN AVRIL 2006.	267
TABEAU 32 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 ET 3-5 CM) PRELEVES EN K13, K16 ET K36 EN MAI 2006.	268
TABEAU 33 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 CM) DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE JUILLET ET DECEMBRE 2005.	269
TABEAU 34 : CONCENTRATIONS DES MAJEURS (% M.S.) DANS LES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 CM) DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 ENTRE JUILLET ET DECEMBRE 2005.	270

TABLEAU 35 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> SEDIMENT BRUT) DANS LES FRACTIONS REACTIVES ET RESIDUELLES DES SEDIMENTS DE SURFACE (0-3 CM) PRELEVES EN K36 ENTRE MARS ET JUILLET 2006 (CAMPAGNES N°11 A 14). .....	271
TABLEAU 36 : DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE (VOLUME DIFFERENTIEL, %) DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES DANS LA SCARPE EN K13, K16 ET K36, ET DANS LA STATION DE RELEVAGE (=SR), ENTRE JUIN 2005 (CAMPAGNE N°3) ET JUILLET 2006 (CAMPAGNE N°14).....	273
TABLEAU 37 : CONCENTRATIONS DES METAUX (MG.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES DANS LA SCARPE EN K13, K16, K36 ET DANS LA STATION DE RELEVAGE (=SR), ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006. ....	274
TABLEAU 38 : CONCENTRATIONS DES MAJEURS (% M.S.) DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES DANS LA SCARPE EN K13, K16, K36 ET DANS LA STATION DE RELEVAGE (=SR), ENTRE MAI 2005 ET AOUT 2006	275
TABLEAU 39 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN DECEMBRE 2005. ....	277
TABLEAU 40 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN JANVIER 2006. ....	278
TABLEAU 41 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN MARS 2006. ....	279
TABLEAU 42 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN AVRIL 2006.....	280
TABLEAU 43 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN MAI 2006. ....	281
TABLEAU 44 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN JUILLET 2006. ....	282
TABLEAU 45 : CONCENTRATIONS EN METAUX (µG.L <sup>-1</sup> ) DANS LES EAUX INTERSTITIELLES DES SEDIMENTS PRELEVES EN K36 EN AOUT 2006. ....	283
TABLEAU 46 : ACTIVITES DU <sup>7</sup> Be ET DU <sup>210</sup> Pb <sub>xs</sub> (BQ.KG <sup>-1</sup> M.S.) DANS LES MATIERES EN SUSPENSION PRELEVEES EN K13, K16 ET K36. CALCUL DU RAPPORT D'ACTIVITE <sup>7</sup> Be/ <sup>210</sup> Pb <sub>xs</sub> . ....	286
TABLEAU 47 : AGE ET POURCENTAGE DES MATIERES EN SUSPENSION RECEMMENT MARQUEES AU <sup>7</sup> Be EN K13, K16 ET K36, EN AOUT 2005, JUILLET ET AOUT 2006.....	287
TABLEAU 48 : AGE ET POURCENTAGE DES MATIERES EN SUSPENSION RECEMMENT MARQUEES AU <sup>7</sup> Be EN K13, K16 ET K36, EN JUILLET ET AOUT 2006. ....	289
TABLEAU 49 : FLUX DE DEPOT ET D'EROSION DES METAUX A PARTIR (I) DES VITESSES DE DEPOT ET D'EROSION DES SEDIMENTS ET (II) DES CONCENTRATIONS DANS LES MATIERES EN SUSPENSION. ....	291

## ANNEXE 1 : LISTE DES REFERENCES

### Congrès internationaux avec comité de sélection et actes

**Zebracki M.**, Bonté P., Alary C., 2007, Beryllium-7 as a tracer for short-term sediment dynamics in the Scarpe River, France. 10<sup>th</sup> International Symposium on River Sedimentation (ISRS), Moscow, Russia, August 1–4. In: Proceedings of the tenth ISRS. Effects of river sediments and channel processes on social, economic and environmental safety. Vol.V, pp. 349-358. Publication of the Moscow State University, Russia. *Présentation orale*.

**Zebracki M.**, Alary C., Bonté P., 2007, Metallic transfer at water-sediment interface in an urban watercourse, 9<sup>th</sup> International Conference On Biogeochemistry of Trace Elements (ICOBTE), Beijing, China, July 15-17. In: Biogeochemistry of trace elements: environmental protection, remediation and human health, pp 809-810. Tsinghua University Press, China. Editors: Y. Zhu, N. Lepp, R. Naidu. *Présentation orale*.

**Zebracki M.**, Alary C., Bonté P., 2007, Sediment contribution of metallic contaminants in respect to assessment of water quality in urban watercourses. European Geosciences Union (EGU), Vienna, Austria, April 14-20. In: Geophysical Research Abstracts, Vol. 9, CD-ROM ISSN: 1029-7006. *Présentation orale*.

**Zebracki M.**, Alary C., Bonté P., 2005, Particle-associated metallic contaminants transfer in a river displaying polluted sediment. Use of environmental radionuclides. 10<sup>th</sup> International Symposium on the Interactions Between Sediments and Water, Bled, Slovenia, Aug 29 – Sept 1. In: RMZ. Materials and Geoenvironment. Vol. 52, No. 1, p. 371. Ed. J. Faganeli, N. Ogrinc and M. Horvat. *Présentation orale*.

### Congrès internationaux avec comité de sélection

Alary C., **Zebracki M.**, Bonté P., Laboudigue A., 2007, Large and highly variable metal concentrations evidenced in an urban watercourse based on a 22 months survey. Water Status Monitoring under the WFD Conference, Lille, France, March 12-14. In: Water Status Monitoring of Aquatic Ecosystems in the context of the Water Framework Directive. P84. *Présentation poster*.

**Zebracki M.**, Bonté P., Alary C., 2006, Short-term sediment dynamics and particle-associated metallic transfer in an urban watercourse. Man and River Systems II, Paris, France, December 4–6. In: Man and River Systems. Interactions among Rivers, their Watersheds, and the Sociosystem. Presses de l'Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, France. Second set of extended abstracts, pp. 57. *Présentation poster*.

### Workshops internationaux avec comité de sélection

**Zebracki M.**, Bonté P., Alary C., 2007, Short-term sediment dynamics and particle-associated metallic transfer in an urban watercourse. 6<sup>th</sup> World Wide Workshop for Young Environmental Scientists (WWW YES), Vitry-sur-Seine, France, April 24-27. In: Proceedings of the 6<sup>th</sup> WWW YES. Urban waters: Resource or risk? pp. 117-127. Université Populaire de l'Eau et du Développement Durable, Conseil Général du Val-de-Marne, Université Paris 12, France. *Présentation orale*.



Alary C., Gaboriau H., Bourgeois F., **Zebracki M.**, Bonté P., and Rabouille C., 2004, MESDERIC Impact of sediment settling and resuspension on metal remobilisation. European Sediment Network SedNet, Venice, Italy, November 25-26. *Présentation poster.*

**Colloque national sans comité de sélection**

Moulin J., **Zebracki M.**, Reyss J.-L., 2005, Rétention et relargage des radionucléides naturels par les tourbières. Colloque de la Recherche de l'Intergroupe des Ecoles Centrales CRIEC, Lille, 11-13 Mai. *Présentation poster.*

**Articles dans une revue internationale**

**Zebracki M.**, Bonté P., Alary C., en préparation, Beryllium-7 as a tracer for short-term sediment dynamics in the Scarpe River, France. *Physics and Chemistry of the Earth*, Elsevier.

**Rapports**

**Zebracki M.**, 2005, Etude du transfert des contaminants métalliques associés aux particules dans un cours d'eau en relation avec la dynamique sédimentaire. Rapport d'avancement de 1<sup>ère</sup> année. 43 p.

**Zebracki M.**, 2005, Mécanismes et dynamique de transfert des contaminants métalliques dans un cours d'eau: revue bibliographie. Rapport CNRSSP/05/05, 93 p.





site	profondeur cm	eau %	porosité %	R <sub>v</sub> g.cm <sup>-2</sup>	z g.cm <sup>-2</sup>	<sup>234</sup> Th		<sup>232</sup> Th		<sup>238</sup> U		<sup>238</sup> U <sub>ex</sub>																			
						<2σ	<3σ	<3σ	<3σ	<2σ	<3σ	<2σ	<3σ	<2σ	<3σ	mg/kg m.s.	σ														
K36	0-2	86	0.93	0.32	0.32	25	7	32	38	2	23.2	0.9	114	10	11.1	0.8	91	10	5	2	1.6	0.2	1.2	0.1	1.1	0.1	1.1	0.1	0.4	0.2	0.7
	2-4	81	0.91	0.42	0.73	30	6	37.4	41	1	35.0	0.8	151	8	11.9	0.6	117	8	5	2	1.17	0.07	1.10	0.06	0.8	0.2	0.8	0.2	0.2	<	0.5
	4-6	85	0.93	0.33	1.07	24	9	33	38	2	31	1	108	13	10.2	1.0	78	13	4	3	1.2	0.1	1.1	0.1	0.8	0.3	0.8	0.2	0.3	<	0.8
	6-8	81	0.91	0.44	1.51	33	9	35	34	2	31	1	121	12	7.9	0.9	90	12	5	2	1.1	0.1	1.0	0.1	1.1	0.1	1.1	0.1	0.3	0.1	0.8
	8-10	77	0.89	0.54	2.05	37	8	38	38	2	29	1	134	11	9.5	0.8	106	11	5	2	1.3	0.1	0.98	0.08	1.3	0.3	0.6	0.6	0.8		
	10-12	70	0.85	0.73	2.78	30	8	36	36	2	33	1	133	11	9.6	0.9	101	11	5	2	1.1	0.1	1.02	0.09	0.9	0.3	0.6	0.6	0.8		
	12-14	88	0.95	0.26	3.04	28	11	33	38	3	30	1	138	14	14	1	109	14	5	3	1.3	0.1	1.2	0.1	1.0	0.4	<	1.0	0.7		
	14-16	78	0.90	0.50	3.54	60	8	33	37	2	32	1	110	12	14	1	79	12	4	2	1.1	0.1	1.1	0.1	1.9	0.3	2.3	0.8	0.8		
	16-18	79	0.90	0.48	4.02	81	10	29	24	2	25	1	95	11	21	1	70	11	4	2	1.0	0.1	0.8	0.1	3.2	0.5	4.5	0.9	0.9		
	18-20	77	0.89	0.53	4.56	66	9	26	25	2	32	1	108	11	25	1	77	12	4	2	0.79	0.09	1.0	0.1	2.1	0.4	2.8	0.8	0.8		
	20-22	76	0.88	0.57	5.13	81	11	32	28	2	24	1	92	11	29	1	69	11	4	2	1.2	0.2	0.9	0.1	3.5	0.6	4.7	0.9	0.9		
	22-24	75	0.88	0.59	5.72	73	9	27	28	2	20	1	128	11	30	1	109	12	5	2	1.4	0.2	1.0	0.1	3.6	0.6	4.2	0.8	0.8		
	24-26	75	0.88	0.58	6.30	66	9	26	26	2	23	1	109	11	36	1	87	11	4	2	1.1	0.1	1.0	0.1	2.9	0.5	3.5	0.8	0.8		
	26-28	75	0.88	0.60	6.90	101	10	28	25	2	21	1	114	11	35	1	94	11	5	2	1.2	0.2	0.9	0.1	4.9	0.7	6.4	0.9	0.9		
	28-30	73	0.86	0.65	7.55	73	9	23	26	2	20	1	83	11	34	1	64	11	4	2	1.3	0.2	1.1	0.1	3.7	0.7	4.3	0.8	0.8		
	30-32	72	0.86	0.67	8.22	83	8	27	24	2	22.7	0.9	110	10	40	1	88	10	4	2	1.1	0.1	0.9	0.1	3.7	0.7	4.3	0.8	0.7		
	32-34	71	0.86	0.70	8.91	81	8	26.3	25	2	19.5	0.8	100	9	39	1	81	9	4	2	1.3	0.1	0.9	0.1	4.1	0.6	4.9	0.7	0.7		
	34-36	59	0.77	1.09	10.00	73	5	22.8	21.4	0.9	40.0	0.6	90	6	24.5	0.6	50	6	4	2	0.54	0.03	0.94	0.06	1.8	0.2	2.7	0.5	0.7		

Tableau 3 : Teneur en eau – activités des radionucléides – excès d'U dans les sédiments prélevés en K36.



## 2.1.2 Distribution granulométrique

k13 profondeur, cm	diamètre des particules, $\mu\text{m}$ (sans ultrasons)						
	0< $\phi$ <0,2	0,2< $\phi$ <1	1< $\phi$ <5	5< $\phi$ <15	15< $\phi$ <50	50< $\phi$ <400	400< $\phi$ <2000
0-2	0,093	5,3	20	30	28	17	0
2-4	0,091	5,5	22	35	29	8,7	0
4-6	0,083	6,5	24	29	29	12	0
6-8	0,080	6,0	22	27	28	17	0
8-10	0,079	6,0	21	26	28	18	0
10-12	0,087	5,1	19	27	29	19	0
12-14	0,089	4,9	19	30	30	16	0
14-16	0,081	6,2	23	27	28	16	0
16-18	0,12	6,0	23	30	30	11	0
18-20	0,066	4,9	19	25	24	24	2,8
20-22	0,44	9,6	22	19	19	30	0
22-24	0,15	2,9	5,5	4,3	3,8	83	0,78
24-26	0,35	4,5	11	11	13,5	60	0,46
26-28	0,29	5,1	13	13	13,9	55	0
28-30	0,30	2,1	5,1	4,1	5,0	83	0,89
30-32	0,058	1,7	3,1	2,3	4,0	84	4,4

k13 profondeur, cm	diamètre des particules, $\mu\text{m}$ (avec ultrasons)						
	0< $\phi$ <0,2	0,2< $\phi$ <1	1< $\phi$ <5	5< $\phi$ <15	15< $\phi$ <50	50< $\phi$ <400	400< $\phi$ <2000
0-2	0,25	1,2	3,4	13	40	34	7,6
2-4	0,060	1,3	4,4	14	40	29	11
4-6	0,094	1,1	3,9	13	36	34	12
6-8	0,077	1,1	3,8	12	35	30	18
8-10	0,076	0,9	3,0	11	32	25	28
10-12	0,13	1,2	3,7	13	38	32	11
12-14	0,16	1,2	3,8	14	43	31	6,7
14-16	0,22	1,3	3,8	14	44	33	4,4
16-18	0,24	1,4	4,4	16	45	28	5,3
18-20	0,25	1,3	4,2	16	40	28	11
20-22	0,62	2,8	8,9	17	20	48	2,3
22-24	0,51	1,8	4,8	9	10	66	8,0
24-26	0,68	3,7	11	15	18	50	2,6
26-28	0,57	2,8	9,7	13	13	57	3,3
28-30	0,49	2,2	7,9	13	13	61	1,9
30-32	0,16	0,95	2,9	1,8	2,6	87	4,7

Tableau 5 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) des sédiments prélevés en k13.

k16 profondeur, cm	diamètre des particules, $\mu\text{m}$ (sans ultrasons)						
	0< $\phi$ <0,2	0,2< $\phi$ <1	1< $\phi$ <5	5< $\phi$ <15	15< $\phi$ <50	50< $\phi$ <400	400< $\phi$ <2000
0-2	0,158	3,9	15	31	34	16	0
2-4	0,114	6,9	22	28	25	17,6	0
4-6	0,160	5,5	23	28	27	16	0
6-8	0,047	5,9	24	27	26	18	0
8-10	0,070	6,1	23	26	24	22	0
10-12	0,063	6,1	22	24	23	24	0
12-14	0,080	5,6	20	25	25	24	0
14-16	0,070	3,8	11	11	12	49	13

Tableau 6 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) des sédiments prélevés en k16.

k47 profondeur, cm	diamètre des particules, µm (sans ultrasons)						
	0<Ø<0,2	0,2<Ø<1	1<Ø<5	5<Ø<15	15<Ø<50	50<Ø<400	400<Ø<2000
0-2	0,7	5,4	24	32	35	3,1	0
2-4	1,1	5,5	27	32	30	4,6	0
4-6	0,8	5,4	28	32	29	4,4	0
6-8	0,8	5,4	27	31	30	6,2	0
8-10	1,0	6,0	26	30	36	1,0	0
10-12	1,1	5,4	24	30	37	1,6	0
12-14	0	4,1	19	21	30	20	6,2
14-16	0	4,6	22	24	36	13	0
16-18	0,6	5,6	27	29	37	1,5	0
18-20	0	4,5	24	27	35	10	0
20-22	0	4,3	18	17	27	33	0
22-24	0	3,2	13	12	22	34	16
24-26	0	4,7	18	16	25	36	0
26-28	0	4,6	15	13	20	44	2,2
28-30	0	5,0	17	16	26	35	0,8
30-32	0	5,0	17	15	23	40	0
32-34	0	3,9	12	10	15	52	6,4
34-36	0	3,9	13	12	18	38	15
36-38	0	5,5	20	16	27	32	0
38-40	0	4,7	17	15	26	33	5,0
40-42	0	4,0	14	13	19	39	10
42-44	0	4,4	15	14	24	41	1,8
44-46	0	6,0	21	18	29	26	0
46-48	0	5,3	17	15	23	38	1,0
48-50	0	4,3	15	14	20	41	5,8
50-52	0	4,6	18	16	23	36	1,8
52-54	0	4,6	16	13	22	44	0
54-56	0	6,2	23	22	31	17	0

