Flux de matières en suspension, de mercure et de PCB particulaires dans le Rhône, du Léman à la Méditerranée

Marina Launay Launay

▶ **To cite this version:**

Marina Launay Launay. Flux de matières en suspension, de mercure et de PCB particulaires dans le Rhône, du Léman à la Méditerranée. Génie chimique. Université Claude Bernard - Lyon I, 2014. Français. NNT : 2014LYO10004 . tel-01128294

HAL Id: tel-01128294

https://theses.hal.science/tel-01128294

Submitted on 9 Mar 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.

Université Claude Bernard Lyon 1

UNIVERSITÉ DE LYON

N° d'ordre : 4 - 2014 Année 2014

THÈSE DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

délivrée par

L'UNIVERSITÉ CLAUDE BERNARD LYON 1

ÉCOLE DOCTORALE DE CHIMIE DE LYON

DIPLÔME DE DOCTORAT

(arrêté du 7 août 2006)

Soutenue publiquement le 20 janvier 2014 à Villeurbanne

par

Marina LAUNAY

Flux de matières en suspension, de mercure et de PCB particulaires dans le Rhône, du Léman à la Méditerranée

Mme Barbara MAHLER	Research Hydrologist (USGS Austin)	Rapporteur
M. Daniel COSSA	Chercheur (ISTerre, Université Grenoble)	Rapporteur
M. Alain CRAVE	Chargé de recherche (OSUR, Université Rennes)	Examinateur
M. Julien NÉMERY	Maître de conférence (LTHE, Université Grenoble)	Examinateur
M. Olivier RADAKOVITCH	Maître de conférence (CEREGE, Université Aix-Marseille)	Examinateur
M. Jérôme RANDON	Professeur (ISA-LSA, Université Lyon 1)	Examinateur / Président
M. Thomas PELTE	Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse	Invité
Mme Marina COQUERY	Directrice de recherche (Irstea Lyon-Villeurbanne)	Directrice de thèse
M. Jérôme LE COZ	Chercheur IPEF (Irstea Lyon-Villeurbanne)	Co-directeur de thèse

irstea

Remerciements

Cette thèse n'aurait pu voir le jour sans le soutien et l'implication de nombreuses personnes, aussi, je tiens à leur adresser ici toute ma gratitude. Marina & Jérôme, je vous dois vraiment beaucoup. Votre accompagnement dans ces trois années de travail a été une incroyable chance. Merci pour toute la passion que vous avez mis dans ce travail, votre patience et votre bienveillance à mon égard. Ce fût un honneur de travailler avec vous et j'espère vraiment que ma route recroisera la vôtre.

Au cours de ces trois années, j'ai bénéficié du soutien technique indéfectible de Mickaël Lagouy, Fabien Thollet, Guillaume Dramais, Hélène Angot, Marie Courtel, Josselin Panay, Ghislaine Grisot et Chloé Le Bescond. Merci d'avoir toujours répondu présents pour le terrain, les analyses à répétition, la bancarisation des données, et ce par tous les temps et parfois le week-end, très tôt le matin ou très tard le soir. Merci pour votre professionnalisme et tous les bons moments passés ensemble. Merci également aux volontaires de tous horizons qui ont participé aux manip de terrain, les nombreux(ses) venu(e)s mesurer la Rhodamine dans le Rhône, ceux et celles qui ont participé aux prélèvements à Jons ou au suivi des chasses du Rhône. Je remercie vivement l'équipe de chimie générale de Paul Le Pimpec qui a fourni un sacré travail pour l'analyse des multiples échantillons de MES, à l'équipe Dynam pour nous avoir prêté hommes et bateaux et à Clément Crétollier pour son aide répétée sur le granulomètre laser.

J'adresse un remerciement tout particulier à Laëtitia Roux pour son enthousiasme et sa curiosité lors de son très utile stage avec moi. Merci également à Guillaume Fantino pour sa disponibilité et son accueil pour l'analyse spatiale et la cartographie. Et merci à Carla Walter et Emilie Andriès, pour leur fabuleux travail sur le modèle du Rhône, leur professionnalisme, leur efficacité et leurs sourires.

Je souhaite remercier les membres de mon comité de thèse, dont les conseils et les remarques avisées m'ont été très précieux : Frédérique Eyrolle (IRSN), Anne Perrissin (Grand Lyon), Cécile Miège (Irstea), Daniel Cossa (UJF), Julien Némery (LTHE), Thierry Meunier (Séché), Alain Poirel (EDF) et Sylvain Reynaud (CNR). J'adresse également mes sincères remerciements aux membres du jury, Barbara Mahler, Daniel Cossa, Alain Crave, Julien

Némery, Olivier Radakovitch, Thomas Pelte et Jérôme Randon, pour avoir accepté d'évaluer mon travail. Merci pour la qualité de la discussion scientifique lors de la soutenance.

Ma thèse utilise un grand nombre de données, provenant de sources variées et qui n'ont pu être réunies que grâce aux bonnes volontés de nombreux partenaires. Je remercie donc vivement Véolia-Grand Lyon pour avoir permis l'installation de la station de Jons et la réalisation des traçages en 2011. Merci particulièrement à Pascal, Christelle et Aymeric pour votre aide, toujours avec bonne humeur. Merci à EDF de nous avoir autorisé à franchir le barrage de Jons pour accéder à la station. Nénesse et Armand, ça a été un plaisir de vous croiser à chaque tournée à la station, merci pour le café les jours de grand froid ! Merci à la CNR pour toutes les données fournies sur le Haut-Rhône, et tout particulièrement merci à l'équipe de Gilles Pierrefeu qui m'a toujours accueillie avec bonne humeur. Merci aux équipes de l'OSR "Sud", Cerege, COM, IRSN, pour les discussions scientifiques et opérationnelles, les analyses complémentaires des échantillons, les retours sur les articles, l'enthousiasme pour les sédiments du Rhône. Merci à Seydina Diouf et aux SIG pour l'installation de la station de mesure sur l'Arve, leur efficacité et leur précieux intérêt.

