

Accord Cadre ZABR- Agence de l'Eau

Titre du projet : ARCHEORHONE - Evolution de l'anthropisation des eaux du Rhône au cours des dernières décennies – La mémoire des sédiments.

Durée du projet : 24 mois (2017-2018)

Personnes responsables

(scientifique d'une équipe membre de la ZABR)

Eyrolle-Boyer Frédérique (IRSN)

Lepage Hugo (IRSN)

Jean philippe Bedell (ENTPE)

Equipes de recherche « ZABR » concernées : liste des compétences utiles au projet (contact en cours)

(équipe membre ou associée de la ZABR)

CEREGE (Olivier Radakovitch)

ENTPE (Jean Philippe Bedell)

IRSTEA (Aymeric Dabrin)

Autres partenaires :

Aucun

Thème de rattachement ZABR :

Flux polluants, écotoxicologie, écosystèmes

Thème de rattachement Agence de l'Eau :

- Q24 : Quels apports du fleuve à la mer et quelles tendances ?
- Q44 : Quels sont les enjeux de santé-environnement ? (1- Assurer une veille scientifique sur le risque lié aux contaminations émergentes, en particulier les radioéléments, les résidus médicamenteux, les perturbateurs endocriniens, et 2- poursuivre l'identification des sources de pollution)

Site ou Observatoire de rattachement ZABR:

Observatoire des sédiments du Rhône (OSR)

Finalités et attendus opérationnels :

Les conséquences sur l'environnement de l'implantation d'industries, dont celles du nucléaire, sur des espaces naturels en bordure des grands fleuves nécessitent d'être appréhendées, dans un contexte de développement socio-économique de moyen à long terme des territoires, mais aussi au regard de la protection des milieux aquatiques et de la ressource en eau. L'évolution rapide des préoccupations environnementales, des techniques d'ingénierie ainsi que des choix politiques, a été très marquée lors de l'ère industrielle, conduisant à un manque d'informations précises sur les conséquences environnementales issues de ces installations industrielles du passé.

Des témoignages environnementaux du passé peuvent toutefois être révélés de manière rétrospective par l'étude d'archives ligneuses, pour ce qui concerne les rejets de contaminants dans l'atmosphère, ou bien par l'étude d'archives sédimentaires, pour ce qui concerne les rejets dans les eaux des fleuves (Desmet et al., 2012 ; Ferrand et al., 2012 ; Grosbois et al., 2012 ; Provansal et al., 2012 ; Mourier et al., 2014). Ces approches permettent de positionner les observations contemporaines dans une perspective socio-historique, et, le cas échéant, d'alimenter les décisions stratégiques relatives aux choix industriels et à leurs conséquences.

Le projet ARCHEORHONE propose de reconstruire et d'expliquer l'historique des concentrations de polluants clés dans le Rhône au cours des 100 dernières années afin de souligner les tendances sur l'échelle de temps de l'ère industrielle. Ces chroniques seront reconstruites à l'aide d'archives sédimentaires collectées au sein des marges alluviales du fleuve Rhône, en amont de la confluence de l'Arve afin d'acquérir les valeurs des référentiels (non influencés par les

rejets industriels), sur la Saône aval (affluent majeur sous documenté), et sur le Rhône en aval de la confluence de la Durance (bilan des apports anthropiques à l'échelle du bassin délivrés vers le domaine marin).

Les archives sédimentaires permettent d'acquérir *a posteriori* les **chroniques des concentrations de contaminants sur des échelles de temps de plusieurs décennies** non couvertes par exemple par les suivis réalisés sur les matières en suspension. Cette approche permet de quantifier les teneurs en polluants pour lesquels aucune quantification n'a été effectuée, soit parce que ces éléments n'étaient pas recherchés à l'époque, soit parce que les techniques analytiques employées ne permettaient pas leur détection. Elle permet d'avoir en outre un regard rétrospectif sur les contaminants aujourd'hui considérés comme « émergents » dans le contexte des préoccupations environnementales. Les archives sédimentaires, en particulier celles collectées dans les zones les plus amont des linéaires fluviaux, permettent également de connaître les niveaux de référence (bruit de fond géochimique) en polluants. Ces niveaux de référence permettent notamment d'**évaluer le degré d'anthropisation du fleuve** dans sa partie aval. Ainsi, la mise en perspective des données acquises sur le Rhône aval (fermeture du bassin versant) avec celles obtenues sur l'archive de référence collectée sur le linéaire amont doit permettre d'évaluer la contribution des apports anthropiques.