Tableau 7 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) des sédiments prélevés en k47.

k47 profondeur, cm	diamètre des particules, µm (sans ultrasons)						
	0<Ø<0,2	0,2<Ø<1	1<Ø<5	5<Ø<15	15<Ø<50	50<Ø<400	400<Ø<2000
0-2	0,5	4,4	20	35	34	5,8	0
2-4	0,2	5,9	28	42	24	0	0
4-6	0,5	3,3	16	19	28	33,7	0
6-8	0	5,8	22	31	35	5,5	0
8-10	0,8	4,2	17	23	29	26,3	0
10-12	0	5,0	19	26	34	15,7	0
12-14	0,9	4,6	22	27	33	12	0
14-16	0	5,1	20	30	36	9	0
16-18	0	0,0	0	4	4	17,3	75
18-20	0	5,2	19	27	30	18	0
20-22	0	5,3	21	34	37	3	0
22-24	0,5	4,0	19	21	25	31	0
24-26	0	4,1	18	20	28	28	1,5
26-28	0	4,4	22	21	26	26	0
28-30	1,0	3,8	17	20	23	33	2,2
30-32	0,7	3,5	17	18	22	37	1,7
32-34	0,8	3,9	17	17	22	37	3,2
34-36	0,6	4,7	21	23	30	21	0

Tableau 8 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) des sédiments prélevés en k49.







site	profondeur cm	Bq.kg <sup>-1</sup> m.s.										
		As	Zn	Cd	Pb	Co	Ni	Mn	Cr	Ti	Cu	±σ
	0-2	6.8	2274	173	333	9.1	25	408	71	719	169	2
	2-4	8.0	2364	162	343	10.7	26	508	74.8	665	177	2
	4-6	8.9	2500	135	348	9.92	28	518	80	706	175	3
	6-8	6.6	2332	111	341	8.7	26	434	75	650	171	2
	8-10	7.6	2481	177	337	9.5	26.0	498	73	540	178	2
	10-12	9.0	2836	370	347	14.3	30	568	82	570	180	1
	12-14	14	2809	100	441	9.83	33	434	82	603	255	3
	14-16	30	4344	142	718	12.5	47	300	92	563	401	4
	16-18	29.9	4665	154	762	12.2	51	274	102.1	624	424	13
	18-20	29.3	4516	150	750	12.38	53	262	103	625	414	4
	20-22	28.1	4316	142	708	11.7	51	243	96.6	628	384	9
	22-24	30.1	4496	153	720	12.5	54	252	104	633	399	13
	24-26	31.9	4666	181	755	12.9	60	251	107	539	425	3
	26-28	30.4	4670	186	748	13.1	59.8	252	100	539	416	11
	28-30	39.3	4711	200	731	13.9	63	245	100	592	393	5
	30-32	34	4762	196	702	13.6	62	253	100	591	441	4
	32-34	42.9	4833	213	730	14.47	64	251	97	580	424	1
	34-36	46.7	4613	184	676	13.6	60	255	90.5	509	408	4

Tableau 11 : Concentrations des métaux (mg.kg<sup>-1</sup> m.s.) dans les sédiments prélevés en k36.

site	profondeur cm	Bq.kg <sup>-1</sup> m.s.											mg.kg <sup>-1</sup> m.s.					
		As	Zn	Cd	Pb	Co	Ni	Mn	Cr	Ti	Cu	±σ	±σ	±σ	±σ			
K47	0-2	35	2193	439	149	30	341	68			27	5	658	132	72	14	161	32
	2-4	30	2383	477	189	38	361	72			27	5	693	139	76	15	170	34
	4-6	31	2630	526	346	69	357	71			31	6	733	147	78	16	162	32
	6-8	29	2245	449	213	43	299	60			29	6	660	132	72	14	148	30
	8-10	29	2090	418	157	31	299	60			29	6	603	121	77	15	150	30
	10-12	25	1724	345	58	12	286	57			23	5	526	105	74	15	129	26
	12-14	27	1581	316	40	8	238	48			24	5	451	90	67	13	110	22
	14-16	28	1828	366	42	8	213	43			28	6	487	97	72	14	92	18
	16-18	33	2101	420	62	12	347	69			30	6	584	117	70	14	148	30
	18-20	29	1455	291	49	10	251	50			26	5	417	83	55	11	117	23
	20-22	19	549	110	20	4	83	17			24	5	306	61	42	8	49	10
	22-24	13	122	24	4	1	20	4			17	3	239	48	30	6	17	3
	24-26	15	98	20	2	2	20	4			18	4	269	54	36	7	18	4
	26-28	13	73	15	2	2	17	3			16	3	259	52	32	6	16	3
	28-30	13	65	13	2	2	14	3			14	3	253	51	29	6	13	3
	30-32	14	56	11	2	2	14	3			17	3	280	56	31	6	15	3
	32-34	15	51	10	2	2	16	3			17	3	293	59	31	6	16	3
	34-36	15	54	11	2	2	12	2			14	3	262	52	31	6	13	3
	36-38	15	55	11	2	2	14	3			16	3	284	57	31	6	14	3
	38-40	15	59	12	2	2	18	4			18	4	323	65	30	6	16	3
40-42	16	52	10	2	2	14	3			17	3	304	61	30	6	15	3	
42-44	14	49	10	2	2	13	3			16	3	305	61	30	6	16	3	
44-46	12	46	9	2	2	14	3			16	3	283	57	31	6	13	3	
46-48	12	48	10	2	2	14	3			15	3	272	54	31	6	14	3	
48-50	13	55	11	2	2	18	4			17	3	298	60	34	7	17	3	
50-52	15	68	14	2	2	21	4			20	4	377	75	33	7	20	4	
52-54	13	55	11	2	2	17	3			15	3	273	55	30	6	15	3	
54-56	15	70	14	2	2	21	4			20	4	357	71	34	7	20	4	
K49	0-3	19	1499	300	65	13	218	44			19	4	333	67	55	11	115	23
	3-5	31	2797	559	90	18	361	72			36	7	195	39	66	13	238	48
	5-8	43	4082	816	146	29	498	100			48	10	218	44	90	18	326	65
	8-10	35	3138	628	122	24	422	84			40	8	192	38	80	16	277	55
	10-12	36	3108	622	101	20	432	86			41	8	187	37	73	15	283	57
	12-14	38	3401	680	99	20	464	93			42	8	206	41	80	16	288	58
	14-16	43	3440	688	113	23	455	91			45	9	191	38	82	16	290	58
	16-18	43	3562	712	135	27	477	95			46	9	228	46	80	16	321	64
	18-20	42	2874	575	142	28	369	74			41	8	179	36	72	14	234	47
	20-22	43	3452	690	189	38	427	85			46	9	216	43	84	17	272	54
	22-24	45	3298	660	196	39	382	76			40	8	204	41	91	18	244	49
	24-26	27	1049	210	53	11	113	23			25	5	190	38	49	10	68	14
	26-28	23	892	178	46	9	93	19			19	4	198	40	51	10	50	10
	28-30	27	1484	297	77	15	185	37			25	5	244	49	63	13	115	23
30-32	34	2017	403	130	26	238	48			32	6	228	46	75	15	146	29	

Tableau 12 : Concentrations des métaux (mg.kg<sup>-1</sup> m.s.) dans les sédiments prélevés en k47 et k49.



k13															
tranche (cm)	COT (%)	S (kg/kg)	C/N	Fe (%)	$\pm 1\sigma$	Mg (%)	$\pm 1\sigma$	Ca (%)	$\pm 1\sigma$	Al (%)	$\pm 1\sigma$	Na (%)	$\pm 1\sigma$	K (%)	$\pm 1\sigma$
0-2	13	12	12	2,15	0,04	0,447	0,009	7,8	0,2	2,69	0,04	0,079	0,002	0,59	0,03
2-4	16	13	13	2,01	0,08	0,41	0,02	7,0	0,2	2,6	0,1	0,073	0,005	0,52	0,04
4-6	17	15	12	2,11	0,08	0,40	0,02	6,4	0,2	2,7	0,1	0,069	0,005	0,52	0,04
6-8	18	16	12	2,06	0,01	0,389	0,001	6,21	0,04	2,55	0,03	0,081	0,002	0,515	0,009
8-10	19	16	12	2,044	0,005	0,379	0,003	6,07	0,04	2,53	0,06	0,069	0,001	0,54	0,03
10-12	18	16	12	2,07	0,02	0,383	0,002	6,13	0,04	2,55	0,05	0,05	0,04	0,56	0,01
12-14	18	16	12	2,10	0,02	0,390	0,002	6,04	0,03	2,57	0,07	0,075	0,003	0,52	0,02
14-16	18	16	12	2,17	0,02	0,410	0,006	6,08	0,08	2,7	0,1	0,066	0,003	0,63	0,06
16-18	17	16	12	2,09	0,03	0,397	0,008	6,0	0,1	2,63	0,03	0,062	0,001	0,59	0,02
18-20	15	14	17	2,01	0,06	0,310	0,003	5,84	0,03	2,21	0,05	0,053	0,002	0,51	0,04
20-22	1	7	18	2,20	0,05	0,188	0,002	10,9	0,2	0,66	0,05	ind.		0,18	0,01
22-24	0,2	3	8	1,39	0,02	0,179	0,003	20,0	0,5	0,50	0,02	ind.		0,157	0,006
24-26	0,2	3	8	0,73	0,02	0,204	0,006	25,7	0,4	0,55	0,02	ind.		0,178	0,004
26-28	0,1	2	4	0,81	0,01	0,230	0,002	23,3	0,4	0,70	0,01	ind.		0,235	0,009
28-30	0,2	2	7	0,82	0,02	0,232	0,004	23,5	0,3	0,71	0,01	ind.		0,234	0,008
30-32	0,1	2	4	1,15	0,01	0,279	0,005	4,4	0,2	0,99	0,03	ind.		0,357	0,004

Tableau 15 : Concentrations en éléments majeurs (m.s.) dans les sédiments prélevés en k13.

k16															
tranche (cm)	COT (%)	S (kg/kg)	C/N	Fe (%)	$\pm 1\sigma$	Mg (%)	$\pm 1\sigma$	Ca (%)	$\pm 1\sigma$	Al (%)	$\pm 1\sigma$	Na (%)	$\pm 1\sigma$	K (%)	$\pm 1\sigma$
0-2	10	9	13	2,14	0,03	0,439	0,007	7,9	0,1	2,29	0,06	0,065	0,003	0,57	0,02
2-4	8	8	15	2,3	0,5	0,39	0,01	7,3	0,2	2,1	0,3	0,05	0,01	0,51	0,09
4-6	8	15	26	2,42	0,04	0,26	0,01	3,97	0,08	1,9	0,1	0,047	0,003	0,49	0,03
6-8	11	15	20	2,64	0,14	0,35	0,01	4,6	0,3	2,5	0,2	0,053	0,004	0,59	0,04
8-10	18	16	16	2,41	0,06	0,3837	0,0038	5,03	0,04	2,56	0,08	0,060	0,002	0,53	0,03
10-12	20	16	17	2,23	0,04	0,3560	0,0076	5,14	0,09	2,39	0,06	0,057	0,002	0,47	0,01
12-14	17	15	20	2,31	0,08	0,35	0,01	4,7	0,1	2,48	0,06	0,057	0,003	0,55	0,02
14-16	14	29	34	4,0	0,1	0,3403	0,0009	2,94	0,06	2,3	0,2	0,048	0,007	0,52	0,08
16-18	20	26	49	3,22	0,04	0,40	0,03	1,56	0,01	2,9	0,4	0,07	0,01	0,74	0,17

Tableau 16 : Concentrations en éléments majeurs (m.s.) dans les sédiments prélevés en k16.

k22															
tranche (cm)	COT (%)	S (kg/kg)	C/N	Fe (%)	$\pm 1\sigma$	Mg (%)	$\pm 1\sigma$	Ca (%)	$\pm 1\sigma$	Al (%)	$\pm 1\sigma$	Na (%)	$\pm 1\sigma$	K (%)	$\pm 1\sigma$
0-2	7			2,200	0,006	0,503	0,001	9,29	0,08	2,71	0,09	0,068	0,002	0,70	0,03
2-4	7			2,3	0,1	0,49	0,03	8,3	0,6	2,9	0,2	0,066	0,006	0,73	0,05
4-6	7			2,37	0,01	0,574	0,009	8,0	0,1	2,8	0,2	0,054	0,003	0,64	0,05
6-8	9			2,19	0,03	0,489	0,008	7,8	0,1	2,8	0,1	0,060	0,003	0,68	0,04
8-10	16			2,24	0,03	0,459	0,009	6,1	0,1	3,03	0,04	0,072	0,004	0,74	0,02
10-12	18			2,20	0,02	0,426	0,004	5,24	0,03	2,84	0,09	0,066	0,004	0,70	0,03
12-14	17			2,08	0,01	0,407	0,006	5,10	0,05	2,60	0,09	0,062	0,002	0,63	0,03
14-16	18	ind.	ind.	2,09	0,01	0,397	0,002	5,04	0,04	2,5	0,1	0,059	0,003	0,60	0,03
16-18	18			2,18	0,03	0,421	0,006	5,2	0,1	2,73	0,07	0,065	0,001	0,65	0,02
18-20	21			2,20	0,02	0,429	0,003	4,97	0,01	2,8	0,1	0,064	0,003	0,65	0,04
20-22	18			2,11	0,09	0,38	0,01	5,1	0,2	3,04	0,07	0,081	0,001	0,66	0,02
22-24	19			2,092	0,008	0,432	0,004	5,18	0,05	3,09	0,03	0,070	0,001	0,68	0,01
24-26	20			2,3	0,1	0,46	0,03	5,5	0,4	3,3	0,2	0,075	0,005	0,74	0,06
26-28	22			2,2	0,2	0,42	0,03	5,0	0,4	3,1	0,2	0,073	0,006	0,72	0,06

Tableau 17 : Concentrations en éléments majeurs (m.s.) dans les sédiments prélevés en k22.



k49															
tranche (cm)	COT (%)	S (kg/kg)	C/N	Fe (%)	$\pm 1\sigma$	Mg (%)	$\pm 1\sigma$	Ca (%)	$\pm 1\sigma$	Al (%)	$\pm 1\sigma$	Na (%)	$\pm 1\sigma$	K (%)	$\pm 1\sigma$
0-3	6			1,7	0,1	0,33	0,03	5,2	0,4	2,1	0,2	0,040	0,003	0,50	0,04
3-5	8			1,7	0,1	0,30	0,02	3,5	0,3	2,0	0,2	0,032	0,003	0,47	0,04
5-8	10			2,0	0,2	0,39	0,03	4,7	0,4	2,6	0,2	0,044	0,004	0,63	0,05
8-10	9			1,8	0,1	0,35	0,03	4,2	0,3	2,4	0,2	0,038	0,003	0,57	0,05
10-12	9			1,8	0,1	0,34	0,03	4,1	0,3	2,1	0,2	0,032	0,003	0,46	0,04
12-14	9			1,8	0,1	0,35	0,03	4,1	0,3	2,4	0,2	0,039	0,003	0,57	0,05
14-16	9			1,9	0,2	0,35	0,03	4,1	0,3	2,4	0,2	0,041	0,003	0,57	0,05
16-18	11	ind.	ind.	2,1	0,2	0,38	0,03	4,3	0,3	2,5	0,2	0,039	0,003	0,58	0,05
18-20	8			2,0	0,2	0,34	0,03	3,4	0,3	2,4	0,2	0,035	0,003	0,58	0,05
20-22	9			2,0	0,2	0,35	0,03	3,8	0,3	2,2	0,2	0,032	0,003	0,47	0,04
22-24	7			2,0	0,2	0,34	0,03	3,4	0,3	2,3	0,2	0,033	0,003	0,55	0,04
24-26	0,1			1,6	0,1	0,42	0,03	4,9	0,4	1,6	0,1	0,018	0,001	0,47	0,04
26-28	ind.			1,6	0,1	0,39	0,03	5,5	0,4	1,4	0,1	0,014	0,001	0,43	0,03
28-30	2			1,7	0,1	0,40	0,03	4,5	0,4	1,7	0,1	0,021	0,002	0,47	0,04
30-32	1,2			1,8	0,1	0,38	0,03	5,0	0,4	1,7	0,1	0,021	0,002	0,45	0,04

Tableau 20 : Concentrations en éléments majeurs (m.s.) dans les sédiments prélevés en k49.