Je voudrais remercier chaleureusement toutes les personnes d'Irstea qui ont contribué à me faciliter la vie pour toutes les questions pratiques. Un énorme merci donc à Anne & Hélène dont le nombre de coups de main dépassent l'imagination, à la chaleureuse équipe de la doc, Anne-Laure & Aline qui m'a abondamment fournie en livres, thé et petits encouragements, aux magiciens de l'informatique, avec une dédicace spéciale pour Antoine a qui je dois toujours une tablette de chocolat pour le dernier dépannage.

Oui, ces trois années ont été riches en travail, mais elles ont aussi, et surtout, été pleines de belles rencontres et de grands moments à Lyon et ailleurs. Mes meilleures pensées à la toujours présente Lucie, au grimpeur Xavier, au joueur Romain, à la yogi Céline, à l'enthousiaste Carla, à la riante Mériem, aux chimistes fêtards, Azziz, Nico, Eva, Fabienne, Aurélie, Aymeric, Marion-Justine & Amandine, au grand duc Josselin, à l'idéaliste Virginie, aux utopistes marcheurs Marie & Mathieu, à la ptite Lucie, au danseur Martin, à la savante Sabine, au quizz-man Raphaël, au complémentaire François, aux afficionados des sédiments de l'Arc Momo & Germain, au desprogien Pierre-Henri, à l'humoriste Xun, à l'urban trailer Eric, à la pétillante Anne-Laure, aux drôles de dames du fond Audrey & Claire, au cycliste Benjamin, à mon R-master Jean-Philippe, au bouillonnant Benoît et à la grande cuisinière Flora, merci pour les discussions, le café et son chocolat, les grosses soirées, les bons repas, les conseils avisés, les apéro petits et gros, les voyages à l'autre bout du monde, le yoga, la

course à pied, l'escalade, les sourires, les mots d'encouragements, et toutes ces petites choses qui rendent la vie agréable. J'adresse une pensée toute particulière à la troupe de thésards HH, ceux qui ont parcouru tout ce chemin avec moi, et ceux qui voient la fin approcher à toute vitesse !

Un merci tout particulier à mes plus ou moins éphémères colocataires, Hélène LA coloc', Alexia, Amélie et Michel les squatteurs et Ignazio coloc' de la dernière heure et amoureux des mots. Un immense merci au noyau de GB toujours existant, les jeunes parents Pierre & Lucie, le maillot jaune des Alpes Aymeric, les miribélistes Vivien et Adèle, l'interrogateur Nicolas C., la lyonnaise Marine, la blonde Mathilde, les savoyards Marie & Enrico et l'inépuisable skieuse Tanya. Merci à Mélanie, Anaïs et Nicolas F., d'être là, même de loin, et pour tous les moments importants. Enfin, spéciale dédicace à la troupe Cemagref 2009 : je n'aurai qu'un mot, pourvu qu'on continue longtemps à croquer le monde ensemble, à ski, à frisbee, à vélo, en luge, à pied, sur des falaises, autour d'un jeu ou d'un appareil à raclette !

Enfin, merci de tout mon cœur à Julien, maman, papa, Pauline, Etienne, Soléa, Florence et Jean-François. Vous m'apportez tant de soutien, de force, d'amour, de bonheur, de solide et d'inébranlable, de doutes et de crises, de joies et d'envies, d'ouverture, de discussions, de racines et d'horizons, de ... ! Merci d'être là, tout le temps, même pour échantillonner la crue de l'Arve à Noël, ou pour faire l'aller-retour à Lyon un soir de semaine pour me serrer dans vos bras. Marie-Claire et Patrick, merci de m'avoir accueillie et offert cet espace de tranquillité dont j'avais tant besoin pour avancer au cours du dernier été.

Résumé

La connaissance des flux de contaminants particulaires véhiculés par les cours d'eau est cruciale pour la gestion des pollutions environnementales, mais elle se heurte à d'importantes difficultés technologiques, méthodologiques et scientifiques. Grâce à un effort d'observation intensive rendue possible par l'Observatoire des sédiments du Rhône, ce travail de recherche s'est concentré sur la dynamique spatio-temporelle des flux de contaminants particulaires – mercure et PCB – au sein du Rhône et de ses principaux affluents contributeurs en matières en suspension (MES) : l'Arve, la Saône, l'Isère et la Durance. La stratégie d'observation choisie et validée privilégie un échantillonnage quasi-continu des débits, concentrations en MES (par turbidimétrie) et teneurs en contaminants (par piège intégratif), associé à des prélèvements de référence (manuels, ou par centrifugation) et à une caractérisation détaillée des particules en termes de granulométrie et de taux de carbone organique. A partir des données ainsi mesurées et existantes, l'étude de la variabilité spatio-temporelle des différents paramètres et de leurs facteurs d'influence a permis de proposer et de valider des méthodes adaptées pour la quantification des flux particulaires à l'échelle événementielle, annuelle et inter-annuelle. Ces résultats fournissent une nouvelle vision des flux particulaires dans le Rhône à l'échelle du réseau hydrographique, et soulignent l'importance des événements hydro-sédimentaires majeurs et des interactions avec les aménagements hydro-électriques. Ces processus hydro-sédimentaires complexes motivent une contribution à l'amélioration de la simulation numérique du Rhône.

Mots-clé :

Flux particulaires, matières en suspension, mercure, polychlorobiphényles, Rhône, modélisation hydro-sédimentaire.

Abstract

The knowledge of particulate contaminant fluxes transported by rivers is crucial for the management of environmental pollution, but it is compromised by significant technological, methodological and scientific difficulties. Through an intensive observational effort made possible by the Rhône Sediment Observatory, this research focused on the spatio-temporal dynamics of particulate contaminant – mercury and PCBs – fluxes in the Rhône and its major tributaries as regards suspended particulate matters (SPM) contribution : the Arve, Saône, Isère and Durance rivers. The chosen and validated observation strategy is based on the quasi-continuous monitoring of discharge, SPM concentrations (by turbidimetry) and contaminant contents (using sediment integrative traps), associated with samples of reference (manual sampling or centrifugation) and a detailed characterization of particles in terms of grain-size and organic carbon contents. From measured and existing data, the study of the spatio-temporal variability of parameters and of their factors of influence allowed us to propose and validate suitable methods for the quantification of particulate fluxes at the event, annual and inter-annual scales. These results provide a new insight into the particulate fluxes throughout the Rhône river system and highlight the importance of major hydro-sedimentary events and of the interactions with hydro-power schemes. Such complex hydro-sedimentary processes motivate the improvement of the numerical simulation of the Rhône river.