Enfin, les données acquises dans le cadre du projet permettront de préciser les **chroniques d'exports de contaminants vers le domaine marin depuis le début du siècle dernier**, en soulignant les contributions liées aux activités humaines (anthropique/naturelle) et leur évolution en particulier au cours de l'ère industrielle, à l'instar des travaux réalisés sur la Seine par exemple (Meybeck et al., 2000) ou bien encore sur la Loire (Grosbois et al., 2012). Cette approche permet de connaître la « trajectoire » d'un fleuve, c'est-à-dire d'évaluer à la fois **sa capacité à éliminer une source de contamination (résilience) et son niveau de pollution au cours des décennies à venir**. Les estimations des flux de contaminants au domaine marin à partir des mesures réalisées au sein des archives sédimentaires seront réalisées en prenant en considération les débits liquides moyens annuels du Rhône à Arles, les relations charge en MES/Débits fournies par les données de la station SORA implantée au niveau d'Arles ainsi qu'en s'appuyant sur les flux de radionucléides enregistrés depuis 2005 par SORA (Antonelli, 2015). Ces derniers jeux de données permettront d'établir, sur la période de recouvrement des jeux de données soit 2005-2016, des coefficients d'ajustement entre les concentrations mesurées dans les matières solides sédimentées au sein des archives et celles mesurées dans les MES (SORA).

Les polluants ciblés par ARCHEORHONE sont ceux pour lesquels nous ne disposons que de données historiques parcellaires ou bien ceux associés à des problématiques émergentes. Il s'agit d'éléments ou de composés appartenant à trois grandes familles de contaminants: les radionucléides, les métaux traces en particulier le mercure, et les composés organiques. Cette large palette d'éléments permettra en outre d'affiner la caractérisation d'un modèle d'âge robuste.

Si d'importants jeux de données ont été acquis, pour les PCB (groupes de travail PCB Rhône), et pour d'autres contaminants en particulier dans le cadre de l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR, 2009-), que ce soit dans les MES ou les sédiments des marges alluviales, aucune étude ou jeu de données ne permet d'évaluer l'évolution des niveaux d'anthropisation au cours de l'ère industrielle, les temps de résilience des contaminants à l'échelle des décennies, et la trajectoire du fleuve Rhône.

Du point de vue opérationnel, il est attendu que les résultats produits puissent permettre de **fournir** des connaissances approfondies sur les chroniques historiques de contaminants véhiculés par le fleuve depuis le début du siècle dernier, en particulier ceux pour lesquels les données font défaut dont ceux associés à des problématiques aujourd'hui émergentes. Ces chroniques permettront de souligner les tendances.

Le fleuve Rhône aval est-il plus pollué aujourd'hui que par le passé ? par quelles substances ?

Les résultats permettront d'**évaluer** les effets et conséquences des mesures de protection des milieux conduites par le passé sur les niveaux de contamination des eaux du fleuve.

L'interdiction de rejet d'une substance dans l'environnement ou dans les eaux d'un fleuve se voit-elle immédiatement sur les concentrations dans les MES en transit ? ou bien faut-il attendre plusieurs décennies avant de constater une diminution des concentrations ?

Ils permettront ainsi d'**anticiper** les actions à entreprendre pour la préservation de la qualité de la ressource et du domaine marin côtier.

Quels sont les enjeux concernant la diminution des teneurs en polluants ? dans le Rhône ? en mer méditerranée ?

Quelles actions sont à entreprendre ? Combien faut-il de temps avant d'observer les effets des actions environnementales entreprises ?

Les résultats attendus permettront enfin de **révéler** les stocks potentiels de polluants dans les zones d'accumulation sédimentaires et l'âge de ces stocks.