### 2.1.5 Facteur d'Enrichissement Géochimique (FEG) et Index d'accumulation géochimique ( $I_{géo}$ )

site	profondeur cm	FEG As	FEG Cr	FEG Zn	$I_{géo}$ Zn	FEG Pb	$I_{géo}$ Pb	FEG Cd	$I_{géo}$ Cd	FEG Cu	$I_{géo}$ Cu
k06	0-4	0.1	1.2	17	4	10	3	2	1	13	4
	4-6	0.4	0.9	11	4	19	5	2	1	5	3
	6-8	0.4	0.8	11	4	14	4	2	2	5	3
	8-10	0.3	0.8	11	4	11	4	2	2	4	3
	10-12	0.5	1.0	19	5	24	5	5	3	7	3
	12-14	0.4	1.0	24	5	19	5	4	2	9	4
	14-16	0.4	0.7	9	4	12	5	1	1	3	3
	16-18	0.3	0.5	4	3	4	3	0	-1	2	2
	18-20	0.2	0.5	2	2	2	2	0	-1	1	1
	20-22	0.2	0.5	1	2	1	1	0	-1	1	1
	22-24	0.3	0.5	2	1	2	1	0	-1	2	1
	24-26	0.3	0.5	2	2	2	2	0	-1	2	2
	26-28	0.5	0.5	3	2	3	2	0	-1	2	2
	28-30	0.6	0.5	3	2	3	2	0	-1	2	2
	30-32	0.5	0.5	3	2	2	2	0	-1	2	2
	32-34	0.6	0.5	3	2	3	2	0	-1	2	2
	34-36	0.6	0.5	4	3	4	3	0	-1	2	2
36-38	0.5	0.5	3	3	3	3	0	-1	2	2	
k09	0-2	0.4	1.0	17	5	14	5	5	3	8	4
	2-4	0.3	1.2	16	5	12	4	3	3	10	4
	4-6	0.3	1.2	17	5	12	5	3	2	10	4
	6-8	0.4	1.2	21	5	14	4	3	2	13	4
	8-10	0.3	1.2	19	5	14	4	3	2	12	4
	10-12	0.3	1.2	22	5	13	4	3	2	13	4
	12-14	0.3	1.2	21	5	14	4	3	2	12	4
	14-16	0.3	1.2	22	5	13	4	3	2	12	4
	16-18	0.4	1.4	26	5	15	4	4	3	13	4
	18-20	0.5	1.4	23	5	17	4	5	3	11	4
	20-22	0.5	1.2	21	5	16	5	4	3	10	4
	22-24	0.4	1.2	19	5	14	5	4	3	10	4
	24-26	0.4	1.2	21	5	15	5	5	3	11	4
	26-28	0.4	1.2	22	5	16	5	5	3	11	4
	28-30	0.4	1.3	22	5	16	5	5	3	11	4
	30-32	1.1	1.5	35	5	23	5	4	2	11	4
	32-34	2.0	1.4	47	6	32	5	3	2	9	3
	34-36	0.7	0.7	7	4	6	3	1	1	3	2
	36-38	1.5	1.2	24	5	20	4	2	1	5	3
	38-40	1.0	0.8	9	4	8	4	1	1	4	2
40-42	0.5	0.5	5	3	10	4	1	1	3	2	
42-44	0.6	0.6	7	3	11	4	1	1	3	2	
44-46	0.6	0.5	6	3	11	4	1	1	3	2	
46-48	0.6	0.6	7	3	12	4	1	1	3	2	
48-50	0.7	0.6	7	4	12	5	1	1	3	2	
50-52	0.9	0.7	8	4	13	4	1	1	4	2	

Tableau 21 : FEG et  $I_{géo}$  dans les sédiments prélevés en k06 et k09.



site	profondeur cm	FEG As	FEG Cr	FEG Zn	Igéo Zn	FEG Pb	Igéo Pb	FEG Cd	Igéo Cd	FEG Cu	Igéo Cu
k13	0-2	0.5	1.1	16	5	11	4	4	3	9	4
	2-4	0.4	1.2	20	5	14	4	4	3	11	4
	4-6	0.4	1.2	21	5	13	4	5	3	11	4
	6-8	0.0	1.3	24	5	15	5	5	3	12	4
	8-10	0.6	1.2	25	5	16	5	6	3	13	4
	10-12	0.6	1.2	25	5	17	5	6	3	12	4
	12-14	0.0	1.2	24	5	16	5	6	3	12	4
	14-16	0.6	1.2	22	5	16	5	5	3	11	4
	16-18	0.7	1.2	22	5	16	5	4	3	11	4
	18-20	0.8	1.2	19	5	15	4	4	2	8	4
	20-22	0.0	1.9	18	3	14	3	5	1	4	1
	22-24	0.0	1.4	2	-1	1	-2	2	-1	1	-2
	24-26	0.0	1.3	1	-1	0	-3	2	-1	1	-2
	26-28	0.0	1.3	1	-1	0	-3	2	-1	1	-1
28-30	0.0	1.3	1	-1	1	-2	2	-1	1	-1	
30-32	0.0	1.3	1	-2	0	-4	1	-1	0	-3	
k16	0-2	0.0	0.9	17	5	10	4	20	5	6	3
	2-4	1.4	1.0	19	5	15	4	21	5	7	3
	4-6	0.0	0.8	20	5	21	5	15	4	6	3
	6-8	1.6	1.0	25	5	20	5	25	5	6	3
	8-10	2.2	1.3	33	6	22	5	31	6	9	4
	10-12	1.1	1.5	29	5	20	5	21	5	10	4
	12-14	1.2	1.1	26	5	17	5	26	5	8	4
	14-16	3.7	0.9	71	7	53	6	87	7	9	4
16-18	4.7	0.6	85	7	55	7	107	8	9	4	
k22	0-2	0.2	0.8	15	5	8	4	31	6	4	3
	2-4	0.2	0.9	16	5	9	4	25	5	5	3
	4-6	0.2	1.0	21	5	11	4	23	5	5	3
	6-8	0.3	1.0	18	5	10	4	12	4	5	3
	8-10	0.5	1.1	25	6	15	5	19	5	10	4
	10-12	0.7	1.2	27	6	17	5	21	5	10	4
	12-14	0.6	1.2	27	5	16	5	18	5	10	4
	14-16	0.7	1.3	28	5	17	5	18	5	11	4
	16-18	0.6	1.2	26	5	15	5	16	5	10	4
	18-20	0.9	1.2	29	6	17	5	29	6	10	4
	20-22	0.7	1.0	33	6	18	5	24	6	10	4
	22-24	0.5	1.0	21	5	13	5	12	4	10	4
	24-26	0.6	1.0	22	5	13	5	14	5	10	4
	26-28	0.8	1.0	24	6	12	5	23	6	9	4

Tableau 22 : FEG et Igéo dans les sédiments prélevés en k13, k16 et k22.

## Annexe 2

site	profondeur cm	FEG As	FEG Cr	FEG Zn	<i>Igéo Zn</i>	FEG Pb	<i>Igéo Pb</i>	FEG Cd	<i>Igéo Cd</i>	FEG Cu	<i>Igéo Cu</i>	
k36	0-2	0.2	0.9	16	5	8	4	33	6	4	3	
	2-4	0.2	0.9	16	5	8	4	30	6	4	3	
	4-6	0.2	0.9	16	5	8	4	24	5	4	3	
	6-8	0.2	0.9	16	5	8	4	21	5	4	3	
	8-10	0.2	0.9	17	5	8	4	34	6	4	3	
	10-12	0.2	0.9	18	5	8	4	63	7	4	3	
	12-14	0.3	0.9	17	5	9	4	17	5	5	3	
	14-16	0.8	1.1	30	6	18	5	27	6	10	4	
	16-18	0.8	1.2	31	6	18	5	28	6	10	4	
	18-20	0.8	1.2	30	6	17	5	28	6	10	4	
	20-22	0.8	1.2	30	6	17	5	27	6	9	4	
	22-24	0.8	1.2	30	6	17	5	28	6	9	4	
	24-26	0.9	1.3	32	6	18	5	35	6	10	4	
	26-28	0.8	1.3	34	6	19	5	37	6	11	4	
	28-30	1.1	1.3	34	6	18	5	39	6	10	4	
	30-32	0.8	1.1	30	6	16	5	34	6	10	4	
32-34	1.1	1.1	32	6	17	5	39	6	10	4		
34-36	1.3	1.2	34	6	18	5	38	6	11	4		
k47	0-2	0.9	0.8	14	5	8	4	27	6	4	3	
	2-4	0.7	0.9	15	5	8	4	33	6	4	3	
	4-6	0.8	0.9	17	5	8	4	63	7	4	3	
	6-8	0.7	0.8	15	5	7	4	38	6	3	3	
	8-10	0.8	0.9	14	5	7	4	30	6	4	3	
	10-12	0.7	0.9	12	4	7	4	12	4	3	2	
	12-14	0.8	0.9	12	4	7	3	9	4	3	2	
	14-16	0.8	0.9	13	4	5	3	9	4	2	2	
	16-18	1.0	0.9	15	5	9	4	13	4	4	3	
	18-20	1.0	0.8	13	4	8	3	12	4	4	2	
	20-22	0.9	0.9	7	3	4	2	7	3	2	1	
	22-24	0.9	1.0	2	1	1	0	2	0	1	0	
	24-26	1.0	1.1	2	0	1	0	1	-1	1	0	
	26-28	1.1	1.2	2	0	1	-1	1	-1	1	-1	
	28-30	1.1	1.1	1	0	1	-1	1	-1	1	-1	
	30-32											
	32-34											
	34-36											
	36-38											
	38-40											
	40-42											
	42-44											
	44-46											
	46-48											
	48-50											
50-52												
52-54												
54-56												
k49	0-3	0.7	0.9	14	4	7	3	17	4	4	2	
	3-5	1.1	1.1	27	5	12	4	24	5	8	3	
	5-8	1.2	1.2	30	6	13	4	30	6	8	4	
	8-10	1.1	1.1	25	5	12	4	27	5	8	4	
	10-12	1.3	1.2	29	5	14	4	26	5	9	4	
	12-14	1.2	1.1	28	5	13	4	22	5	8	4	
	14-16	1.3	1.2	28	5	13	4	25	5	8	4	
	16-18	1.3	1.1	27	5	13	4	29	5	9	4	
	18-20	1.3	1.0	23	5	10	4	32	6	7	3	
	20-22	1.5	1.3	31	5	13	4	47	6	9	4	
	22-24	1.5	1.3	27	5	11	4	45	6	7	3	
	24-26	1.3	1.1	13	4	5	2	18	4	3	2	
	26-28	1.2	1.2	12	3	5	2	18	4	2	1	
	28-30	1.2	1.2	17	4	7	3	24	5	5	2	
30-32	1.5	1.5	23	5	10	3	41	5	6	3		

Tableau 23 : FEG et *Igéo* dans les sédiments prélevés en k36, k47 et k49.

## 2.2 Les « petites » carottes de sédiments

### 2.2.1 Activités et stocks du $^7\text{Be}$

Campagne n°	date	$^7\text{Be}$ (Bq/kg m.s.)						masse totale (g m.s.)						stock TOTAL $^7\text{Be}$ (Bq/cm $^2$ m.s.)						stock TOTAL $^7\text{Be}$ (Bq/cm $^2$ m.s.)									
		0-3cm		3-5cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		k13		k16		k36		0-3cm		3-5cm		k13		k16		k36			
		k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36				
1	19/04/05	0-1	2.4	45.7	21.1			36.3	36	27			0.003	0.064	0.023			0.048	0.151	0.043									
		1-2	16.4	31.0	5.8			42.1	42	33			0.027	0.051	0.008			0.034	0.135	0.034									
		2-3	1.7	10.2	2.5			46.9	49.9	36.4			0.003	0.020	0.003														
		3-4	1.7	5.1	2.0			44.2	54.5	39.2			0.003	0.011	0.003														
		4-5	7.0	2.0	3.3			41.9	58.4	45.1			0.012	0.005	0.006					0.014	0.016	0.009							
		a	42.13	15.15	11.79	38.13	4.07	3.58	18.10	19.10	16.30	15.60	15.50	15.30	0.030	0.011	0.008	0.023	0.002	0.053	0.014	0.010							
		b	7.90	60.08	13.60	4.40	18.41	5.64	21.40	14.20	22.10	11.30	14.00	14.60	0.007	0.033	0.012	0.002	0.010	0.009	0.044	0.015							
c	28.08	36.82	16.59	10.55	7.31	2.56	21.90	17.10	20.90	15.80	14.50	15.00	0.024	0.025	0.014	0.007	0.004	0.031	0.029	0.015									
moy	26	37	14	18	10	4	20	17	20	14	14.7	15.0	0.02	0.02	0.01	0.01	0.006	0.002	0.03	0.03	0.013								
±	17	22	2	18	8	2	2	2	3	3	0.8	0.4	0.01	0.01	0.00	0.01	0.004	0.001	0.02	0.01	0.003								
dispersion: %	66	60	17	102	76	40	10	15	15	18	5	2	60	48	28	106	72	38	72	52	23								
3	16/06/05	a	17.67	54.85	25.70	7.38	31.97	5.72	17.90	16.20	16.60	13.30	16.60	0.012	0.035	0.017	0.004	0.021	0.016	0.056	0.020								
		b	18.52	23.69	38.82	2.79	12.87	11.75	18.90	16.90	17.20	14.00	17.20	0.014	0.016	0.026	0.002	0.009	0.015	0.024	0.034								
		c	22.07	40.62	21.38	6.10	15.00	10.34	13.60	17.10	18.40	11.60	18.40	0.012	0.027	0.015	0.003	0.011	0.007	0.015	0.038	0.022							
		moy	19	40	29	5	20	9	17	16.7	17.4	13	17.4	16.4	0.013	0.03	0.019	0.003	0.013	0.006	0.015	0.04	0.025						
		±	2	16	9	2	10	3	3	0.5	0.9	1	0.9	0.3	0.001	0.01	0.006	0.001	0.006	0.001	0.02	0.02	0.007						
		dispersion: %	12	39	32	44	52	34	17	3	5	10	5	2	8	37	30	43	48	35	6	40	29						
		4	06/07/05	a	75.05	73.30	167.94	23.81	21.79	45.80	16.80	18.00	15.70	16.50	19.80	0.049	0.052	0.103	0.015	0.017	0.065	0.069	0.131						
b	38.61			36.85	32.79	9.13	7.87	27.75	19.80	19.90	15.90	15.80	18.60	0.030	0.029	0.020	0.006	0.006	0.036	0.034	0.035								
c	247.60			93.66	113.55	46.03	35.07	36.05	15.70	18.90	16.30	18.60	21.40	16.00	0.152	0.069	0.073	0.034	0.029	0.186	0.099	0.095							
moy	120			68	105	26	22	37	17	19	16.0	17	20	15	0.08	0.05	0.07	0.02	0.02	0.10	0.07	0.09							
±	112			29	68	19	14	9	2	1	0.3	1	1	1	0.07	0.02	0.04	0.01	0.01	0.08	0.03	0.05							
dispersion: %	93			42	65	71	63	25	12	5	2	9	7	10	85	41	64	78	68	31	83	48	56						
5	17/08/05			a	52.14	48.20	76.75	26.05	9.98	29.40	14.80	20.60	17.20	15.00	21.80	0.030	0.039	0.052	0.015	0.009	0.046	0.047	0.069						
		b	46.15	68.56	104.50	17.59	22.38	126.40	17.50	17.20	14.70	16.50	17.70	0.032	0.046	0.060	0.011	0.016	0.043	0.062	0.122								
		c	70.50	59.07	129.60	41.83	29.32	118.00	16.50	19.50	11.80	18.80	19.90	12.80	0.046	0.045	0.060	0.031	0.023	0.076	0.068	0.119							
		moy	56	59	104	28	21	91	16	19	15	17	20	13	0.036	0.043	0.057	0.02	0.016	0.06	0.06	0.10							
		±	13	10	26	12	10	54	1	2	3	2	2	1	0.008	0.004	0.005	0.01	0.007	0.02	0.01	0.03							
		dispersion: %	23	17	26	43	48	59	8	9	19	11	10	10	24	9	8	54	46	54	34	18	29						

Tableau 24 : Activités (Bq.kg $^{-1}$  m.s.) et stock total de  $^7\text{Be}$  (Bq.cm $^{-2}$  m.s.) dans les sédiments prélevés entre avril et août 2005.