Keywords : Particulate fluxes, suspended particulate matters, mercury, polychlorobiphenyls, Rhône river, hydro-sedimentary modeling.

Acronymes

ADCP : acoustic Doppler current profiler

ADEME : agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie

AERMC : agence de l'eau - Rhône Méditerranée Corse

BRC : teneur ambiante de référence

CEREGE : centre de recherche et d'enseignement de géosciences de l'environnement

CIPR : commission internationale pour la protection du Rhin

CNR : Compagnie Nationale du Rhône

DCE : directive cadre européenne sur l'eau

DREAL : direction régionale de l'environnement, de l'aménagement et du logement

EAC : critère d'évaluation écotoxicologique

EDF : Électricité de France

ENTPE : École nationale des travaux publics de l'État

FAO : Organisation des Nations Unies pour l'alimentation et l'agriculture

FRAPNA : fédération Rhône-Alpes de protection de la nature

Hg : mercure

IPL : Institut Pasteur Lille

IRSN : institut de radioprotection et de sûreté nucléaire

Irstea : institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture

IUPAC : international union of pure and applied chemistry

Kow : coefficient de partage octanol-eau

LD : limite de détection

LQ : limite de quantification

MES : matières en suspension

MRC : matériau de référence certifié

NQE : norme de qualité environnementale

NQE-MA : norme de qualité environnementale exprimée en valeur moyenne annuelle

NQE-CMA : norme de qualité environnementale exprimée en concentration maximale admissible

OFEV : office fédéral de l'environnement (Suisse)

OMS : organisation mondiale de la santé

OSPAR (convention) : pour "Oslo-Paris", convention pour la protection du milieu marin de l'Atlantique du Nord-Est, entrée en vigueur le 25 mars 1998

OSR : observatoire des sédiments du Rhône

PCB : polychlorobyphényle

PCB-DL : polychlorobypényles de type dioxine, (dioxin-like) : PCB 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169 et 189

PCBi : polychlorobypényles indicateurs : PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153 et 180

POP : polluants organiques persistants

RNO : Réseau National d'Observation de la qualité du milieu marin

SIG : services industriels de Genève

SFMCP : société des forces motrices de Chancy-Pougny

SORA : station observatoire du Rhône à Arles

TSIP-PCB : programme de recherche "transferts de contaminants hydrophobes dans le Rhône du sédiment au biote"

WWF : world wildlife fund

Table des matières

Remerciements i

Résumé v

Abstract vii

Liste des acronymes ix

Introduction 1

1 Problématique de la thèse . . . 1
1.1 La contamination particulaire dans les cours d'eau . . . 1
1.2 Difficulté de quantifier les flux dans les cours d'eau . . . 3
1.3 Contexte de la thèse et approche scientifique . . . 7
2 Le mercure . . . 9
2.1 Caractéristiques physico-chimiques et réglementation . . . 9
2.2 Sources de mercure . . . 11
2.3 Contamination des cours d'eau . . . 13
3 Les polychlorobiphényles . . . 16
3.1 Caractéristiques physico-chimiques et réglementation . . . 16
3.2 Sources de PCB . . . 18
3.3 Contamination des cours d'eau . . . 18
4 Le Rhône : un fleuve contrasté et fortement aménagé . . . 24
4.1 Caractéristiques hydrographiques . . . 24
4.2 Les aménagements du Rhône . . . 26
4.3 Les flux particulaires transportés par le Rhône . . . 27
5 Le Rhône, un fleuve pollué ? . . . 28
5.1 Suivi et études de la contamination . . . 28
5.2 Le mercure dans le Rhône . . . 31
5.3 Les PCB dans le Rhône . . . 33
6 Objectifs et démarche scientifique . . . 35

1 Quantification des flux particulaires : état de l'art **39**

1.1 Introduction . . . 39
1.2 Définitions et principes des observations . . . 39
1.2.1 Définition du flux particulaire et des particules considérées . . . 39
1.2.2 Principe de mesure des trois paramètres du flux particulaire . . . 42
1.2.3 Choix de la section de mesure . . . 47
1.2.4 Normalisation des teneurs en contaminants . . . 48
1.3 Méthodes de calcul des flux de MES . . . 50
1.3.1 Les méthodes d'interpolation . . . 51
1.3.2 Les méthodes d'extrapolation . . . 54
1.3.3 Les méthodes par estimation de l'érosion et modélisation hydrologique . . . 55
1.3.4 L'analogie avec le comportement sédimentaire des bassins versant proches . . . 59
1.3.5 Comparaison des méthodes . . . 60
1.4 Méthodes de calcul des flux de contaminants particulaires . . . 65
1.4.1 Les méthodes d'interpolation . . . 66
1.4.2 Les méthodes d'extrapolation . . . 67
1.4.3 Conclusion . . . 69
1.5 Incertitudes sur le calcul de flux de contaminants particulaires . . . 70
1.5.1 Expression de l'incertitude combinée . . . 70
1.5.2 Incertitudes associées à la mesure du débit . . . 72
1.5.3 Incertitudes associées à la mesure de la concentration en MES . . . 75
1.5.4 Incertitudes associées à la mesure de teneur en contaminants particulaires . . . 77
1.5.5 Conclusion sur les incertitudes . . . 79

2 Méthodes pour l'observation et l'interprétation des flux particulaires **81**

2.1 Introduction . . . 81
2.2 Mesure des concentrations en MES . . . 82
2.2.1 Prélèvement puis Filtration-Pesée . . . 82
2.2.2 Méthode de la "crêpe" . . . 85
2.2.3 Mesure au pycnomètre (densimétrie) . . . 85
2.2.4 Turbidimétrie . . . 86
2.3 Analyses physico-chimiques des MES . . . 90
2.3.1 Techniques de prélèvement des MES pour les analyses physico-chimiques . . . 90
2.3.2 Prétraitement des échantillons . . . 99
2.3.3 Granulométrie . . . 99
2.3.4 Carbone organique particulaire . . . 102