Quelles sont les conséquences de la réhabilitation des lônes et de la restauration écologique du fleuve conduisant à remanier les stocks de contaminants accumulés depuis des décennies ? Quels sont les risques liés à la remise à

disposition des eaux du fleuve des contaminants du passé ? pour la qualité de la ressource en eau ? pour le domaine marin ? pour les marges alluviales et la plaine d'inondation ?

Objectifs et méthodologie :

Pour répondre aux différentes problématiques, trois archives sédimentaires seront collectées le long du Rhône :

- Le prélèvement d'une archive à l'aval du Rhône avant l'embouchure, permettra d'étudier l'ensemble des apports du bassin versant et d'apprécier l'évolution des flux de contaminants au domaine marin. L'emplacement de cette archive est déjà connue et des études antérieures ont déjà été réalisées à cet emplacement (Desmet et al., 2012 ; Mourier et al., 2014).
- Pour caractériser les niveaux de référence des polluants, une archive sera échantillonnée en amont du Rhône, proche de la frontière Suisse. Elle permettra d'évaluer les apports des rejets industriels qui entrent sur le territoire. Une prospection doit avoir lieu pour définir l'emplacement idéale pour collecter cette archive en prenant soin d'être situé en amont de la confluence du Rhône avec l'Arve, un affluent industrialisé dont l'apport sédimentaire est important (Desmet et al., 2012 ; Mourier et al., 2014). Un carottage en amont du lac Léman aurait été pertinent afin d'acquies les valeurs des référentiels, toutefois le régime torrentiel caractérisant cette partie du fleuve ne permet pas l'accumulation pérenne de sédiments fins et la consolidation d'archives sédimentaires exploitables.
- La dernière archive sera collectée dans la Saône afin de préciser la contribution de cet affluent majeur du Rhône, en termes d'étendue de son bassin versant, de débit et de déploiement historique d'activités industrielles.

Les trois archives seront prélevées dans des zones non perturbées afin d'obtenir des enregistrements continus des dépôts sédimentaires (sédimentation continue) ou permettant de capturer à minima les dépôts des crues annuelles (sédimentation graduelle). Un set de carottage à percussion motorisé (Eijkkelkamp) sera utilisé pour prélever des archives de plusieurs mètres. Les quantités prélevées seront adaptées afin de permettre la réalisation de l'ensemble des mesures des contaminants étudiés dans le cadre de ce projet. Les archives sédimentaires seront datées (spectrométrie gamma) par l'IRSN afin d'évaluer leur potentialité à reconstruire les niveaux de contamination du passé. Deux méthodes s'appuyant sur des radionucléides seront utilisés pour atteindre cet objectif (datation par le ¹³⁷Cs et par le ²¹⁰Pb en excès). Pour caractériser au mieux les archives et s'affranchir des biais liés à la nature du sédiment, des paramètres supplémentaires seront mesurés (granulométrie, teneurs en carbone organique, Core scanner...).

L'analyse des principaux radionucléides émetteurs gamma (⁵⁴Mn, ⁶⁰Co, ^{110m}Ag, ¹³⁷Cs...) permettra de caractériser leur tendance dans ce fleuve, berceau du développement de l'énergie nucléaire en France depuis le milieu du siècle dernier. Une analyse plus approfondie des isotopes de l'Uranium sera réalisée pour caractériser les niveaux de contamination de ce polluant peu étudié dans le linéaire Rhodanien. Ces données acquises par l'IRSN permettront de préciser les temps de résilience de ces contaminants rejetés depuis plus de soixante ans dans ce fleuve soumis à des rejets de l'industrie nucléaire qui déclinent progressivement depuis la mise en démantèlement, en 1990, du centre de retraitement du combustible nucléaire usagé de Marcoule.