Campagne n°	date	<sup>7</sup> Be (Bq/kg m.s.)						masse totale (g m.s.)						stock TOTAL <sup>7</sup> Be (Bq/cm² m.s.)						stock TOTAL <sup>7</sup> Be (Bq/cm² m.s.)					
		0-3cm		3-5cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		0-5 cm					
		k13	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36				
6	a	52.19	34.16	72.01	10.74	11.28	22.94	19.10	27.90	16.70	14.20	20.60	15.80	0.039	0.037	0.047	0.006	0.009	0.014	0.045	0.046	0.061			
	b	25.42	37.39	47.74	8.52	18.39	23.44	49.30	26.60	18.90	12.30	23.30	14.70	0.049	0.039	0.035	0.004	0.017	0.014	0.053	0.056	0.049			
	c	46.33		36.33	8.73		16.33	17.90	20.20		13.30	15.90		0.033	0.029		0.005	0.010		0.037		0.039			
	moy	41	36	52	9	15	21	29	27.3	19	13	22	15.5	0.040	0.038	0.037	0.005	0.013	0.013	0.045	0.051	0.05			
dispersion: %		14	2	18	1	5	4	18	0.9	2	1	2	0.7	0.008	0.001	0.009	0.001	0.005	0.002	0.008	0.007	0.01			
dispersion: %		34	6	35	13	34	19	62	3	10	7	9	4	21	3	25	20	42	17	18	13	23			
7	a	23.62	53.06	43.92	2.44	7.05	18.41	19.40	20.90	14.60	12.10	32.60	14.70	0.018	0.043	0.025	0.0012	0.009	0.011	0.019	0.052	0.036			
	b	2.28	45.37	37.12	1.79	15.04	22.58	16.20	21.50	15.30	13.50	22.30	16.50	0.001	0.038	0.022	0.0009	0.013	0.015	0.002	0.051	0.037			
	c	30.00	53.73	60.62	28.60	25.80		21.80	18.70	12.50	12.10	17.90	18.80	0.026	0.039	0.030		0.020	0.019	0.026	0.059	0.049			
	moy	19	51	47	2.1	17	22	19	20	14	12.6	24	17	0.015	0.040	0.026	0.0011	0.014	0.015	0.02	0.054	0.040			
dispersion: %		15	5	12	0.5	11	4	3	1	1	0.8	8	2	0.012	0.003	0.004	0.0001	0.006	0.004	0.01	0.004	0.007			
dispersion: %		78	9	26	22	64	17	15	7	10	6	31	12	82	7	15	14	40	29	76	8	18			
8	a	40.45	60.64	58.45	5.53	22.65	23.19	19.20	16.90	16.80	13.40	11.70	18.30	0.030	0.040	0.039	0.003	0.010	0.017	0.033	0.051	0.055			
	b	39.06	57.02	36.44	5.61	34.11	19.87	18.50	16.20	14.10	11.40	13.60	13.90	0.028	0.036	0.020	0.003	0.018	0.011	0.031	0.054	0.031			
	c	34.66	39.56	64.83	14.75	36.49	58.29	14.70	14.30	14.50	12.20	10.10	12.30	0.020	0.022	0.037	0.007	0.014	0.028	0.027	0.037	0.065			
	moy	38	52	53	9	31	34	17	16	15	12	12	15	0.026	0.033	0.03	0.004	0.014	0.019	0.030	0.047	0.05			
dispersion: %		3	11	15	5	7	21	2	1	1	1	2	3	0.006	0.009	0.01	0.003	0.004	0.009	0.003	0.009	0.02			
dispersion: %		8	22	28	61	24	63	14	9	70	8	15	21	21	29	32	61	27	47	10	20	35			
9	a	14.76	27.16	25.44	3.29	12.72	3.60	17.40	20.90	16.60	12.20	16.10	15.50	0.010	0.022	0.017	0.0016	0.008	0.002	0.012	0.030	0.019			
	b	14.82	25.64	23.17	1.97	13.51	14.47	18.00	16.10	16.50	13.10	19.00	13.70	0.010	0.016	0.015	0.0010	0.010	0.008	0.011	0.026	0.023			
	c	24.67	18.11	2.79	2.19	10.09	9.80	16.90	19.20	17.00	13.60	16.90	14.20	0.016	0.014	0.002	0.0012	0.007	0.005	0.018	0.020	0.007			
	moy	18	24	17	2.5	12	9	17.4	19	16.7	13.0	17	14.5	0.012	0.017	0.011	0.0013	0.008	0.005	0.014	0.026	0.016			
dispersion: %		6	5	12	0.7	2	5	0.6	2	0.3	0.7	1	0.9	0.004	0.004	0.008	0.0003	0.002	0.003	0.003	0.005	0.008			
dispersion: %		32	20	73	28	15	59	3	13	2	5	9	6	29	26	72	23	21	55	25	20	49			
10	a	9.86	22.60	23.23	2.44	10.85	2.08	21.50	16.10	14.20	13.00	11.70	13.40	0.008	0.014	0.013	0.001	0.005	0.001	0.010	0.019	0.014			
	b	2.69	12.55	13.50	2.18	6.61	3.04	19.00	16.30	15.20	12.80	16.20	14.30	0.002	0.008	0.008	0.001	0.004	0.002	0.003	0.012	0.010			
	c	1.77	21.09	18.62	11.92	2.51	20.76	14.70	17.10	13.80	10.20	12.00	12.10	0.001	0.014	0.010	0.005	0.001	0.010	0.006	0.015	0.020			
	moy	5	19	18	6	7	9	18	16.5	14.4	12	13	13	0.004	0.012	0.010	0.002	0.003	0.004	0.006	0.016	0.015			
dispersion: %		4	5	5	6	4	11	3	0.5	0.7	2	3	1	0.004	0.004	0.002	0.002	0.002	0.005	0.003	0.004	0.005			
dispersion: %		93	29	26	101	63	122	19	3	5	13	19	8	105	29	24	88	58	116	53	23	35			

Tableau 25 : Activités (Bq.kg<sup>-1</sup> m.s.) et stock total de <sup>7</sup>Be (Bq.cm<sup>-2</sup> m.s.) dans les sédiments prélevés entre septembre 2005 et mars 2006.

Campagne n°	date	<sup>7</sup> Be (Bq/kg m.s.)						masse totale (g m.s.)						stock TOTAL <sup>7</sup> Be (Bq/cm <sup>2</sup> m.s.)						stock TOTAL <sup>7</sup> Be (Bq/cm <sup>2</sup> m.s.)					
		0-3cm		3-5cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		0-3cm		3-5cm		0-5 cm					
		k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36	k13	k16	k36			
11	22/03/06	a	23.23	13.31	12.42	2.23	6.38	2.62	15.60	20.30	17.70	12.50	17.70	13.70	0.014	0.011	0.009	0.001	0.004	0.001	0.015	0.015	0.010		
		b	25.08	32.06	14.88	2.55	7.49	3.10	15.30	16.30	16.10	12.10	18.00	14.80	0.015	0.020	0.009	0.001	0.005	0.002	0.016	0.026	0.011		
		c	11.21	22.54	21.99	9.33	4.76	8.43	16.90	15.80	13.90	14.60	16.90	13.50	0.007	0.014	0.012	0.005	0.003	0.004	0.013	0.017	0.016		
		moy	20	23	16	5	6	5	15.9	17	16	13	17.5	14.0	0.012	0.015	0.010	0.003	0.004	0.003	0.015	0.019	0.013		
		±	8	9	5	4	1	3	0.9	2	2	1	0.6	0.7	0.004	0.005	0.002	0.002	0.001	0.002	0.002	0.006	0.003		
dispersion:	%	38	41	30	85	22	68	5	14	12	10	3	5	34	34	18	95	25	65	12	30	27			
12	26/04/06	a	4.95	7.06	15.23	9.78	2.05	2.58	16.30	16.70	13.90	11.50	18.80	11.30	0.003	0.005	0.008	0.004	0.0015	0.001	0.008	0.006	0.009		
		b	7.72	10.09	33.73	2.36	2.09	11.42	14.50	23.40	13.00	13.20	17.70	12.40	0.004	0.009	0.017	0.001	0.0015	0.006	0.006	0.011	0.023		
		c	2.10	16.28	12.41	2.75	2.14	2.65	16.10	17.70	14.30	10.60	15.20	12.00	0.001	0.011	0.007	0.001	0.0013	0.001	0.002	0.013	0.008		
		moy	5	11	20	5	2.09	6	16	19	13.7	12	17	11.9	0.003	0.008	0.011	0.002	0.0014	0.003	0.005	0.010	0.013		
		±	3	5	12	4	0.04	5	1	4	0.7	1	2	0.6	0.002	0.003	0.006	0.002	0.0001	0.003	0.003	0.003	0.008		
dispersion:	%	57	42	57	84	2	92	6	19	5	11	11	5	52	41	51	83	9	95	49	34	60			
13	31/05/06	a	8.96	117.82	45.65	2.35	96.38	9.50	13.30	13.40	12.60	11.50	12.80	12.70	0.005	0.062	0.023	0.001	0.048	0.005	0.006	0.110	0.027		
		b	26.14	111.32	61.68	5.55	43.75	14.04	16.20	13.50	12.60	11.50	13.10	12.30	0.017	0.059	0.030	0.003	0.022	0.007	0.019	0.081	0.037		
		c	29.46	137.73	25.85	1.69	59.27	8.95	19.30	13.30	14.00	11.40	13.70	12.50	0.022	0.072	0.014	0.001	0.032	0.004	0.023	0.104	0.019		
		moy	22	122	44	3	66	11	16	13.4	13.1	11.5	13.2	12.5	0.015	0.064	0.022	0.001	0.03	0.005	0.016	0.10	0.028		
		±	11	14	18	2	27	3	3	0.1	0.8	0.1	0.5	0.2	0.009	0.007	0.008	0.001	0.01	0.001	0.009	0.02	0.009		
dispersion:	%	51	11	40	65	41	26	18	0.7	6	0.5	3	2	62	11	36	65	38	24	57	15	34			
14	05/07/06	a	61.16	22.97	38.63	12.90	1.86	16.84	17.00	26.10	14.10	12.50	20.00	12.40	0.041	0.024	0.021	0.006	0.001	0.008	0.047	0.025	0.030		
		b	62.94	75.26	55.29	31.87	13.73	2.71	16.10	17.40	16.20	10.10	15.00	15.50	0.040	0.051	0.035	0.013	0.008	0.002	0.052	0.059	0.037		
		c	46.59	110.35	9.34	18.63	29.69	41.71	19.70	15.70	16.40	12.50	14.20	15.10	0.036	0.068	0.006	0.009	0.017	0.025	0.045	0.084	0.031		
		moy	57	70	34	21	15	20	18	20	16	12	16	14	0.039	0.05	0.02	0.009	0.009	0.01	0.048	0.06	0.032		
		±	9	44	23	10	14	20	2	6	1	1	3	2	0.003	0.02	0.01	0.003	0.008	0.01	0.004	0.03	0.004		
dispersion:	%	16	63	68	46	93	97	11	28	8	12	19	12	6	47	70	34	87	103	8	53	12			
15	17/08/06	a	37.03	52.30	10.61	2.28	13.90	2.08	12.80	19.70	19.60	5.80	16.20	16.70	0.019	0.040	0.008	0.0005	0.009	0.001	0.019	0.049	0.010		
		b	33.61	60.27	9.58	3.08	7.73	1.62	12.60	17.90	20.90	6.70	16.00	14.30	0.017	0.042	0.008	0.0008	0.005	0.001	0.017	0.047	0.009		
		c	28.14	100.01	2.07	2.20	31.39	5.40	10.70	14.00	17.90	7.50	11.90	14.80	0.012	0.055	0.001	0.0006	0.015	0.003	0.012	0.070	0.005		
		moy	33	71	7	2.5	18	3	12	17	19	6.7	15	15	0.016	0.046	0.006	0.0007	0.009	0.002	0.016	0.06	0.008		
		±	4	26	5	0.5	12	2	1	3	2	0.9	2	1	0.003	0.008	0.004	0.0001	0.005	0.001	0.003	0.01	0.003		
dispersion:	%	14	36	63	19	69	68	10	17	8	13	17	8	22	17	65	22	52	65	21	22	22			

Tableau 26 : Activités (Bq.kg<sup>-1</sup> m.s.) et stock total de <sup>7</sup>Be (Bq.cm<sup>-2</sup> m.s.) dans les sédiments prélevés entre avril et août 2006.

## 2.2.2 Distribution granulométrique

site	diamètre, $\mu\text{m}$	Campagne n°2 du 19/5/5														
		réplicat 0-3 cm			0-3 cm			réplicat 3-5 cm			3-5 cm					
		a	b	c	moyenne	$\pm$	a	b	c	moyenne	$\pm$	a	b	c	moyenne	$\pm$
K13	0< $\phi$ <0.2	0.19	0.17	0.20	0.19	0.02	0.16	0.12	0.16	0.15	0.02					
	0.2< $\phi$ <1	0.90	0.99	0.91	0.93	0.05	0.77	0.93	0.94	0.88	0.09					
	1< $\phi$ <5	2.4	3.0	2.4	2.6	0.3	2.2	2.8	2.8	2.6	0.3					
	5< $\phi$ <15	9.0	11	9	9	1	8	11	11	10	1					
	15< $\phi$ <50	39	38	36	37	2	33	40	39	37	4					
	50< $\phi$ <400	41	36	42	40	3	39	35	39	38	3					
	400< $\phi$ <2000	8	11	10	10	2	16	11	7	11	5					
$\phi \leq 50$ ( $d_{50}$ )	<b>51</b>	<b>53</b>	<b>48</b>	<b>50</b>	<b>3</b>	<b>44</b>	<b>54</b>	<b>53</b>	<b>51</b>	<b>6</b>						
K16	0< $\phi$ <0.2	0.2	0.2	0.2	0.20	0.01	0.3	0.3	0.3	0.32	0.02					
	0.2< $\phi$ <1	0.9	0.9	0.9	0.91	0.03	1	1	1	1.09	0.03					
	1< $\phi$ <5	2.3	3	2	2.4	0.2	2	3	2	2.49	0.05					
	5< $\phi$ <15	9.4	10	9	9.3	0.5	10	10	10	9.9	0.3					
	15< $\phi$ <50	40.3	42	38	40	2	35	40	43	39	4					
	50< $\phi$ <400	40.9	41	44	42	2	44	40	39	41	3					
	400< $\phi$ <2000	5.9	4	5	5	1	7	6	5	6	1					
$\phi \leq 50$ ( $d_{50}$ )	<b>53</b>	<b>56</b>	<b>50</b>	<b>53</b>	<b>3</b>	<b>49</b>	<b>54</b>	<b>57</b>	<b>53</b>	<b>4</b>						
K36	0< $\phi$ <0.2	0.3	0.36	0.33	0.34	0.02	0.38	0.33	0.34	0.35	0.02					
	0.2< $\phi$ <1	1.4	1.39	1.47	1.42	0.04	1.7	1.3	1.5	1.5	0.2					
	1< $\phi$ <5	4	3.6	4.0	3.9	0.2	4.9	3.5	4.6	4.3	0.7					
	5< $\phi$ <15	17	15	17	16	1	19	15	18	17	2					
	15< $\phi$ <50	46	44	47	45	2	45	43	42	43	2					
	50< $\phi$ <400	27	32	28	29	3	27	32	28	29	2					
	400< $\phi$ <2000	5	4	3	4	1	2	5	5	4	2					
$\phi \leq 50$ ( $d_{50}$ )	<b>68</b>	<b>64</b>	<b>70</b>	<b>67</b>	<b>3</b>	<b>71</b>	<b>63</b>	<b>67</b>	<b>67</b>	<b>4</b>						

Tableau 27 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les sédiments de surface (0-3 et 3-5 cm) prélevés en K13, K16 et K36 en mai 2005.