2.3.5 Mercure total . . . 103
2.3.6 Polychlorobiphényles . . . 104
2.4 Traitement des résultats d'analyse physico-chimique . . . 107
2.4.1 Description de la distribution granulométrique d'échantillons multimodaux . . . 107
2.4.2 Correction par suppression de la fraction non porteuse . . . 110
2.4.3 Normalisation des teneurs en contaminants . . . 112
2.5 Outils statistiques d'interprétation des données . . . 115
2.5.1 Les boîtes à moustaches . . . 115
2.5.2 Le test de Wilcoxon Mann-Whitney . . . 116
2.5.3 Le coefficient de Spearman . . . 116
2.6 Conclusion . . . 116

3 Présentation du réseau de mesure et des jeux de données 119
3.1 Introduction . . . 119
3.2 Les réseaux de suivi des flux particulaires du Rhône . . . 119
3.2.1 Le réseau Eau et MES de l'Agence de l'Eau . . . 119
3.2.2 Le réseau de suivi des flux de l'OSR . . . 120
3.3 La mesure aux stations du suivi OSR . . . 125
3.3.1 L'Arve à Genève Bout-du-Monde . . . 125
3.3.2 Les affluents du Haut-Rhône . . . 128
3.3.3 Le Rhône à Jons . . . 131
3.3.4 La Saône à Lyon . . . 136
3.3.5 L'Isère à Beaumont-Monteux . . . 138
3.3.6 La Durance à Bonpas . . . 141
3.3.7 Le Rhône à Arles . . . 141
3.4 Suivi de deux événements hydrosédimentaires majeurs . . . 144
3.4.1 L'événement de mai-juin 2008 sur l'Isère, la Durance et le Rhône aval . . . 145
3.4.2 Les chasses du Haut-Rhône de juin 2012 . . . 147
3.5 Bilan des données collectées . . . 155
3.5.1 Données de débit . . . 155
3.5.2 Données de concentrations en MES . . . 157
3.5.3 Teneurs en PCB et en mercure . . . 159

4 Variabilité spatio-temporelle des flux particulaires 169
4.1 Introduction . . . 169

4.2 La variabilité spatio-temporelle du débit, des flux de MES et de la composition des particules . . . 169
4.2.1 La variabilité du débit . . . 169
4.2.2 La variabilité des concentrations et des flux de MES . . . 170
4.2.3 La variabilité des teneurs en contaminants . . . 176
4.3 Reconstitution de la variabilité temporelle des flux de MES . . . 182
4.3.1 Etude de cas : l'Arve à Genève Bout-du-Monde . . . 182
4.3.2 Choix d'une méthode de calcul pour les différentes stations . . . 195
4.4 Reconstitution de la variabilité temporelle des flux de contaminants particulaires . . . 197
4.4.1 Etude de cas : le Rhône à Jons . . . 197
4.4.2 Choix d'une méthode de calcul pour les différentes stations . . . 214
4.5 Conclusion . . . 215

5 Les flux de MES, de PCB et de mercure dans le Rhône 217
5.1 Introduction . . . 217
5.2 Dynamique intra-événementielle . . . 218
5.2.1 L'événement de mai-juin 2008 sur l'Isère, la Durance et le Rhône aval . . . 218
5.2.2 Les chasses du Haut-Rhône 2012 . . . 222
5.2.3 Conclusion . . . 227
5.3 Bilans de flux annuels et inter-événementiels . . . 229
5.3.1 La variabilité inter-annuelle des flux particulaires . . . 229
5.3.2 Bilans de flux dans le Haut-Rhône . . . 235
5.3.3 Bilans de flux dans l'ensemble du Rhône . . . 244
5.4 Analyse spatiale du Haut-Rhône et de la Saône . . . 251
5.4.1 Application de la méthode PESERA . . . 252
5.4.2 Sensibilité à l'érosion des bassins versants . . . 254
5.5 Conclusion . . . 256

6 Contribution à la modélisation des processus hydro-sédimentaires dans le Rhône 259
6.1 Introduction . . . 259
6.2 Les codes de simulation numérique : MAGE et ADIS-TS . . . 260
6.2.1 Le modèle hydraulique 1D : MAGE . . . 260
6.2.2 Le modèle 1D d'advection-diffusion : ADIS-TS . . . 261
6.3 Le modèle du Rhône . . . 263
6.4 Avancées sur les principaux verrous scientifiques identifiés . . . 267
6.4.1 Calage hydraulique : aménagements et coefficients de Strickler . . . 267

6.4.2 Paramétrage du coefficient de dispersion longitudinale . . . 272
6.4.3 Sensibilité aux paramètres sédimentaires . . . 272
6.5 Perspectives d'améliorations et d'utilisation . . . 274
6.5.1 Les limites du modèle . . . 274
6.5.2 La suite des travaux de modélisation . . . 275

Conclusion générale et perspectives **277**
1 Conclusion . . . 277
1.1 Stratégie d'observation des flux particulaires . . . 277
1.2 Caractérisation des particules vectrices de contamination . . . 278
1.3 Dynamique spatio-temporelle de la contamination des MES du Rhône . . . 279
1.4 Quantification des flux particulaires du Rhône et de ses affluents . . . 280
1.5 Contribution à la modélisation . . . 282
2 Perspectives . . . 283
2.1 Développements métrologiques . . . 283
2.2 Développement du réseau de mesure de l'OSR . . . 284
2.3 Analyse de l'historique et des sources des flux particulaires . . . 285
2.4 Modélisation des processus sédimentaires dans le réseau hydrographique . . . 286
2.5 Transfert des contaminants vers le compartiment biologique . . . 286

Bibliographie **289**

Annexes **307**

A Les PCB **307**
A.1 Propriétés physico-chimiques des 7 PCB indicateurs . . . 307
A.2 Teneurs en PCB dans les sédiments . . . 307

B Protocoles de l'observatoire des sédiments du Rhône (OSR) **309**
B.1 Nomenclature des échantillons . . . 309
B.2 Protocole d'utilisation de la centrifugeuse mobile Westfalia KA 2-86-075 Année 1978 312
B.3 Protocole d'échantillonnage pour le piège à sédiments . . . 315

C Comparaison des distributions granulométriques volumiques d'échantillons prélevées manuellement et avec la centrifugeuse mobile Westfalia à Jons **319**