Concernant le mercure, de précédentes études se sont focalisées sur la contamination du bassin du Rhône comme les travaux de Santiago et al. (1994) et de Sonney et al. (2005) suggérant que la Saône représentait une source potentielle d'Hg. Un rapport de l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse (AE RMC, 2004) mettait également en avant une pollution par le Hg en différents sites du bassin du Rhône (e.g., en aval de Genève, sur le Drac, sur l'Isère et sur la Durance). Les travaux menés actuellement dans le cadre de l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) ont montré une tendance à la baisse des concentrations en Hg dans les matières en suspension sur le Haut Rhône à Jons, alors que les niveaux les plus importants étaient reportés pour la Saône (~0.2 mg/kg) avec des concentrations ponctuelles importantes reportées courant 2012 (~2 mg/kg). Afin de mieux appréhender l'historique des contaminations en mercure, Isrtea propose d'analyser les teneurs en mercure total dans les sédiments des trois carottes. Quant aux métaux, les Cd, Pb, Zn, As, Cu, Ni, Cr, Co, V, Sb, Sn, Ag, Fe, Mn seront analysés ainsi que les U, Th et les Terres rares. L'évolution de la partition naturelle/anthropique de ces éléments au cours des dernières décennies sera précisée en se référant à l'archive de référence collectée sur le linéaire amont (CEREGE). Enfin, l'analyse de certains composés organiques (PCB, dioxydes, RFB...) sera également réalisée par l'ENTPE pour quantifier ces contaminants persistants. L'étude de molécules envisagées comme "indicateurs" d'usage, ou de molécules interdites, pourrait apporter des informations sur leur devenir après leur interdiction (certains pesticides organochlorés ou leur remplaçant comme HCH/HCB ou DDT/DDE).

L'archive prélevée dans la partie terminale du Rhône, en amont de son embouchure, permettra notamment une mise en perspective des apports à la mer et de leur évolution au cours du temps. Les flux de contaminants au domaine marin seront estimés à partir de la connaissance des débits liquides et des flux de matières en suspension déterminés dans le cadre de l'OSR (thèse de Marina Launay). L'association de ces flux de matière avec les niveaux de contamination mesurés dans l'archive permettra d'estimer les flux annuels des différents polluants vers la Méditerranée au cours du temps, et d'observer les tendances. Enfin, cette archive sédimentaire sera utilisée pour conforter les travaux de traçages réalisés au sein de l'OSR4, en particulier ceux qui ont permis d'identifier certaines sources de sédiments (Arve, Ain, Fier, Guiers, Bourbre) (Bretier, 2015). Les proportions relatives des métaux dans la fraction réfractaire du sédiment

(minéralisation totale, triacide) /échangeables (minéralisation douce à l'acide chlorhydrique) des différentes strates seront évaluées pour déterminer l'origine des sédiments à l'échelle de l'affluent (IRSTEA, [Dabrin et al., 2014](#)).

L'ensemble des résultats du projet devrait ainsi permettre d'évaluer l'évolution des niveaux d'anthropisation des eaux du fleuve au cours des dernières décennies, en considérant différentes familles de contaminants (Radionucléides artificiels, métaux, composés organiques), l'évolution des flux délivrés au domaine marin et de préciser les temps de résilience (autoépuration du système).

Références citées :

AERMC, 2004. Qualité des cours d'eau. Réseau national des bassins Rhône - Méditerranée et Corse. Résultats 2002. Rapport technique, Agence de l'Eau Rhône-Méditerranée et Corse. 77p.

Antonelli C., 2015. Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2013. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2015-30.

Bretier, M. 2015. Réactivité et origine des matières en suspension et des métaux associés sur le bassin versant du Rhône. Rapport de M2, Irstea, 51 pp.

Dabrin, A., Schäfer, J., Bertrand, O., Masson, M., Blanc, G. 2014. Origin of suspended matter and sediment inferred from the residual metal fraction: application to the Marennes Oleron Bay, France. *Continental Shelf Research*, 72, 119-130.

Desmet, M., Mourier, B., Mahler, B.J., Van Metre, P.C., Roux, G., Persat, H., Lefèvre, I., Peretti, A., Chapron, E., Simonneau, A., Miège, C., Babut, M., 2012. Spatial and temporal trends in PCBs in sediment along the lower Rhône River, France. *Sci. Total Environ.* 433, 189–197.