Campagne n°3 du 16/6/5												
site	diamètre, µm	réplicat 0-3 cm			0-3 cm			réplicat 3-5 cm			3-5 cm	
		a	b	c	moyenne	±	a	b	c	moyenne	±	
K13	0<Ø<0.2	0.16	0.17	0.13	0.15	0.02	0.13	0.13	0.16	0.14	0.01	
	0.2<Ø<1	1.00	0.86	0.90	0.92	0.07	1.1	1.0	0.7	0.9	0.2	
	1<Ø<5	2.9	2.3	2.6	2.6	0.3	3.3	2.9	3.0	3.1	0.2	
	5<Ø<15	11.3	9.5	10.3	10.3	0.9	13.0	11.6	12.5	12.4	0.8	
	15<Ø<50	39.4	38.4	39.0	38.9	0.5	43	39	42	41	2	
	50<Ø<400	36	41	37	38	3	31	34	34	33	2	
	400<Ø<2000	9	8	10	9	1	9	11	8	9	1	
	<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>55</b>	<b>51</b>	<b>53</b>	<b>53</b>	<b>2</b>	<b>60</b>	<b>55</b>	<b>58</b>	<b>58</b>	<b>3</b>	
	0<Ø<0.2	0.15	0.14	0.08	0.12	0.03	0.19	0.27	0.27	0.24	0.05	
	0.2<Ø<1	0.30	0.27	0.28	0.29	0.02	0.7	1.0	1.0	0.9	0.2	
1<Ø<5	1.88	1.73	1.85	1.82	0.08	2.1	2.5	2.4	2.3	0.2		
5<Ø<15	9.1	8.6	8.7	8.8	0.3	9.9	10.5	10.4	10.3	0.3		
15<Ø<50	39	37	40	39	1	41	38	40	40	1		
50<Ø<400	44.9	44.1	43.3	44.1	0.8	40.0	39.2	39.8	39.7	0.4		
400<Ø<2000	4	8	6	6	2	7	8	6	7	1		
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>51</b>	<b>48</b>	<b>51</b>	<b>50</b>	<b>2</b>	<b>53</b>	<b>53</b>	<b>55</b>	<b>54</b>	<b>2</b>		
K36	0<Ø<0.2	0.33	0.21	0.26	0.26	0.06	0.17	0.25	0.29	0.24	0.06	
	0.2<Ø<1	1.39	1.32	1.29	1.33	0.06	1.33	1.37	1.30	1.33	0.04	
	1<Ø<5	3.7	3.8	3.6	3.7	0.1	4.1	4.1	3.8	4.0	0.2	
	5<Ø<15	17.2	17.4	16.5	17.0	0.5	18	18	16	17	1	
	15<Ø<50	47	51	46	48	2	43	46	38	42	4	
	50<Ø<400	27	26	29	27	2	30	26	35	30	4	
	400<Ø<2000	3	1	3	2	1	4	4	6	5	1	
	<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>70</b>	<b>73</b>	<b>68</b>	<b>70</b>	<b>3</b>	<b>66</b>	<b>70</b>	<b>59</b>	<b>65</b>	<b>5</b>	

Tableau 28 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les sédiments de surface (0-3 et 3-5 cm) prélevés en K13, K16 et K36 en juin 2005.

Campagne n°4 du 6/7/5													
site	diamètre, µm	réplicat 0-3 cm			0-3 cm			réplicat 3-5 cm			3-5 cm		
		a	b	c	moyenne	±	a	b	c	moyenne	±		
K13	0<Ø<0.2	0.246	0.259		0.252	0.009	0.22	0.17	0.21	0.20	0.03		
	0.2<Ø<1	0.82	0.91		0.86	0.06	0.79	0.83	0.76	0.79	0.04		
	1<Ø<5	1.9	2.0		2.0	0.1	1.8	2.2	1.7	1.9	0.2		
	5<Ø<15	7.1	8.3		7.7	0.9	7.4	8.8	7.4	7.9	0.8		
	15<Ø<50	32	37		35	3	33	36	32	33	2		
	50<Ø<400	43.3	42.2		42.8	0.8	46	40	41	42	3		
	400<Ø<2000	15	9		12	4	11	12	18	13	4		
Ø≤50 (d <sub>50</sub> )	<b>42</b>	<b>49</b>		<b>45</b>	<b>5</b>	<b>43</b>	<b>48</b>	<b>42</b>	<b>44</b>	<b>3</b>			
K16	0<Ø<0.2	0.3	0.3	0.3	0.272	0.009	0.2	0.2	0.2	0.228	0.006		
	0.2<Ø<1	0.9	0.9	0.9	0.89	0.03	0.72	0.78	0.85	0.79	0.07		
	1<Ø<5	1.96	1.88	1.89	1.91	0.04	1.6	1.7	2.0	1.8	0.2		
	5<Ø<15	8.0	8.1	7.6	7.9	0.3	6	8	9	8	1		
	15<Ø<50	34	36	34	35	1	25	32	35	31	5		
	50<Ø<400	47	44	48	46	2	47	42	40	43	4		
	400<Ø<2000	7.2	8.6	7.7	7.8	0.7	18	16	13	16	3		
Ø≤50 (d <sub>50</sub> )	<b>45</b>	<b>47</b>	<b>44</b>	<b>46</b>	<b>2</b>	<b>34</b>	<b>42</b>	<b>47</b>	<b>41</b>	<b>6</b>			
K36	0<Ø<0.2	0.35	0.41	0.37	0.38	0.03	0.35	0.38	0.37	0.37	0.02		
	0.2<Ø<1	1.30	1.37	1.31	1.33	0.04	1.37	1.44	1.30	1.37	0.07		
	1<Ø<5	3.12	3.19	3.02	3.11	0.09	3.5	3.7	3.2	3.5	0.2		
	5<Ø<15	14.0	15.1	14.2	14.4	0.6	16	17	15	16	1		
	15<Ø<50	46	48	48	48	1	44	49	45	46	2		
	50<Ø<400	30	28	31	30	1	31	26	33	30	3		
	400<Ø<2000	5	3	2	3	1	3.8	2.2	2.5	2.8	0.8		
Ø≤50 (d <sub>50</sub> )	<b>65</b>	<b>68</b>	<b>67</b>	<b>67</b>	<b>2</b>	<b>65</b>	<b>71</b>	<b>65</b>	<b>67</b>	<b>4</b>			

Tableau 29 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les sédiments de surface (0-3 et 3-5 cm) prélevés en k13, k16 et k36 en juillet 2005.



Campagne n°11 du 22/3/16												
site	diamètre, $\mu\text{m}$	réplicat 0-3 cm			0-3 cm		réplicat 3-5 cm			3-5 cm		
		a	b	c	moyenne	$\pm$	a	b	c	moyenne	$\pm$	
K13	0< $\phi$ <0.2	0.10	0.12	0.15	0.12	0.02	0.104	0.097	0.110	0.103	0.006	
	0.2< $\phi$ <1	0.9	1.1	1.0	1.0	0.1	1.53	1.55	1.38	1.48	0.09	
	1< $\phi$ <5	2.7	3.8	3.2	3.2	0.6	5.3	5.5	4.7	5.2	0.4	
	5< $\phi$ <15	10	12	11	11	1	15	17	14	16	1	
	15< $\phi$ <50	31	37	38	36	4	36	39	34	36	3	
	50< $\phi$ <400	33	38	39	37	3	35	33	36	35	2	
400< $\phi$ <2000	22	7	8	12	8	6	4	10	7	3		
$\phi \leq 50$ ( $d_{50}$ )	<b>45</b>	<b>55</b>	<b>53</b>	<b>51</b>	<b>6</b>	<b>6</b>	<b>59</b>	<b>63</b>	<b>54</b>	<b>59</b>	<b>5</b>	
K16	0< $\phi$ <0.2	0.11	0.16	0.12	0.13	0.03	0.144	0.142	0.138	0.141	0.003	
	0.2< $\phi$ <1	1.0	1.1	1.2	1.1	0.1	0.96	1.02	0.97	0.98	0.03	
	1< $\phi$ <5	3.3	3.6	4.1	3.7	0.4	3.09	3.19	3.01	3.10	0.09	
	5< $\phi$ <15	11	11	13	12	1	10.1	10.8	10.0	10.3	0.4	
	15< $\phi$ <50	35	40	40	38	2	30	35	32	32	3	
	50< $\phi$ <400	41	40	37	39	2	41.9	42.5	41.9	42.1	0.4	
400< $\phi$ <2000	8	4	5	6	2	14	7	12	11	3		
$\phi \leq 50$ ( $d_{50}$ )	<b>50</b>	<b>56</b>	<b>58</b>	<b>55</b>	<b>4</b>	<b>44</b>	<b>50</b>	<b>46</b>	<b>47</b>	<b>3</b>		
K36	0< $\phi$ <0.2	0.12	0.17	0.17	0.15	0.03	0.15	0.15	0.15	0.15	0.03	
	0.2< $\phi$ <1	1.1	1.1	1.4	1.2	0.2	1.2	1.2	1.2	1.2	0.2	
	1< $\phi$ <5	3.4	3.0	4.5	3.6	0.7	3.6	3.6	3.6	3.6	0.7	
	5< $\phi$ <15	14	13	18	15	2	15	15	15	15	2	
	15< $\phi$ <50	46	43	53	47	5	47	47	47	47	5	
	50< $\phi$ <400	27	33	23	28	5	28	28	28	28	5	
400< $\phi$ <2000	7.7	6.3	0.7	5	4	5	5	5	5	4		
$\phi \leq 50$ ( $d_{50}$ )	<b>65</b>	<b>60</b>	<b>76</b>	<b>67</b>	<b>8</b>	<b>67</b>	<b>67</b>	<b>67</b>	<b>67</b>	<b>8</b>		

Tableau 30 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les sédiments de surface (0-3 et 3-5 cm) prélevés en k13, k16 et k36 en mars 2006.

Campagne n°12 du 26/4/6													
site	diamètre, µm	réplicat 0-3 cm			0-3 cm			réplicat 3-5 cm			3-5 cm		
		a	b	c	moyenne	±	a	b	c	moyenne	±		
K13	0<Ø<0.2	0.20	0.14	0.16	0.17	0.03	0.08	0.13	0.13	0.11	0.03		
	0.2<Ø<1	1.2	1.1	0.8	1.0	0.2	1.3	1.6	0.9	1.3	0.3		
	1<Ø<5	3.8	3.7	2.3	3.3	0.8	4	6	3	4	1		
	5<Ø<15	13	13	9	12	3	13	18	11	14	4		
	15<Ø<50	36	38	35	36	2	38	40	38	39	1		
	50<Ø<400	42	37	43	41	3	39	32	40	37	4		
	400<Ø<2000	4	7	10	7	3	5	2	7	5	3		
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>54</b>	<b>56</b>	<b>47</b>	<b>52</b>	<b>5</b>	<b>56</b>	<b>66</b>	<b>53</b>	<b>58</b>	<b>7</b>			
K16	0<Ø<0.2	0.11	0.18	0.16	0.15	0.04	0.09	0.11	0.13	0.11	0.02		
	0.2<Ø<1	1.0	0.9	0.8	0.9	0.1	1.09	1.07	1.03	1.06	0.03		
	1<Ø<5	3.5	2.6	2.1	2.7	0.7	3.7	3.6	3.2	3.5	0.3		
	5<Ø<15	13	10	9	11	2	13.9	13.2	12.6	13.3	0.6		
	15<Ø<50	40	36	35	37	2	32	37	40	36	4		
	50<Ø<400	37	44	45	42	4	26	36	37	33	6		
	400<Ø<2000	6	6	9	7	1	23	9	6	13	9		
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>57</b>	<b>50</b>	<b>47</b>	<b>51</b>	<b>5</b>	<b>51</b>	<b>55</b>	<b>57</b>	<b>54</b>	<b>5</b>			
K36	0<Ø<0.2	0.21	0.11	0.09	0.14	0.06	0.11	0.17	0.13	0.14	0.03		
	0.2<Ø<1	1.1	1.2	1.0	1.1	0.1	1.16	1.18	1.32	1.22	0.09		
	1<Ø<5	3.0	3.9	3.1	3.3	0.5	3.5	3.5	4.3	3.8	0.5		
	5<Ø<15	14	18	14	15	2	16	16	19	17	1		
	15<Ø<50	50	53	47	50	3	56	51	53	54	2		
	50<Ø<400	27	24	25	25	2	23	25	22	23	1		
	400<Ø<2000	5	0	9	5	4	0	3	0	1	1		
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>68</b>	<b>76</b>	<b>66</b>	<b>70</b>	<b>6</b>	<b>77</b>	<b>73</b>	<b>78</b>	<b>76</b>	<b>4</b>			

Tableau 31 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les sédiments de surface (0-3 et 3-5 cm) prélevés en K13, K16 et K36 en avril 2006.

Campagne n°13 du 31/5/6												
site	diamètre, µm	réplicat 0-3 cm			0-3 cm			réplicat 3-5 cm			3-5 cm	
		a	b	c	moyenne	±	a	b	c	moyenne	±	
K13	0<Ø<0.2	0.06	0.08	0.07	0.07	0.01	0.14	0.12	0.11	0.13	0.02	
	0.2<Ø<1	0.93	0.91	0.91	0.92	0.01	0.9	0.8	1.0	0.9	0.1	
	1<Ø<5	3.07	2.92	3.00	3.00	0.07	2.8	2.6	3.4	2.9	0.4	
	5<Ø<15	10.31	10.18	10.14	10.21	0.09	10	8	11	10	1	
	15<Ø<50	37	37	33	36	3	34	27	33	31	4	
	50<Ø<400	41	41	44	42	2	44	51	48	48	4	
	400<Ø<2000	7	8	9	8	1	9	10	3	7	4	
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>52</b>	<b>52</b>	<b>47</b>	<b>50</b>	<b>3</b>	<b>47</b>	<b>39</b>	<b>49</b>	<b>45</b>	<b>6</b>		
K16	0<Ø<0.2	0.11	0.09	0.16	0.12	0.03	0.16	0.14	0.16	0.15	0.01	
	0.2<Ø<1	0.81	0.73	0.79	0.78	0.04	0.84	0.79	0.88	0.84	0.05	
	1<Ø<5	2.5	2.3	2.4	2.4	0.1	2.6	2.4	2.8	2.6	0.2	
	5<Ø<15	9.7	8.8	9.2	9.2	0.5	9.9	9.3	10.7	10.0	0.7	
	15<Ø<50	37.2	35.8	35.5	36.2	0.9	34.9	35.5	36.6	35.7	0.8	
	50<Ø<400	46	48	47	47	1	45	48	43	45	3	
	400<Ø<2000	4.2	4.5	5.2	4.6	0.6	7	3	6	5	2	
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>50</b>	<b>48</b>	<b>48</b>	<b>49</b>	<b>2</b>	<b>48</b>	<b>48</b>	<b>51</b>	<b>49</b>	<b>2</b>		
K36	0<Ø<0.2	0.14	0.15	0.18	0.16	0.02	0.24	0.18	0.21	0.21	0.03	
	0.2<Ø<1	1.09	1.18	1.25	1.17	0.08	1.35	1.26	1.27	1.29	0.05	
	1<Ø<5	3.1	3.5	3.6	3.4	0.3	3.9	3.7	3.6	3.8	0.1	
	5<Ø<15	14	15	16	15	1	17.1	16.3	15.8	16.4	0.6	
	15<Ø<50	46.8	47.2	48.0	47.3	0.6	48	48	50	49	1	
	50<Ø<400	29	28	27	28	1	27.2	25.7	25.5	26.1	0.9	
	400<Ø<2000	5.9	4.5	4.5	5.0	0.9	2	5	4	4	1	
<b>Ø≤50 (d<sub>50</sub>)</b>	<b>65</b>	<b>67</b>	<b>69</b>	<b>67</b>	<b>2</b>	<b>71</b>	<b>70</b>	<b>71</b>	<b>70</b>	<b>2</b>		

Tableau 32 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les sédiments de surface (0-3 et 3-5 cm) prélevés en K13, K16 et K36 en mai 2006.

### 2.2.3 Concentrations des métaux

			k36 0-3 cm							
campagne	date	réplicat	Cd	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Ti	Zn
			mg.kg <sup>-1</sup> m.s.							
n°4	06/07/2005	a	237	88	221	554	76	434	786	3165
			234	86	221	544	47	433	772	3119
			237	87	221	552	42	434	727	3163
		b	197	84	212	566	37	472	711	2813
			214	91	228	612	38	512	744	3058
			194	82	206	550	34	458	676	2746
		c	232	89	227	566	41	484	771	3195
			232	90	227	560	40	486	759	3220
			217	83	212	527	36	461	722	3021
			moyenne	222	87	219	559	44	464	741
	dispersion, %	8	4	4	4	29	6	5	6	
n°5	17/08/2005	a	234	87	216	495	36	422	770	2979
			229	85	211	489	34	413	733	2931
			234	87	219	501	34	421	732	2991
		b	223	84	212	554	33	402	718	2765
			237	83	227	589	34	423	730	2932
			237	89	226	590	36	424	728	2916
		c	284	92	239	565	38	439	772	3313
			251	80	209	497	34	388	651	2940
			233	74	192	461	31	358	619	2727
			moyenne	240	84	217	527	34	410	717
	dispersion, %	8	6	6	9	5	6	7	6	
n°6	29/09/2005	a	242	83	212	474	33	404	745	3010
			243	83	212	473	34	409	748	3035
			237	79	207	464	33	404	690	2979
		b	220	78	204	509	32	410	650	2804
			213	77	199	494	30	398	692	2723
			227	80	210	522	32	423	701	2880
		c	218	77	200	495	31	416	684	2808
			215	77	193	483	30	407	677	2749
			186	66	168	418	27	354	568	2388
			moyenne	222	78	200	481	31	403	684
	dispersion, %	8	7	7	6	7	5	8	7	
n°7	02/11/2005	a	247	83	217	497	36	444	757	3103
			255	83	223	513	36	463	733	3193
			253	84	224	511	37	459	781	3184
		b	233	81	215	496	36	440	735	2972
			237	78	215	498	33	450	700	3026
			239	82	220	510	35	462	738	3052
		c	256	83	225	496	35	463	761	3202
			255	83	224	497	35	455	742	3194
			246	80	214	479	33	438	728	3079
			moyenne	247	82	220	500	35	453	742
	dispersion, %	3	2	2	2	4	2	3	3	
n°8	01/12/2005	a	192	67	176	401	28	377	636	2499
			218	76	200	459	30	431	729	2837
			230	80	211	480	32	456	750	2983
		b	219	78	212	512	32	438	639	2887
			212	75	207	493	32	429	621	2790
			212	77	209	500	32	428	703	2802
		c	210	76	207	485	34	488	713	2949
			215	77	210	494	32	499	712	3002
			216	78	212	499	34	497	739	3011
			moyenne	214	76	205	480	32	449	694
	dispersion, %	5	5	6	7	5	9	7	6	

Tableau 33 : Concentrations des métaux (mg.kg<sup>-1</sup> m.s.) dans les sédiments de surface (0-3 cm) des sédiments prélevés en k36 entre juillet et décembre 2005.