D Autres techniques de prélèvement des matières en suspension **323**
D.1 Échantillonnage par préleveur automatique . . . 323
D.2 Échantillonnage avec un système de filtration grand volume . . . 325
D.3 Echantillonnage des dépôts de crue . . . 326
D.4 Sédiments superficiels . . . 327
D.5 Carottes stratigraphiques . . . 329

E Representativeness of contaminant contents in suspended solids collected in rivers using integrative sediment traps, article en préparation **331**

F Hétérogénéité des concentrations en MES au niveau de la station de mesure de Ternay sur le Rhône **363**

G Relations entre la concentration en MES et la turbidité pour les stations permanentes et temporaires sur le Rhône et ses affluents **367**

H Détermination des débits dans la zone Miribel-Jonage **375**

I Synthèse des données de débit, de concentrations en MES et de teneurs en contaminants réunies **379**

J Difficulté des comparaisons de bilans de dépôt et de flux **385**

K Bilans de flux de MES annuels sur le Haut-Rhône **389**

L Calibrating pollutant dispersion in 1-D hydraulic models of river networks, article soumis **395**

Liste des tableaux

1 Etat des connaissances pour les réseaux d'observation classiques et ordre de grandeur des variations spatiale et temporelle relatives des paramètres à la base du calcul de flux de contaminant particulaire : le débit, la concentration en MES et les teneurs en contaminants dans les MES. 3

2 Les différentes formes physico-chimiques du mercure dans l'environnement, extrait de Cossa et Ficht (1999) 10

3 Concentrations en mercure total et méthylmercure mesurées en France, d'après Bisson *et al.* (2010) 13

4 Teneurs moyennes (minimale-maximale) en mercure particulaire mesurées dans quelques fleuves de la planète d'après la littérature 15

5 Teneurs moyennes (minimale-maximale) en PCB mesurées dans les MES recensées dans la littérature 22

6 Estimations de flux moyens annuels de PCB transportés par les fleuves présentées dans la littérature 23

1.1 Méthodes de calcul de flux de MES par interpolation issues de la littérature 53

1.2 Méthodes de calcul de flux de MES par extrapolation 56

1.3 Processus considérés dans le calcul de l'estimation des exports de sédiments à l'exutoire SSY et définition des indicateurs HE, MM, DD et D (Delmas *et al.*, 2009) 58

1.4 Classification du paramètre "pente" pour l'identification des zones de sensibilité à l'érosion selon la méthode de Bertrand (2009) 59

1.5 Méthode de pondération de Saaty pour définir l'importance relative de chaque paramètre dans le calcul de la sensibilité à l'érosion des bassins versants selon Bertrand (2009) . 60

2.1 Comparaison des systèmes de prélèvement de MES ou de sédiments pour les analyses physico-chimiques. Le nombre d'étoiles indique qualitativement la performance ou l'importance relative de chaque critère d'évaluation, du moins satisfaisant (*) au plus efficace (***) 93

2.2 Définition des 4 sous-populations granulométriques identifiées dans nos échantillons. 108

3.1 Affluents sur lesquels la station temporaire a été installée. Période et pourcentage d'enregistrement . . . 130
3.2 Données de débit et concentrations en MES recueillies au niveau des stations du Rhône, du réseau Arc Isère et de la Durance pour le calcul des flux de MES de la crue du Rhône de mai-juin 2008. . . . 145
3.3 Concentrations en MES (g/L) des affluents du Haut-Rhône mesurées par prélèvements ponctuels pendant les opérations de chasse de juin 2012. . . . 154

4.1 Valeurs de quelques indicateurs Variflux pour le classement des cours d'eau étudiés, d'après (Meybeck *et al.*, 2003). Cs* : concentration moyenne pondérée ; y* : flux spécifique moyen journalier ; Ts50 : pourcentage de temps nécessaire pour transporter la moitié de la masse de sédiment ; Ms2 : pourcentage de masse de sédiment transportée en la moitié du temps. . . . 174
4.2 Flux d'eau et flux de MES de référence (F1) pour la période de fonte, la période de pluie et l'année hydrologique entière 2012-2013 pour l'Arve à Genève Bout-du-Monde . . . 183
4.3 Synthèse des relations Cs(Q) pondérées par la racine du flux obtenues pour les différents affluents du Haut-Rhône . . . 196
4.4 Répartition des régimes hydrologiques et des flux de MES de l'année hydrologique 2011-2012 dans le Rhône à Jons. . . . 207
4.5 Flux de mercure et de $\sum$PCBi l'année 2011-2012 calculés par les méthodes A, B et C (Cf. §1.4.1) en utilisant ou non les teneurs mesurées pendant les chasses . . . 208
4.6 Flux de MES, de mercure et de $\sum$PCBi pour la période du 14/06/2012 au 01/08/2012 selon les méthodes de calcul A et B . . . 209

5.1 Flux cumulés (en Mt) sur la totalité de l'événement de mai-juin 2008 aux points-clés du réseau hydrographique (* estimation réalisée sans mesure). . . . 221
5.2 Flux et concentrations moyennes pondérées de MES, de mercure et de somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) à Pougny, Seyssel, Creys et Jons, lors des opérations de chasse du Haut-Rhône en juin 2012 . . . 227
5.3 Débits moyens annuels, de fonte et de pluie et flux de MES annuels et pourcentage du flux de MES de fonte de l'Arve à Bout-du-Monde entre 1974 et 2013. En rouge, les trois valeurs les plus fortes de chaque colonne, en bleu les trois valeurs les plus faibles. . . . 231
5.4 Bilan des flux d'eau, de MES, de mercure et de somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) mesurés dans le Haut-Rhône. Réseau = Écart relatif entre les flux du Rhône à Jons et la somme des apports des affluents. . . . 236
5.5 Bilan des flux de MES du Haut-Rhône entre septembre 2011 et décembre 2012, en distinguant les périodes avant, pendant et après les chasses de juin 2012. . . . 237