Ferrand E., Eyrolle F., Radakovitch O., Provansal M., Dufour S., Vella C., Raccasi G. and Gurriaran R., 2012. Historical levels of heavy metals and artificial radionuclides reconstructed from overbank sediment records in lower Rhône River (South - East France), *Geochemica and Cosmochimica Acta*, special Issue on Environmental Records of Anthropogenic Impacts, 82, 163-182.

Grosbois C., Meybeck M., Lestel L., Moatar F., Lefèvre I., 2012. Severe and contrasted polymetallic contamination patterns (1900–2009) in the Loire River sediments (France), *Science of the Total Environment*, 435-436, 290-305.

Meybeck M. De Marsily G., Fustec E., 2000. La Seine en son bassin, fonctionnement écologique d'un système fluvial anthropisé, Elsevier Ed.

Mourier, B., Desmet, M., Van Metre, P.C., Mahler, B.J., Perrodin, Y., Roux, G., Bedell, J.P., Lefèvre, I., Babut, M., 2014. Historical records, sources, and spatial trends of PCBs along the Rhône River (France). *Sci. Total Environ.* 476-477, 568–576.

Provansal M., Ferrand E., Eyrolle F., Raccasi G., Monaco M. and Guriarran R., 2012. Spatial variability in sedimentation rates and artificial radionuclide storage in alluvial banks of the lower Rhône River, *Aquatic Sciences*, special issue, 74, 735-750.

Santiago S, Thomas RL, Larbaigt G, Corvi C, Rossel D, Tarradellas J, et al. 1994. Nutrient, heavy metal and organic pollutant composition of suspended and bed sediments in the Rhone River. *Aquat Science*, 56, 220–42.

Budget global du projet, durée et aide annuelle demandée :

Le budget global du projet est estimé à 176 k€ soit une aide demandée de 88k€ (50% du budget total) :

Equipe	Personnel	Mission	Analyse	Total (€)	50% (€)
IRSN	25928	2229	31067	59224	29612
CEREGE	15875	0	6900	22775	11388
IRSTEA	11084	1000	20356	32440	16220
ENTPE	32114	3367	26400	61881	30941
				Total (€)	88160

Ce budget comprend la réalisation de trois campagnes de prélèvements et l'analyse des nombreux polluants et des éléments de caractérisation des archives en vue de la reconstruction des chronologies.

La durée du projet serait de deux ans avec restitution des résultats fin 2018 :

	2017				2018			
	T1	T2	T3	T4	T1	T2	T3	T4
Campagne d'échantillonnage	x	x	x	x				
Envoi des échantillons et analyses	x	x	x	x	x			
Interprétation des résultats des analyses		x	x	x	x			
Reconstruction de la chronologie des niveaux de contamination (Q44)			x	x	x	x	x	
Contribution relative des termes source (Q44)			x	x	x	x	x	
Détermination des flux (Q24)			x	x	x	x	x	
Rapports préliminaire et final				x				x

Rappels

Tout projet ZABR doit répondre à 5 critères : être pluridisciplinaire, entrer dans les problématiques scientifiques de la ZABR, impliquer au moins 2 équipes du GIS ZABR, s'appliquer sur un site ou un observatoire de la ZABR, provenir d'équipes ayant une production scientifique internationale garantissant la valorisation future du travail de recherche. Tous les renseignements sont disponibles sur le site internet de la ZABR. <http://www.zabr.org>

Remarque : le critère de site ou d'observatoire peut être levé s'il est démontré : soit que l'action est en lien avec des travaux en cours sur un site ou un observatoire de la ZABR (ex : test d'un outil sur un autre secteur), soit si l'action permet une analyse comparative avec les travaux réalisés sur les sites et observatoires et nécessite de passer à l'échelle du bassin versant du Rhône.

Modalités d'intervention de l'Agence de l'Eau :

Règle générale : une subvention de 50% d'un budget prévisionnel HT

Montant global alloué par l'Agence de l'Eau sur l'accord cadre AE ZABR : 250 k€ à 300 k€/an