### 2.2.4 Concentrations des éléments majeurs

campagne	date	réplicat	k36 0-3 cm							
			Al % m.s.	Ca % m.s.	Al % m.s.	Ca % m.s.	Fe % m.s.	K % m.s.	Mg % m.s.	Na % m.s.
n°4	06/07/2005	a	33247	94499	3.3	9.4	2.6	0.81	0.55	0.077
			32911	92948	3.3	9.3	2.6	0.80	0.54	0.074
			31665	94215	3.2	9.4	2.6	0.76	0.55	0.068
		b	30224	101000	3.0	10	2.6	0.71	0.52	0.065
			31568	111133	3.2	11	2.8	0.73	0.56	0.069
			28945	100106	2.9	10	2.5	0.66	0.51	0.062
		c	32592	101709	3.3	10	2.7	0.78	0.56	0.072
			32569	101310	3.3	10	2.7	0.78	0.56	0.071
			30582	95625	3.1	9.6	2.6	0.72	0.53	0.065
		moyenne	31589	99172	3.2	9.9	2.6	0.75	0.54	0.069
dispersion, %	5	6	5	6	3	7	4	7		
n°5	17/08/2005	a	32354	94500	3.2	9.4	2.5	0.78	0.53	0.081
			31071	92903	3.1	9.3	2.5	0.74	0.52	0.076
			31419	95747	3.1	9.6	2.5	0.75	0.53	0.077
		b	30653	96571	3.1	9.7	2.5	0.73	0.53	0.076
			31467	102159	3.1	10	2.7	0.75	0.55	0.079
			31431	102142	3.1	10	2.6	0.74	0.55	0.079
		c	33323	104695	3.3	10	2.7	0.79	0.58	0.085
			28911	92231	2.9	9.2	2.4	0.65	0.51	0.071
			26891	85541	2.7	8.6	2.2	0.61	0.47	0.066
		moyenne	30836	96276	3.1	9.6	2.5	0.73	0.53	0.077
dispersion, %	6	6	6	6	6	8	6	7		
n°6	29/09/2005	a	31297	94131	3.1	9.4	2.5	0.76	0.52	0.092
			31501	94479	3.2	9.4	2.5	0.77	0.52	0.094
			30022	92573	3.0	9.3	2.4	0.71	0.51	0.089
		b	27222	95679	2.7	9.6	2.4	0.59	0.49	0.078
			28316	92822	2.8	9.3	2.3	0.64	0.48	0.080
			28617	99263	2.9	9.9	2.5	0.64	0.51	0.083
		c	28418	90534	2.8	9.1	2.4	0.64	0.49	0.076
			28177	88967	2.8	8.9	2.3	0.64	0.48	0.077
			23852	77438	2.4	7.7	2.0	0.49	0.41	0.063
		moyenne	28602	91765	2.9	9.2	2.4	0.65	0.49	0.081
dispersion, %	8	7	8	7	6	13	7	12		
n°7	02/11/2005	a	31215	95465	3.1	9.5	2.5	0.76	0.52	0.094
			30632	99080	3.1	9.9	2.5	0.73	0.53	0.092
			32031	98518	3.2	9.9	2.5	0.78	0.53	0.097
		b	30084	97063	3.0	9.7	2.4	0.71	0.51	0.088
			28864	97404	2.9	9.7	2.5	0.65	0.51	0.082
			30205	98596	3.0	9.9	2.5	0.70	0.52	0.087
		c	30923	99048	3.1	9.9	2.5	0.73	0.53	0.093
			30264	99138	3.0	9.9	2.5	0.70	0.53	0.091
			29367	95990	2.9	9.6	2.4	0.67	0.51	0.089
		moyenne	30398	97811	3.0	9.8	2.5	0.72	0.52	0.090
dispersion, %	3	1	3	1	2	6	2	5		
n°8	01/12/2005	a	25500	79005	2.6	7.9	2.0	0.58	0.43	0.071
			29366	90045	2.9	9.0	2.3	0.71	0.49	0.081
			29932	94070	3.0	9.4	2.5	0.71	0.51	0.083
		b	26908	97183	2.7	9.7	2.4	0.59	0.51	0.076
			26174	94326	2.6	9.4	2.4	0.57	0.49	0.073
			28492	94588	2.8	9.5	2.4	0.65	0.50	0.079
		c	27794	95088	2.8	9.5	2.4	0.64	0.49	0.078
			27796	96672	2.8	9.7	2.4	0.63	0.50	0.078
			28686	98020	2.9	9.8	2.4	0.68	0.51	0.081
		moyenne	27850	93222	2.8	9.3	2.4	0.64	0.49	0.078
dispersion, %	5	6	5	6	5	8	5	5		

**Tableau 34 : Concentrations des majeurs (% m.s.) dans les sédiments de surface (0-3 cm) des sédiments prélevés en k36 entre juillet et décembre 2005.**

## 2.3 Fraction réactive des métaux dans les sédiments de surface

		k36 0-3 cm																		
n°	date	fraction	As mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Cd mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Cr mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Cu mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Mn mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Ni mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Pb mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Ti mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ	Zn mg.kg <sup>-1</sup> ± 1σ									
11	22/03/06	réactive	20	10	145	4	60	1	49	3	265	9	6.2	0.6	318	10	19.0	0.3	1994	38
		résiduelle	29	13	12	2	111	10	207	2	133	5	51	3	52	13	<5		525	41
		totale	49	23	157	6	170	11	256	6	398	15	57	4	370	23	19.0	0.3	2520	79
		réactive %	41	40	92	6	35	3	19	2	67	5	11	2	86	8	100	3	79	4
12	26/04/06	réactive	21	28	169	14	71	6	51	3	319	23	6.6	0.7	363	28	25.3	0.5	2387	194
		résiduelle	49	10	6.5	0.9	143	9	195	2	127	8	67	6	41	12	<5		449	34
		totale	71	38	176	15	214	16	246	5	446	31	74	7	404	40	25.3	0.5	2836	228
		réactive %	30	56	96	16	33	5	21	1	71	10	9	2	90	16	100	4	84	14
13	31/05/06	réactive	4	20	181	4	75.3	0.9	84	11	319	4	8.9	0.4	382	12	23	1	2602	47
		résiduelle	11	30	7	1	124	12	163	9	127	5	242	294	99	94	<5		577	166
		totale	15	50	188	5	200	13	248	20	446	9	251	294	481	106	23	1	3179	213
		réactive %	28	229	96	4	38	3	34	7	71	2	4	4	79	20	100	10	82	7
14	05/07/06	réactive	30	29	179	18	75	8	142	18	363	38	9	2	382	43	23.3	0.8	2561	272
		résiduelle	<4	62	6.6	0.7	138	28	97	5	125	8	63	15	50	9	<5		407	23
		totale	30	91	185	19	213	36	239	23	488	46	72	17	432	52	23.3	0.8	2968	294
		réactive %	100	406	96	20	35	10	59	13	74	15	13	6	88	21	100	7	86	18

Tableau 35 : Concentrations des métaux (mg.kg<sup>-1</sup> sédiment brut) dans les fractions réactives et résiduelles des sédiments de surface (0-3 cm) prélevés en k36 entre mars et juillet 2006 (campagnes n°11 à 14).



## ANNEXE 3 : MATIERES EN SUSPENSION

### 3.1 Distribution granulométrique

site	N° de campagne	volume différentiel (%) des particules de diamètre (µm):						
		0<Ø<0,2	0,2<Ø<1	1<Ø<5	5<Ø<15	15<Ø<50	50<Ø<400	400<Ø<2000
k13	3	0.08	1.0	3.2	15	52	29	0
	4	0.27	1.2	3.6	14	45	33	3.2
	5	0.17	1.1	3.0	12	45	35	3.1
	6	0.18	1.2	3.7	15	51	29	0
	7	0.18	1.1	3.2	14	51	31	0
	12	0.06	0.9	3.3	13	42	40	0.77
	13	0.27	1.3	5.7	15	34	44	0
	14	0.10	1.1	4.4	18	46	30	0
k16	3	0.14	0.98	2.8	13	53	30	0
	4	0.31	1.2	3.3	12	43	36	4.2
	6	0.14	1.0	3.1	14	50	33	0
	7	0.18	0.98	2.7	11	47	33	4.6
	9	0.15	1.1	3.4	13	44	38	0
	10	0.14	0.97	3.0	11	40	41	2.6
	12	0.16	0.91	2.8	12	42	41	0.57
	14	0.12	0.84	2.9	12	39	37	8.9
k36	4	0.35	1.5	4.1	17	53	23	1.3
	6	0.18	1.3	3.8	18	59	18	0
	7	0.32	1.7	5.0	18	57	18	0
	8	0.24	1.4	3.9	15	59	21	0
	9	0.22	1.3	3.8	14	52	29	0
	12	0.07	1.1	4.3	19	55	20	0.6
	13	0.39	1.5	6.1	15	32	43	1.8
	14	0.21	1.3	4.1	18	56	21	0
SR Vallée	5	0.21	1.2	3.5	15	58	22	0
	6	0.20	2.3	10	33	37	17	0
	8	0.15	2.3	10	31	35	21	0
	13	0.22	2.2	11	23	35	28	0
	14	0.15	1.4	5.7	21	45	27	0

**Tableau 36 : Distribution granulométrique (volume différentiel, %) dans les matières en suspension prélevées dans la Scarpe en k13, k16 et k36, et dans la Station de Relevage (=SR), entre juin 2005 (campagne n°3) et juillet 2006 (campagne n°14).**









## ANNEXE 4 : EAUX INTERSTITIELLES

k36, décembre 2005					
profondeur cm	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
2,8	20	368	9,1	180	208
2,6	34	368	6,9	172	186
2,4	45	263	7,0	138	162
2,2	244	293	4,9	110	158
2	137	273	4,8	104	192
1,8	67	230	4,4	116	177
1,6	84	213	7,1	142	202
1,4	288	259	6,2	152	185
1,2	159	278	4,6	117	182
1	102	260	3,9	103	190
0,8	215	259	5,1	102	310
0,6	47	228	3,3	91	202
0,4		225	3,7	90	177
0,2	20	217	3,6	86	533
<b>0</b>	<b>50</b>	<b>382</b>	<b>7,1</b>	<b>135</b>	<b>579</b>
-0,2	12	215	7,5	110	251
-0,4	22	197	4,5	96	286
-0,6	17	172	4,7	120	321
-0,8	151	188	4,9	125	408
-1	24	161	3,7	100	477
-1,2	33	218	4,7	139	520
-1,4	17	203	5,3	132	626
-1,6	86	175	5,2	108	650
-1,8	33	589	10,1	231	662
-2	20	116	3,9	108	577
-2,2	22	104	3,7	127	574
-2,4	21	211	6,5	120	547
-2,6	38	201	6,0	379	726
-2,8	35	207	3,4	92	465
-3	36	120	4,2	122	513
-3,2	28	133	4,1	109	386
-3,4	40	810	20,3	230	576
-3,6		252	11,1	230	834
-3,8	32	166	4,8	121	761
-4	17	145	5,9	152	675
-4,2	34	98	3,8	114	675
-4,4	21	126	4,1	122	694
-4,6	21	319	7,6	130	721
-4,8	24	200	5,7	140	754

Tableau 39 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en décembre 2005.

profondeur cm	k36, janvier 2006				
	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
3	91	731	7,0	85	132
2,8	46	525	5,2	46	100
2,6	27	689	4,5	39	100
2,4	28	260	2,4	36	117
2,2	25	295	3,7	35	124
2	28	288	5,0	39	154
1,8	29	380	2,8	32	178
1,6					
1,4	20	336	2,0	18	206
1,2	16	314	2,0	35	223
1	18	249	2,1	17	233
0,8	11	209	1,3	13	231
0,6	14	398	1,9	22	249
0,4	13	224	1,8	26	249
0,2	12	270	1,5	16	261
0					
-0,2	13	294	1,8	26	291
-0,4	21	275	2,3	24	313
-0,6	23	343	1,8	20	336
-0,8	17	521	2,5	34	352
-1	16	432	2,0	33	430
-1,2	11	449	1,8	19	372
-1,4	15	369	6,1	25	397
-1,6	11	300	3,1	26	365
-1,8	14	348	2,5	19	363
-2	13	339	1,9	25	359
-2,2	15	217	2,9	24	352
-2,4	15	227	2,8	24	360
-2,6	14	189	1,7	18	355
-2,8	12	196	2,8	39	371
-3	11	235	2,9	41	365
-3,2	14	240	2,5	19	373
-3,4	13	234	2,7	20	366
-3,6	16	230	2,6	19	350
-3,8	22	371	3,6	36	359
-4	17	343	2,4	26	368
-4,2	15	281	3,0	28	361
-4,4	19	312	4,3	56	354
-4,6	14	414	2,3	24	342
-4,8	13	134	1,7	21	349
-5					
-5,2					
-5,4	15	350	3,5	27	364
-5,6	12	273	2,3	22	385
-5,8	22	439	7,8	63	373
-6	17	451	3,8	32	409
-6,2	13	240	6,4	28	248
-6,4	43	809	29	108	328
-6,6	22	369	17	48	302
-6,8	11	176	2,4	18	256
-7	10	170	2,4	18	266
-7,2	13	222	6,0	31	263
-7,4	14	277	2,7	36	296
-7,6	10	174	1,5	15	290
-7,8	9,2	209	3,5	18	299
-8	10	291	2,4	24	294
-8,2	18	309	16	40	308
-8,4	10	189	3,0	24	316
-8,6	27	432	23	65	467
-8,8	16	259	5,3	34	454
-9	18	250	5,6	42	468
-9,2	13	257	3,4	27	487
-9,4	16	318	3,8	27	489
-9,6	19	390	7,5	36	526
-9,8	24	500	8,6	66	661
-10	31	491	15	58	561
-10,2	15	382	4,6	42	541
-10,4		248	5,3	38	561
-10,6	24	324	10	53	608
-10,8	19	377	8,6	61	601
-11	16	284	8,0	44	617
-11,2	16	306	7,0	46	629
-11,4	28	441	11	61	736

Tableau 40 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en janvier 2006.