5.6 Flux de MES, de mercure et de $\sum$PCBi quantifiés à Jons, par année hydrologique (2010-2012), lors des opérations de chasse du Haut-Rhône et lors de différents événements de crue . . . 240
5.7 Densité des sédiments (W en kg/m^3) en fonction de leur classe granulométrique, issu du Erosion and Sedimentation Manual (USDI, 2006) . . . 243
5.8 Bilan des flux d'eau, de MES, de mercure et de somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) mesurés dans l'ensemble du Rhône, et concentrations moyennes pondérées de MES, mercure et $\sum$PCBi . . . 245
5.9 Flux et concentrations moyennes pondérées de MES, de mercure et de $\sum$PCBi à Jons et à Arles pour les années civiles 2011 et 2012 . . . 250

A.1 Source : http ://chem.sis.nlm.nih.gov/chemidplus/chemidlite.jsp . . . 307
A.2 Quelques concentrations maximales de PCB totaux dans les sédiments extrait de Brunet (2007) . . . 308

C.1 P-value du test de Mann-Whitney-Wilcoxon appliqué aux proportions (λ) des trois sous-populations granulométriques volumiques des paires d'échantillons de MES prélevés manuellement et à la centrifugeuse dans le Rhône à Jons. . . . 321

H.1 Mesures de débit (Q en m^3/s) par jaugeage aDcp dans le système Miribel-Jonage. CV = Coefficient de variation. . . . 376

I.1 Synthèse des stations de débit et des données collectées pour Rhône et ses affluents . 380
I.2 Synthèse des données de concentrations en MES collectées sur le Haut-Rhône. Les mesures ponctuelles ont été réalisées soient par prélèvement manuel ou automatique, pycnomètre ou "crêpe" (Cf. §2.2 pour le détail des méthodes). . . . 381
I.3 Nombre de prélèvement (n), fréquence de quantification (FQ), teneur moyenne et écart-type du carbone organique particulaire (COP), du mercure et du PCB 28 du suivi OSR (2011-2013) aux stations de l'Arve à Bout du Monde, du Rhône à Pougny, des Usses à Pont Rouge, du Rhône à Seyssel, du Fier à Motz, du Canal de Savière, du Guiers à Belmont, de la Bourbre à Tignieu, de l'Ain à Pont de Chazey, du Rhône à Jons, du Rhône à Perrache, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay (rive gauche et rive droite), de la Durance et du Rhône à Arles ; LQ : limite de quantification . . . 382

I.4 Nombre de prélèvement (n), fréquence de quantification (FQ), teneur moyenne et écart-type des PCB 52, 101 et 118 du suivi OSR (2011-2013) aux stations de l'Arve à Bout du Monde, du Rhône à Pougny, des Usses à Pont Rouge, du Rhône à Seyssel, du Fier à Motz, du Canal de Savière, du Guiers à Belmont, de la Bourbre à Tignieu, de l'Ain à Pont de Chazey, du Rhône à Jons, du Rhône à Perrache, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay (rive gauche et rive droite), de la Durance et du Rhône à Arles ; LQ : limite de quantification 383

I.5 Nombre de prélèvement (n), fréquence de quantification (FQ), teneur moyenne et écart-type des PCB 132, 153 et 180 du suivi OSR (2011-2013) aux stations de l'Arve à Bout du Monde, du Rhône à Pougny, des Usses à Pont Rouge, du Rhône à Seyssel, du Fier à Motz, du Canal de Savière, du Guiers à Belmont, de la Bourbre à Tignieu, de l'Ain à Pont de Chazey, du Rhône à Jons, du Rhône à Perrache, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay (rive gauche et rive droite), de la Durance et du Rhône à Arles ; LQ : limite de quantification 384

J.1 Densité des sédiments en fonction de leur classe granulométrique, issu du Erosion and Sedimentation Manual (USDI, 2006) 387

K.1 Flux de MES annuels calculés de l'Arve, de la Valserine, des Usses, du Fier et du Rhône à Pont de la Loi pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge. 390

K.2 Flux de MES annuels calculés du Rhône à Pont de la Loi, du Guiers et du Rhône à Creys pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge. 391

K.3 Flux de MES annuels calculés du Rhône à Creys et à Bugey pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge. 391

K.4 Flux de MES annuels calculés du Rhône à Bugey, de la Bourbre, de l'Ain et du Rhône à Jons pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge. 392

K.5 Flux de MES annuels calculés de la Saône à Lyon pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Les flux de MES mesurés sont indiqués en rouge. 393

Table des figures

1 Structure chimique des PCB. 16
2 Réseau hydrographique du Rhône et de ses principaux affluents 24
3 Localisation des aménagements hydro-éléctriques sur le Haut-Rhône. Source CNR (CNR, 2012) 28

1.1 Arbre des erreurs associées au calcul de flux de contaminants particulaires. Vert : effets systématiques (k). Bleu : effets aléatoires (u). En gras : méthode d'estimation employée dans la thèse. En italique : valeur typique issue de la littérature (Cf. §1.5.2 à 1.5.4) . 73

2.1 Bouteille de prélèvement Niskin 83
2.2 Préleveur automatique ISCO (a) et sa couronne de 24 flacons de prélèvement (b). . . 84
2.3 (a) Relations entre la concentration en MES et la turbidité obtenues à partir de suspensions homogènes de diamètres différents et (b) relation entre l'inverse de la sensibilité (a) de la sonde turbidimétrique et le diamètre médian (Thollet *et al.*, 2013) 88
2.4 Centrifugeuse mobile Westfalia : (a) vue d'ensemble du déploiement *in situ*, (b) et (c) détail du bloc centrifugeuse, et (d) collecte des MES avec une spatule dans le bol de la centrifugeuse en fin de prélèvement. 97
2.5 (a) Centrifugeuse CEPA de la société AMP et (b) feuille de Téflon extraite du cylindre vertical pour collecter les MES et constituer l'échantillon. 97
2.6 Piège à sédiments utilisés copié du modèle du German Environmental Speciment Bank (ESB) (Schulze *et al.*, 2007) : (a) schéma du piège (Schulze *et al.*, 2007), (b) à Arles (Jacquet *et al.*, 2010), et (c) à Pougny, durant la chasse du barrage de Verbois, juin 2012. 98
2.7 Distribution de fréquence des diamètres D représentée sous la forme d'un histogramme (noir), d'une courbe des fréquences relatives (bleue) et d'une courbe des fréquences cumulées (rouge). 102
2.8 Exemples de chromatogrammes obtenus sur les colonnes Restek RTX-5 et RTX-PCB 106