k36, mars 2006					
profondeur cm	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
3	20	374	1,6	11	80
2,8	22	477	1,2	12	87
2,6	17	507	1,5	13	89
2,4	15	385	1,5	10	85
2,2	29	416	1,3	9,3	95
2	16	329	1,0	10	81
1,8	13	281	1,0	9,1	80
1,6	12	478	1,1	36	86
1,4	18	537	2,3	16	93
1,2	10	246	0,7	9,0	99
1	13	189	0,7	5,8	81
0,8	46	360	2,9	52	110
0,6	15	288	0,8	24	97
0,4	16	332	2,2	12	106
0,2	18	378	1,4	16	103
<b>0</b>	<b>11</b>	<b>295</b>	<b>1,1</b>	<b>8,1</b>	<b>110</b>
-0,2	16	250	1,7	38	111
-0,4	24	219	0,9	8,6	124
-0,6	11	261	0,6	10	159
-0,8	9	212	0,6	11	204
-1	12	188	0,6	12	217
-1,2		415	1,3	23	258
-1,4	11	227	3,9	115	328
-1,6	15	238	1,7	23	352
-1,8	24	300	0,9	10	418
-2	16	383	0,8	10	423
-2,2	15	1414	0,8	23	
-2,4	60	409	1,0	16	387
-2,6	13	227	0,6	15	416
-2,8		362	0,7	13	375
-3	8,0	185	2,4	7	
-3,2	18	267		27	403
-3,4	11	217	0,8	8,9	396
-3,6	16	264	2,0	12	358
-3,8	27	316	1,1	24	368
-4	11	576	0,9	12	398
-4,2	31	271	1,1	26	387
-4,4	18	221	0,7	9,2	383
-4,6	25	531	2,2	38	416
-4,8	16	267	0,8	13	406
-5	16	340	0,6	15	409
-5,2	10	275	0,8	12	391
-5,4	13	415	0,8	11	415
-5,6	14	313	1,2	11	417
-5,8	27	323	0,8	12	440
-6	26	320	1,6	20	477
-6,2		356	1,9	27	500
-6,4	18	279	1,4	15	530
-6,6		569	0,8	23	603
-6,8		650	1,5	17	565
-7	12	398	1,9	79	538
-7,2	12	490	1,3	9,4	589
-7,4	15	472	0,7	14	653
-7,6	12	491	1,6	10	707
-7,8	21	914	2,0	31	806
-8	15	396	1,6	11	874
-8,2	17	356	1,3	14	863
-8,4	16	398	2,4	12	991
-8,6	16	321	4,9	21	920
-8,8	17	712	3,8	22	1034
-9	12	311	2,0	11	844
-9,2	15	380	5,6	14	921
-9,4	37	1673	7,0	87	1048
-9,6	16	601	5,0	21	995
-9,8	11	194	1,6	9,1	1043
-10	42	354	4,2	19	1096
-10,2	24	858	10,5	35	1247
-10,4	21	397	3,8	20	1163
-10,6	26	641	4,0	20	1191
-10,8	25	1674	6,1	19	1140
-11	31	468	3,8	21	1115
-11,2	76	1328	18,2	127	1174

Tableau 41 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en mars 2006.

k36, avril 2006					
profondeur cm	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
2,2	6,8	193	3,9	12	74
2	3,5	197	0,7	6,0	106
1,8	3,2	221	0,4	5,9	95
1,6	4,6	257	0,5	4,9	99
1,4	8,7	364	2	95	101
1,2	4,5	398	0,6	6,5	112
1	7,6	694	0,7	8,9	126
0,8	24	425	2,7	23	113
0,6	10	535	7,7	21	140
0,4	8,6	280	1,2	11	117
0,2	12	459	1,9		114
0	4,4	316	0,9	88	136
-0,2	4,4	422	1,1	12	284
-0,4	5,5	325	1,5	16	275
-0,6	3,7	279	0,8	11	271
-0,8	3,9	290	1,0	9,0	280
-1	5,0	262	1,3	16	475
-1,2	4,1	173	1,4	7,1	331
-1,4	11	191	1,7	10	320
-1,6	20	499	18	52	434
-1,8	2,7	166	1,4	20	401
-2	4,3	232	0,7	5	492
-2,2	2,6	276	1,9	29	564
-2,4	3,0	239	0,7	5,0	605
-2,6	10	306	3,4	13	896
-2,8	7,4	479	2,5	12	1222
-3	12	649	2,5	16	837
-3,2	8,1	635	5,2	17	758
-3,4	11	1029	6,9	39	905
-3,6	6,8	689	3,1	35	716
-3,8	7,5	909	1,1	11	1051
-4	14	814	7,0	25	980
-4,2	4,3	738	1,6	14	1059
-4,4	4,8	658	1,1	15	1004
-4,6	9,1	1079	9	33	1002
-4,8	15	2052	10	29	1252
-5	14	1461	10	26	991
-5,2	9,3	497	5,0	14	1088
-5,4	4,6	401	2,2	10	1044
-5,6	23	617	12	30	1185
-5,8	17	525	15	34	1082
-6	13	468	11	28	1153
-6,2	7,7	471	5,6	22	1111
-6,4	16	615	15	41	1123
-6,6	17	713	11	35	1146
-6,8	36	1069	31	84	1358
-7	8,3	685	4,8	18	1236
-7,2	29	972	30	78	1289
-7,4	11	487	8,5	37	1180
-7,6	35	1269	31	85	1230
-7,8	12	462	8,0	25	1190
-8	50	522	7,6	32	1119
-8,2	15	487	11	29	1169
-8,4	29	1142	15	82	1205
-8,6	25	1235	19	57	1086
-8,8	26	470	28	62	1079
-9	56	1115	51	131	1306
-9,2	13	451	8,8	28	1169
-9,4	20	812	19	51	1216
-9,6	48	1161	35	102	1193
-9,8	30	942	24	66	928
-10	6,7	369	3,9	10	909
-10,2	12	347	7,9	19	994
-10,4		2470			1296
-10,6	7,9	330	4,2	17	838
-10,8	46	798	40	110	981
-11	10	391	10	80	846
-11,2	8	277	3,1	12	778
-11,4	11	331	15	29	590
-11,6	26	625	21	60	1071
-11,8	9,5	355	7,5	22	658
-12	11	397	17	41	551

Tableau 42 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en avril 2006.

k36, mai 2006					
profondeur cm	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
2,4	5,2	393	1,3	12	159
2,2	5,4	424	5,1	16	208
2	12	585	4,2	20	240
1,8	5,1	436	0,6	17	212
1,6	5,0	412	1,8	19	218
1,4	13	1215	1,8	36	241
1,2	4,3	348	0,5	17	218
1	3,2	280	0,3	16	203
0,8	5,0	355	0,5	15	209
0,6	12	412	1,1	15	206
0,4	4,0	346	0,4	14	221
0,2	4,2	343	1,5	11	233
0	3,7	323	0,3	7,6	167
-0,2		365	5,7	19	171
-0,4	5,3	225	0,9	19	177
-0,6	4,9	190	0,4	10	191
-0,8	2,4	158	0,3	8,2	208
-1	2,2	157	0,3	8,9	223
-1,2	4,3	176	1,1	9,4	212
-1,4	3,1	115	0,5	13	227
-1,6	3,1	262	0,5	10	234
-1,8	3,6	249	1,8	11	241
-2	5,9	131	0,9	12	258
-2,2	4,7	292	1,5	13	258
-2,4		495	1,4	35	236
-2,6	27	334	1,3	17	226
-2,8	54	184	1,3	13	246
-3	19	189	1,1	11	244
-3,2	60	404	0,5	15	264
-3,4	4,2	266	0,3	9,0	261
-3,6	3,2	158	0,4	8,6	289
-3,8	172	596	0,8	22	275
-4	4,6	188	0,8	12	285
-4,2	5,0	141	0,2	8,7	278
-4,4	25	325	0,9	15	296
-4,6	3,4	167	2,0	12	350
-4,8	16	815	2,2	41	320
-5	75	340	0,9	16	322
-5,2	12	178	0,8	11	339
-5,4	11	255	0,5	11	360
-5,6	68	129	0,9	15	362
-5,8	4,3	134	0,7	10	354
-6	8,5	261	0,3	17	370
-6,2	16	270	1,2	12	381
-6,4	12	116	1,7	8,6	387
-6,6	19	187	1,0	9,3	404
-6,8	16	346		13	410
-7	4,5	205	0,9	8,7	402
-7,2	4,5	245	1,7	12,1	404
-7,4	27	182	1,7	11	409
-7,6	4,3	138	0,4	10	388
-7,8	26	144	0,8	10	405
-8	202	494	2,2	27	416
-8,2	96	198	0,7	12	440
-8,4	23	140	1,3	11	449
-8,6	100	337	1,7	13	446
-8,8	123	400	2,7	24	435
-9	8,9	260	3,5	18	380
-9,2	289	310	2,2	19	493
-9,4	48	340	1,9	10	442
-9,6	19	397	2,0	10	455
-9,8	11	419	2,0	9,0	481
-10	1,3	31	0,2	0,8	
-10,2	13	516	4,1	13	468
-10,4	7,2	343	1,5	9,0	501
-10,6	13	418	4,3	13	432
-10,8	6,2	484	2,3	47	506
-11	6,6	426	2,3	10	488
-11,2	13	902	2,7	15	491
-11,4	21	709	2,0	15	480
-11,6	6,2	554	2,1	13	500
-11,8	31	531	2,9	13	506
-12	14	691	3,1	14	516
-12,2	13	746	3,4	19	512
-12,4	23	1387	1,5	13	553

Tableau 43 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en mai 2006.



k36, juillet 2006					
profondeur cm	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
0,8	13	715	2,0	21	134
0,6	7,3	613	1,9	31	132
0,4	5,9	344	0,9	15	142
0,2	8,6	546	5,1	18	142
0	25	849	2,2	22	154
-0,2	77	617	3,9	22	183
-0,4	49	434	2,7	18	253
-0,6	46	711	2,4	29	285
-0,8	33	371	1,8	19	311
-1	37	451	2,9	30	325
-1,2	34	386	2,6	38	349
-1,4	46	1199			381
-1,6	45	645	7,2	77	422
-1,8	44	453	7,7	25	469
-2	45	459	2,6	22	487
-2,2	45	386	4,5	25	508
-2,4	43	401	1,9	14	526
-2,6	47	302	1,8	22	519
-2,8	58	378	3,0	33	549
-3	37	270	1,5	14	529
-3,2	45	233	1,9	14	559
-3,4	44	231	2,2	12	524
-3,6	44	334	2,3	14	527
-3,8	47	318	3,3	16	580
-4	50	331	4,7	22	627
-4,2	55	375	4,1	16	637
-4,4	54	581	3,9	22	643
-4,6	60	843	2,4	19	640
-4,8	57	658	3,6	20	627
-5	64	635	2,4	16	619
-5,2	61	741	3,1	30	613
-5,4	60	354	1,3	10	635
-5,6	53	449	1,3	7	647
-5,8	55	458	1,6	10	655
-6	42	395	1,5	12	673
-6,2	44	498	2,9	12	670
-6,4	33	474	2,7	11	708
-6,6	33	599	2,9	11	668
-6,8	26	363	2,4	11	598
-7	36	657	3,0	20	679
-7,2	53	666	3,0	18	878
-7,4	34	468	2,7	15	673
-7,6	43	831	2,3	15	699
-7,8	43	2314	6,2	26	653
-8	81	5791	16	62	666
-8,2	92	6374	15	65	631
-8,4	66	5312	13	52	613
-8,6	77	3919	8,9	66	691
-8,8	68	1550	4,9	24	715
-9		2340	4,3	21	604
-9,2	27	1125	2,2	11	488
-9,4	96	3076	6,5	32	699
-9,6	59	3571	8,4	38	594
-9,8	74	5533	12	49	662
-10	67	3121	7,1	31	560
-10,2	65	1414	3,9	22	561
-10,4	67	626	2,2	10	592
-10,6	54	460	2,0	15	475
-10,8	44	912	2,6	16	513
-11	35	366	1,7	34	500
-11,2	49	508	1,5	9,3	552
-11,4	49	519	2,2	11	586
-11,6	59	634	2,0	15	619
-11,8	56	593	2,0	15	573
-12	48	506	2,0	11	506
-12,2	49	412	1,1	8,5	494
-12,4	63	523	3,3	14	542
-12,6	90	1184	5,3	22	503
-12,8	137	787	4,8	19	547
-13	119	853	3,6	21	550
-13,2	104	694	2,5	16	556

Tableau 44 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en juillet 2006.

k36, août 2006					
profondeur cm	Cu-65	Zn-66	Cd-111 µg/L	Pb-207	Mn-55
1,8	12	888	7,2	76	283
1,6	4,6	372	4,5	54	217
1,4	39		8,2	67	203
1,2	6,2	297	4,8	58	202
1	18	648	10	263	370
0,8	12	290	6,0	116	223
0,6					
0,4					
0,2	4,7	187	5,7	74	291
0	<b>7,0</b>	<b>608</b>	<b>8,5</b>	<b>171</b>	<b>300</b>
-0,2	7,2	365	5,8	80	329
-0,4	7,3	386		94	356
-0,6	15	454	7,3	90	357
-0,8	5,1	479	10	112	366
-1	6,2	320	7,2	96	353
-1,2	23	275	7,3	77	373
-1,4					
-1,6	4,5	264	5,3	113	383
-1,8					
-2	38	256	9,5	124	395
-2,2	10	284	5,8	85	417
-2,4	8,1	291	4,9	98	428
-2,6	9,3	293	26	238	487
-2,8	9,1	473	9,8	105	464
-3	3,5	387	6,1	80	419
-3,2	2,6	131	5,6	77	445
-3,4	4,2	387	4,9	76	443
-3,6	6,0	199	4,2	69	463
-3,8	6,3	116	4,9	65	403
-4	12	420	4,8	75	483
-4,2	4,5	746	5,2	76	499
-4,4	4,4	424	9,1		535
-4,6	4,4	332	6,6	97	555
-4,8	5,7	147	3,8	79	430
-5	3,3	286	5,6	97	537
-5,2	2,6	305	5,6	98	506
-5,4	2,3	261	5,1	85	472
-5,6	4,8	224	4,3	68	515
-5,8	2,6	256	4,9	90	445
-6	11	305	4,7	81	493
-6,2	1,8	318	4,7	88	448
-6,4	6,2	630	6,6	107	530
-6,6	3,0	240	5,8	107	516
-6,8	9,2	227	4,7	79	491
-7	13	331	6,0	75	409
-7,2	8,5	447	5,7	106	470
-7,4	6,2	456	6,9	92	433
-7,6	5,0	357	6,7	79	390
-7,8					
-8	3,2	231	4,6	18	445
-8,2	6,3	428	2,4	21	425
-8,4	3,7	373	3,4	54	471
-8,6	38	357	1,7	22	306
-8,8					
-9	1,6	128	1,3	13	414
-9,2	11	309	1,9	40	444
-9,4	2,8	236	1,6	15	410
-9,6	2,7	68	0,9	12	418
-9,8	10	136	7,0	10	381
-10	5,2	204	2,7	24	483
-10,2	5,9	56	5,4	13	444
-10,4	2,7	122	5,1	15	507
-10,6	3,2	74	1,8	8,8	381
-10,8	2,5	154	2,7	36	506
-11	6,6	289	4,1	71	429
-11,2	2,7	37	3,5	11	465
-11,4	1,8	127	1,7	11	488
-11,6	2,5	56	2,1	10	467
-11,8	3,0	153	9,3	10	462
-12	13	434	8,9	42	519
-12,2	3,4	206	2,4	47	457

Tableau 45 : Concentrations en métaux ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ ) dans les eaux interstitielles des sédiments prélevés en k36 en août 2006.



## ANNEXE 5 : UTILISATION DU RAPPORT ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$

Le rapport d'activités  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est un outil permettant de déterminer l'âge ou la fraction des particules sédimentaires récemment marquées au  ${}^7\text{Be}$  (Matisoff *et al.*, 2005). Aussi, nous proposons de discuter la variabilité du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  et sa signification physique dans les matières en suspension provenant de la Scarpe.

Le  ${}^7\text{Be}$  et le  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  sont deux radionucléides d'origine atmosphérique et, bien que les quantités délivrées dans les sols varient au cours du temps, le rapport d'activité fluctue moins. Dans les sédiments en suspension, la variation du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  peut illustrer deux types de phénomènes naturels différents (Matisoff *et al.*, 2005) : le vieillissement des particules sédimentaires ou, un processus de dilution.

La diminution du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  peut être attribuée au vieillissement des particules sédimentaires car l'activité d'un radionucléide décroît au cours du temps et que le  ${}^7\text{Be}$  (53 jours de période) décroît plus rapidement que le  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  (22 ans de période). L'âge  $t$  des particules sédimentaires est alors donné par l'équation :

$$t = \frac{-1}{(\lambda^{7\text{Be}} - \lambda^{210\text{Pb}})} \ln\left(\frac{A}{B}\right) + \frac{1}{(\lambda^{7\text{Be}} - \lambda^{210\text{Pb}})} \ln\left(\frac{A_0}{B_0}\right) ;$$

avec  $A = ({}^7\text{Be})_{\text{échantillon}}$ ,  $A_0 = ({}^7\text{Be})_{\text{source}}$ ,  
et  $B = ({}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}})_{\text{échantillon}}$ ,  $B_0 = ({}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}})_{\text{source}}$

La variation du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  peut aussi illustrer un processus de mélange entre des particules jeunes et enrichies en  ${}^7\text{Be}$  et des particules plus âgées et appauvries en  ${}^7\text{Be}$ . Le pourcentage des particules sédimentaires récemment marquées au  ${}^7\text{Be}$  est donné par :

$$\% \text{ séd. "récent"} = 100 \times \left( \frac{A/B}{A_0/B_0} \right) \text{ ou } \% \text{ séd. "récent"} = 100 \times \exp[-(\lambda_{7\text{Be}} - \lambda_{210\text{Pb}})t].$$

La figure 1 représente la variation du rapport d'activité  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les matières en suspension de la Scarpe en fonction du temps et en fonction du site d'étude. Les barres d'erreur associées correspondent à l'incertitude analytique. Les données sont issues du tableau 46.

site	N° campagne Date	2 19/5/05	3 16/6/05	4 6/7/05	5 17/8/05	6 29/9/05	7 2/11/05	8 1/12/05	9 10/1/06	10 16/2/06	11 22/3/06	12 26/4/06	13 31/5/06	14 5/7/06	15 17/8/06
k13	$^7\text{Be}$ , Bq/kg	120	162	582	215	120	139				153	112	278	448	264
	$\pm 2\sigma$	20	14	44	7	3	5				5	4	5	10	12
	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ , Bq/kg	67	56	137	81	64	83				55	58	70	94	66
	$\pm 2\sigma$	20	11	28	9	6	9				5	5	6	8	13
k16	$^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	<b>1.8</b>	<b>2.9</b>	<b>4.3</b>	<b>2.6</b>	<b>1.9</b>	<b>1.7</b>				<b>2.8</b>	<b>1.9</b>	<b>4.0</b>	<b>4.7</b>	<b>4</b>
	$\pm$	0.8	0.9	1.2	0.4	0.2	0.2				0.3	0.2	0.4	0.5	1
	$^7\text{Be}$ , Bq/kg	158	120	384	171	126	131		144	156	144	102	297	535	201
	$\pm 2\sigma$	22	6	39	4	3	6		3	9	5	4	8	7	9
k36	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ , Bq/kg	58	53	86	69	53	72		57	41	52	57	83	107	79
	$\pm 2\sigma$	20	5	27	6	7	10		6	11	6	5	9	5	10
	$^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	<b>3</b>	<b>2.2</b>	<b>4</b>	<b>2.5</b>	<b>2.4</b>	<b>1.8</b>		<b>2.5</b>	<b>4</b>	<b>2.8</b>	<b>1.8</b>	<b>3.6</b>	<b>5.0</b>	<b>2.6</b>
	$\pm$	1	0.3	2	0.3	0.4	0.3		0.3	1	0.4	0.2	0.5	0.3	0.5
k36	$^7\text{Be}$ , Bq/kg			474	137	117	108	196	223		159	91	256	168	81
	$\pm 2\sigma$			24	3	3	4	5	10		6	5	7	6	7
	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ , Bq/kg			111	71	70	80	67	61		57	54	68	68	62
	$\pm 2\sigma$			17	6	6	7	12	13		7	6	8	8	11
k36	$^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$			<b>4.3</b>	<b>1.9</b>	<b>1.7</b>	<b>1.3</b>	<b>2.9</b>	<b>3.6</b>		<b>2.8</b>	<b>1.7</b>	<b>3.8</b>	<b>2.5</b>	<b>1.3</b>
	$\pm$			0.9	0.2	0.2	0.2	0.6	0.9		0.4	0.3	0.5	0.4	0.4

Tableau 46 : Activités du  $^7\text{Be}$  et du  $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  (Bq.kg<sup>-1</sup> m.s.) dans les matières en suspension prélevées en k13, k16 et k36. Calcul du rapport d'activité  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ .

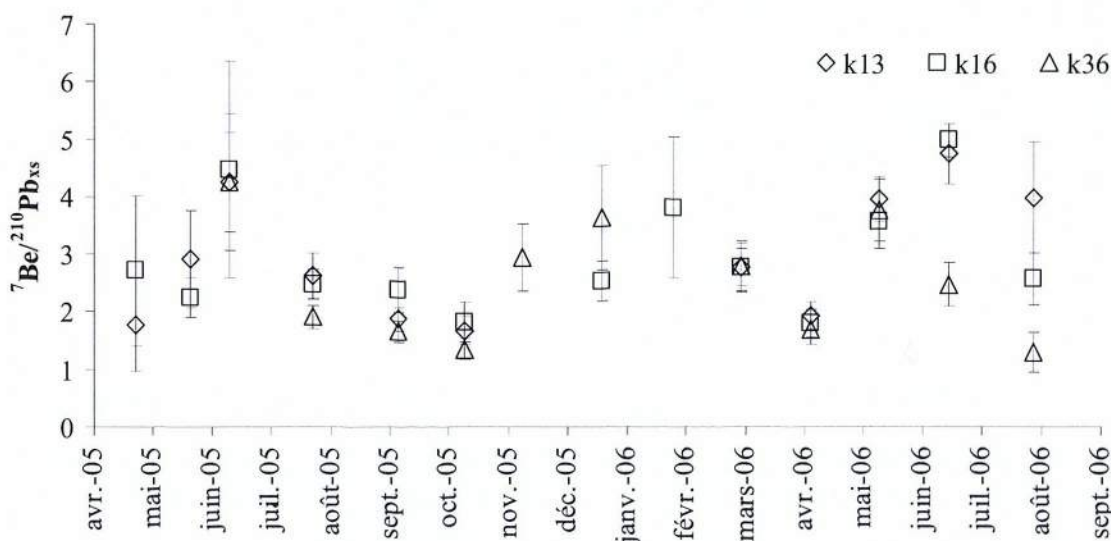


Figure 1 : Evolution du rapport d'activités  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les matières en suspension prélevées en k13, k16 et k36, entre avril 2005 et août 2006.

Pour l'ensemble des matières en suspension, le rapport  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  varie entre  $1,7 \pm 0,2$  et  $5,0 \pm 0,3$ . Ces valeurs sont relativement faibles par rapport aux valeurs mentionnées dans la littérature pour les sédiments en suspension dans les rivières (Matisoff *et al.* (2005), *ca.* 6-7). Entre avril 2005 et septembre 2006, en tenant compte de l'incertitude, la variation du rapport  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est significative entre deux collectes successives dans 30 % des cas pour k13, 33 % pour k16 et 67 % pour k36. Un processus est donc responsable de la variabilité du rapport  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  au cours du temps.

Entre k13 et k16, le rapport  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  ne varie pas de manière significative au cours de la période échantillonnée. En revanche, entre k13-k16 et k36, le rapport  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  diminue de manière significative en août 2005, juillet et août 2006. La diminution du rapport

${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  entre l'amont (k13, k16) et l'aval (k36) du secteur d'étude traduit un appauvrissement en  ${}^7\text{Be}$  ou un enrichissement en  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . En août 2005, entre k16 et k36, l'activité du  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  reste équivalente ( $69 \pm 6$  et  $71 \pm 6 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) et celle du  ${}^7\text{Be}$  diminue d'un facteur 1,2 (de  $171 \pm 4$  à  $137 \pm 3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). En juillet 2006, entre k13 et k36, l'activité du  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  diminue d'un facteur 1,4 (de  $94 \pm 8$  à  $68 \pm 8 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) et celle du  ${}^7\text{Be}$  diminue d'un facteur 2,7 (de  $448 \pm 10$  à  $168 \pm 6 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). En août 2006, entre k13 et k36, l'activité du  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  reste équivalente ( $66 \pm 13$  et  $62 \pm 11 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) et celle du  ${}^7\text{Be}$  diminue d'un facteur 3,3 (de  $264 \pm 11$  à  $81 \pm 7 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ). C'est donc bien la variation de l'activité en  ${}^7\text{Be}$  qui est principalement responsable de la diminution du rapport d'activités  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ .

La diminution du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  de l'amont vers l'aval pourrait être due au vieillissement des particules sédimentaires au cours de leur transit dans le cours d'eau : le rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  diminue de l'amont vers l'aval car le  ${}^7\text{Be}$  décroît plus rapidement que le  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . Si c'est le cas, le rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  devrait systématiquement diminuer entre les sites situés à l'amont (k13, k16) et à l'aval (k36). Or, le rapport reste parfois constant. Dans la Scarpe, il existe un autre processus responsable de la diminution du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  entre l'amont et l'aval du secteur d'étude. En l'occurrence, ce processus affecte les matières en suspension de manière variable au cours du temps. Ce processus peut correspondre à des phénomènes de mélange se déroulant dans l'eau et ayant pour conséquence la dilution de particules récentes (*i.e.* enrichies en  ${}^7\text{Be}$ ) par des particules plus âgées (*i.e.* appauvries en  ${}^7\text{Be}$ ). La remise en suspension/érosion des sédiments relativement âgés constitue une hypothèse probable pour expliquer la diminution des activités du  ${}^7\text{Be}$  dans les matières en suspension. L'hypothèse du mélange de particules sédimentaires permet d'expliquer pourquoi la variabilité du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  au cours du temps est plus élevée à l'aval du secteur d'étude (k36) par rapport à l'amont (k13-k16). En effet, si les particules sédimentaires sont issues de sources différentes (*i.e.* érosion des sols ou des sédiments), lorsqu'elles se mélangent dans l'eau, plus la distance traversée augmente, plus la probabilité de mélange augmente.

En appliquant le modèle développé par Matisoff *et al.* (2005) aux matières en suspension dont le rapport varie d'amont en aval, il est possible de calculer « l'âge » des matières en suspension ou la fraction des matières en suspension récemment marquées au  ${}^7\text{Be}$ . Le tableau 47 présente pour les mois de juillet 2005, juillet et août 2006, les «âges» et fractions des matières en suspension récentes en considérant les matières en suspension prélevées en k13 comme le terme source dont dérivent les matières en suspension prélevées en k16 et k36. L'incertitude mentionnée est analytique.

	août 2005			juillet 2006			août 2006		
	${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	âge (j)	%récente	${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	âge (j)	%récente	${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	âge (j)	%récente
k13	2.6 ± 0.4	0	100	4.7 ± 0.5	0	100	4 ± 1	0	100
k16	2.5 ± 0.3	5 ± 1	94 ± 24	5.0 ± 0.3	-4 ± 1	105 ± 18	2.6 ± 0.5	34 ± 14	64 ± 27
k36	1.9 ± 0.2	24 ± 6	78 ± 20	2.5 ± 0.4	50 ± 13	52 ± 14	1.3 ± 0.4	86 ± 44	33 ± 17

**Tableau 47 : Age et pourcentage des matières en suspension récemment marquées au  ${}^7\text{Be}$  en k13, k16 et k36, en août 2005, juillet et août 2006.**

Considérons le rapport  ${}^7\text{Be}/{}_{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  comme un indicateur du vieillissement des matières en suspension. Ici, « l'âge » des matières en suspension n'est autre que le temps mis par les matières en suspension pour passer de k13 à k16 (300 m) d'une part et de k13 à k36 (2300 m) d'autre part. On suppose que le temps mis par les matières en suspension pour se déplacer ne dépende que de la décroissance radioactive du  ${}^7\text{Be}$  ( $T_{1/2} = 53$  jours).

Entre k13 et k16, ce délai varie entre -4 et 34 jours. Lorsque la valeur est négative, le résultat n'a pas de réalité physique : les matières en suspension ne rajeunissent pas !

Entre k13 et k16, le temps de transfert vaut 34 jours, soit une vitesse d'écoulement correspondant à  $0,01 \text{ cm.s}^{-1}$ . Entre k13 et k36, les matières en suspension parcourent 2300 m entre 24 et 86 jours, soit une variation d'un facteur 3,6. La vitesse d'écoulement qui en résulte varie entre  $0,2 \text{ cm.s}^{-1}$  et  $0,04 \text{ cm.s}^{-1}$ . Or, dans la Scarpe Inférieure, la vitesse nécessaire au transfert des sédiments est estimée à  $1,7 \text{ cm.s}^{-1}$  (Voies Navigables de France, communication personnelle), soit une différence d'un facteur 9-170. Les temps de transfert des matières en suspension déterminés à partir du rapport  ${}^7\text{Be}/{}_{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  ne fournissent pas des résultats

cohérents. Par conséquent, le rapport  ${}^7\text{Be}/{}_{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  n'est pas représentatif de « l'âge » des particules.

Supposons que le rapport  ${}^7\text{Be}/{}_{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  soit représentatif de la fraction des matières en suspension provenant de k13 (terme source) et transportée jusqu'en k16 et k36, c'est-à-dire la fraction dite « récente ». En k16 et k36, une fraction des matières en suspension provient de l'amont du secteur d'étude (fraction « récente ») et une fraction peut provenir d'une source différente. Les matières en suspension issues d'une source différente peuvent modifier les activités du  ${}^7\text{Be}$  dans les matières en suspension et conduire à un enrichissement/appauvrissement.

La fraction des matières en suspension provenant de k13 (*i.e.* fraction « récente ») varie entre 64 et 105 % en k16 et, entre 33 et 78 % en k36.

Quand la fraction « récente » diminue, les matières en suspension originaires de k13 ont été appauvries en  ${}^7\text{Be}$  au cours de leur déplacement vers k16 et k36. L'appauvrissement des matières en suspension au cours de leur transfert amont-aval résulterait alors d'un processus de mélange se déroulant dans l'eau entre des particules en suspension provenant d'une source différente et caractérisée par des teneurs en  ${}^7\text{Be}$  plus faibles. La remise en suspension/érosion des sédiments anciens est une source probable.

A l'inverse, quand la fraction « récente » augmente, les matières en suspension ont été enrichies en  ${}^7\text{Be}$  au cours de leur transfert amont-aval. C'est le cas pour juillet 2006 entre k13 et k16. L'analyse des matières en suspension prélevées dans les rejets de la station de relevage (située entre k13 et k16) montre que l'activité du  ${}^7\text{Be}$  est généralement supérieure à celle des matières en suspension de la Scarpe. Et, en juillet 2006, le rapport  ${}^7\text{Be}/{}_{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les

matières en suspension de la station de relevage ( $7 \pm 1$ ) est supérieur à celui des matières en suspension prélevées en k13 ( $4,7 \pm 0,5$ ). En apportant du  ${}^7\text{Be}$  dans le secteur d'étude, la station de relevage contribuerait donc ponctuellement et localement à l'augmentation de la fraction « récente » des matières en suspension.

L'étude des mécanismes impliqués dans le transfert des particules des sols vers la rivière pourrait aussi permettre de mieux comprendre l'enregistrement sédimentaire des matières en suspension. Le tableau 48 présente l'âge et la fraction « récente » des matières en suspension avec un terme source correspondant aux retombées atmosphériques de  ${}^7\text{Be}$  et de  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ . Le terme source est défini par les précipitations atmosphériques. Le rapport

${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  pour le terme source a été déduit des données de flux atmosphériques de  ${}^7\text{Be}$  et  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  dans les environs du secteur d'étude disponibles pour juillet et août 2006 (source : <http://net-science.irsn.org/>, station Charleville-Mézières).

juillet 2006			août 2006		
${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	âge (j)	%récente	${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	âge (j)	%récente
<b>12</b>	<b>0</b>	<b>100</b>	<b>6</b>	<b>0</b>	<b>100</b>
4.7 ± 0.5	71 ± 8	40 ± 4	4 ± 1	32 ± 8	66 ± 16
5.0 ± 0.3	68 ± 4	42 ± 2	2.6 ± 0.5	65 ± 12	43 ± 8
2.5 ± 0.4	122 ± 19	21 ± 3	1.3 ± 0.4	118 ± 32	22 ± 6

**Tableau 48 : Age et pourcentage des matières en suspension récemment marquées au  ${}^7\text{Be}$  en k13, k16 et k36, en juillet et août 2006.**

Considérons le rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  comme un indicateur de « l'âge » des matières en suspension. L'âge des matières en suspension correspond alors à la période de temps séparant l'arrivée des marqueurs ( ${}^7\text{Be}$  et  ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ) à la surface des sols et le passage des matières en suspension en k13, k16 et k36 : c'est le temps mis par les particules issues de l'érosion du bassin versant pour parvenir dans la Scarpe.

Entre juillet 2006 et août 2006, l'âge des matières en suspension diminue d'un facteur 2 en k13 et reste relativement constant en k16 et k36. Les matières en suspension collectées en k13 sont plus âgées en juillet par rapport à août ; c'est-à-dire que le temps mis pour passer des sols vers k13 a doublé en août par rapport à juillet. Le transfert des particules des sols vers la rivière dépend du ruissellement : si la quantité d'eau s'écoulant vers la rivière augmente, la quantité de matériel apporté à la rivière augmente. Entre juillet et août 2006, la pluviométrie augmente et passe de 63 mm à 113 mm, soit une variation d'un facteur 2. Il est possible que l'importance des précipitations humides ait joué un rôle sur la capacité des particules à être transférées vers la Scarpe.

Le modèle d'utilisation du rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  est relativement limité car il ne permet de distinguer l'importance relative entre la décroissance radioactive et la dilution des particules (Matisoff *et al.*, 2005). Le rapport  ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$  permet néanmoins de discuter de la variabilité des matières en suspension dans le cours d'eau et au cours du temps.

L'utilisation du rapport a permis de discuter la représentativité des matières en suspension dans la Scarpe. Les matières en suspension présentes peuvent résulter d'un processus de mélange entre des particules plus ou moins âgées issues de sources différentes.

L'enregistrement sédimentaire dans les matières en suspension tiendrait alors compte des processus de mélange se déroulant dans la colonne d'eau.