2.9 Distribution volumique (trait noir continu) exprimée en $\log_{10} D$ d'un échantillon de piège à sédiments prélevé à Seyssel entre le 13 et le 14/06/2013 : lois normales identifiées avec l'outil Mixtools de R (a) avant et (b) après nettoyage des résultats. Pointillés : somme pondérée des lois normales. Barres verticales grises : seuils de coupure classiques de normalisation à 20 et 63μm. 109
2.10 Distributions granulométriques volumiques de deux échantillons prélevés à Seyssel entre le 11 et le 12/06/2013 : (a) manuellement (échantillon composite) et (b) avec un piège à sédiments. Lois normales identifiées avec Mixtools. Pointillés : somme pondérée des lois normales. Barres verticales grises : seuils de coupure classiques de normalisation à 20 et 63μm. 111
2.11 Schéma de la feuille de Téflon (env. 1 m x 0,5 m) extraite du cylindre vertical de la centrifugeuse AMP et détail de la constitution des sous-échantillons : 4 fractionnements granulométriques et un sous-échantillon composite. 113
2.12 Teneurs moyennes en mercure, en somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) et en carbone organique particulaire et proportions (λ) des sous-populations granulométriques des sous-échantillons A à E réalisés dans les 6 prélèvements à la centrifugeuse de juin 2012. . 113
2.13 Teneurs moyennes en mercure, en somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) et en carbone organique particulaire par sous-populations granulométriques des sous-échantillons A à E réalisés dans les 6 prélèvements à la centrifugeuse de juin 2012. 115

3.1 Réseau hydrographique du Rhône et de ses principaux affluents contributeurs en MES ; localisation des stations des réseaux de suivi des flux de MES 120
3.2 (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES sur l'Arve et le Rhône ; (b) Confluence de l'Arve et du Rhône (source Wikipédia) 126
3.3 Relation de calibration entre la turbidité (T en NTU ou unité constructeur) et la concentration en MES (C_s en g/L) de l'Arve à Bout-du-Monde 127
3.4 Chroniques de débit (OFEV) et de concentration en MES (OSR/SIG) d'avril 2012 à mars 2013 à la station Bout-du-Monde sur l'Arve 127
3.5 Localisation des affluents et des stations de mesure sur le Haut-Rhône 129
3.6 Localisation des sites de Creys, Bugey et Jons et de l'aménagement de Sault-Brénaz, sur le Rhône 130
3.7 (a) Réseau hydrographique du Rhône en amont de Lyon et (b) positionnement du bras de prélèvement de la station de Jons (source de la photo aérienne : Géoportail) . . . 132
3.8 Débit et concentration en MES horaires du Rhône à Jons, entre septembre 2010 et décembre 2012. Périodes de crue (Débit $>$ 800 m^3/s) en bleu et période de chasse en orange. 133

3.9 Relation de calibration entre la turbidité (T en NTU ou unité constructeur) et la concentration en MES (C_s en g/L) du Rhône à Jons 134
3.10 (a) Concentrations en MES (mg/L) mesurées dans la section du Rhône située à 500 m à l'amont de la diffluence de Jons le 06/11/2012 (Pont de Jons, PK 32,5) ; (b) Concentrations en MES (mg/L) mesurées dans la section du Rhône située à 3,5 km à l'amont de la diffluence de Jons le 13/06/2012 (Anthon, PK 35,5) 136
3.11 (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires de la Saône à Lyon ; (b) Confluence de la Saône et du Rhône (source Google Earth) 137
3.12 Relation de calibration entre la turbidité (T en NTU ou unité constructeur) et la concentration en MES (C_s en g/L) de la Saône à Lyon 138
3.13 Chroniques de débit (CNR) et de concentration en MES (CNR/Irstea) de décembre 2009 à mars 2013 de la Saône à Lyon 139
3.14 (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires de l'Isère ; (b) Confluence de l'Isère et du Rhône (source Google Earth) 140
3.15 Chroniques de débit (CNR) et de concentration en MES (CNR/Irstea) de janvier 2011 à septembre 2012 de l'Isère à Beaumont-Monteux 140
3.16 (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires de la Durance ; (b) Confluence de la Durance et du Rhône (source Google Earth) 141
3.17 Chroniques de débit (CNR) et de concentration en MES (EDF) de janvier 2011 à septembre 2012 de la Durance à Bonpas 142
3.18 Débits journaliers du Rhône à Arles en 2011 et 2012, source CNR. 143
3.19 Concentrations journalières en MES (g/L) du Rhône à Arles en 2011 et 2012, source MIO 144
3.20 Enregistrements de débit et de concentration en MES aux différentes stations du Rhône, de l'Isère et de la Durance au cours de l'événement hydro-sédimentaire de mai-juin 2008 146
3.21 Réseau hydrographique du Haut-Rhône, barrages de Verbois et Génissiat, et points de mesure du suivi OSR mis en place lors des opérations de chasse du Haut-Rhône en juin 2012. 148
3.22 Débits (Q en m^3/s) mesurés sur les stations CNR durant la période de chasse en juin 2012 (a) sur le Haut-Rhône et (b) sur ses principaux affluents 149
3.23 Exemple de signal turbidimétrique calé avec des prélèvements rapprochés (manuels automatisés) pour la mesure de la concentration en MES ($Cmes$ en g/L) : station de Bugey (EDF). 151

3.24 Concentrations en MES (g/L) à Pougny et Seyssel en juin 2012. Débit (Q en m^3/s) à Pougny. 151
3.25 Concentrations en MES (g/L) pendant la période de chasse de juin 2012 (a) à Creys, Bugey et Jons et (b) aux sites situés à proximité de Lyon : Jons, canal de Miribel (Neyron), Vieux-Rhône amont, Vieux-Rhône aval, et Lyon-Perrache. Débit (Q en m^3/s) du Rhône à Jons en gris continu et de l'Ain en pointillés verts. 152
3.26 Concentration en MES (g/L) aux stations OSR sur l'Arve, le Guiers et l'Isère durant la période de chasse en juin 2012. 153
3.27 Bilan des prélèvements de MES pour les analyses chimiques réalisés dans le cadre du suivi OSR des opérations de chasse sur le Haut-Rhône de juin 2012. (POU : Pougny ; SEY : Seyssel ; CHA : Champagneux ; CRE : Creys ; JON : Jons ; PPA : Perrache / Pont-Pasteur) 155
3.28 Ecart relatif (%) entre la somme des flux d'eau apportés par le Léman et les affluents du Haut-Rhône (Arve, Valserine, Usses, Fier, canal de Savières, Séran, Guiers, Ain, Bourbre, Saône et Gier) et le flux d'eau du Rhône calculé à Ternay pour la période 2001-2012 156
3.29 Bilans annuels et décennal des apports en eau pour le bas-Rhône et ses affluents, extrait de Linne (2011). Les flux à Valence et pour les affluents sont en pourcentage du flux à Arles. 157
3.30 Débits et dates de mesure des concentrations en MES dans le Rhône et ses affluents par l'OSR entre septembre 2011 et mars 2013. Pour les affluents du Haut-Rhône, les périodes de crue à Jons sont matérialisées en bleu et la période de chasse en orange. 158
3.31 Débits et dates de mesures des teneurs en PCB et mercure dans le cadre du suivi Eau et MES de l'AERMC (2000-2009) aux stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay, du Rhône à Saint Vallier, de l'Isère à Grenoble, de l'Isère à Châteauneuf et de la Durance aux Mées (Débit à Bonpas) 160
3.32 Débits et dates de mesures des teneurs en PCB et mercure dans le Rhône et ses affluents par l'OSR entre septembre 2011 et mars 2013. Pour les affluents du Haut-Rhône, les périodes de crue à Jons sont matérialisées en bleu et la période de chasse en orange. 162
3.33 Pourcentages des 7 PCB indicateurs et teneurs moyennes (± écart-type) de la somme des PCBi ($\sum$PCBi) des MES prélevées à la centrifugeuse dans le cadre de réseau Eau et MES de l'AE RMC (2000-2009) et du réseau de l'OSR (2011-2012) aux stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, de la Durance aux Mées et du Rhône à Arles. 163
3.34 Teneurs en mercure et PCB158 des MES échantillonnées dans le cadre du suivi Eau et MES de l'AERMC (2000-2009) à la station du Rhône à Jons. LQ : limite de quantification. 165

3.35 Teneurs moyennes en mercure des MES prélevées à la centrifugeuse dans le cadre de réseau Eau et MES de l'AE RMC (2000-2009) et du réseau de l'OSR (2011-2012) aux stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon et du Rhône à Arles. P value du test de Mann-Withney-Wilcoxon 166

4.1 Boxplot (quantiles à 25, 75 et 50 % (médiane), les moustaches s'étendent jusqu'aux valeurs maximales et minimales) et moyenne (en rouge) des débits horaires (Q en m^3/s) des affluents du Haut-Rhône, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, de l'Isère à Beaumont-Monteux et de la Durance à Bonpas sur la période 2001-2012 (noir) et en 2011-2012 (rouge). 170

4.2 Boxplot (quantiles à 25, 75 et 50 % (médiane), les moustaches indiquent les valeurs extrêmes) et moyenne (en rouge) des n valeurs (a) de concentration de MES (C_s en g/L) disponibles et (b) de flux de MES ($Fmes$ en t/s) mesurés en 2011-2012 sur le Rhône et ses affluents. 171

4.3 Flux de MES ($Fmes$ en t/s) mesurés entre septembre 2011 et décembre 2012 aux stations permanentes et temporaires du Rhône et de ses affluents 173

4.4 Abaques des incertitudes sur le calcul des flux annuels de MES à partir de suivis discrets (méthode de la concentration moyenne pondérée par les débits) : (a) déciles inférieurs et supérieurs des erreurs relatives pour différents intervalles de suivis de 3 à 30 jours et (b) biais pour différents intervalles de suivis. a1 et a2 sont les limites de précision imposées à ±20 %, b1 et b2 sont les limites de biais imposées à -1 % et -2 % (d'après Moatar et Meybeck (2007), extrait de Mano (2008). 175

4.5 Pourcentage du flux de MES en fonction du pourcentage de temps écoulé mesuré sur le Rhône et ses affluents au cours de la période 2011-2012 175

4.6 Teneurs en mercure (HgT), somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) et carbone organique particulaire (COP) mesurées aux 9 stations du suivi OSR. 177

4.7 Proportion moyenne des 7 PCB indicateurs dans la somme ($\sum$PCBi) des MES prélevées aux 9 stations du suivi OSR. 178

4.8 Evolution temporelle de la proportion moyenne des 7 PCB indicateurs dans la somme ($\sum$PCBi) des MES prélevées aux 2 stations principales et sur 3 affluents (Bourbre, Ain et Saône) du suivi OSR. 179

4.9 Analyse granulométrique volumique et identification des sous-populations (proportions λ, Modes μ et écart-types σ, cf. §2.4.1) des MES prélevées aux stations du suivi OSR 180

4.10 (a) Teneurs en mercure (HgT) et (b) sommes des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) non normalisées et normalisées par la teneur en carbone organique particulaire (COP) aux 9 stations du suivi OSR en régime de base et en crue. n : nombre de données 181

4.11 Médianes, quantiles 25 et 75 %, moustaches (noir) et moyennes (losanges rouges) des écarts de la moyenne horaire à la moyenne journalière (a) du débit (Q) pour les n jours des périodes de fonte de 1974-2013 ; (b) de Q pour les n jours des périodes de pluie de 1974-2013 ; (c) de la concentration en MES (C_s) pour les n jours de la période de fonte de 2012-2013 ;(d) de C_s pour les n jours de la période de pluie de 2012-2013 184

4.12 Comparaison des 12 méthodes de calcul de flux (Cf. §1.3) pour les 5 sous-échantillons (•) obtenus en gardant une valeur de MES à 7h tous les 5 jours dans le suivi de l'année 2012-2013 sur la station de l'Arve à Genève Bout-du-Monde : (a) écarts des résultats obtenus au flux de référence F1 pour l'année entière, (b) pour la période de fonte et (c) pour la période de pluie. 186

4.13 Débit (Q, noir) et concentration en MES (C_s, rouge) enregistrés à la station de Bout-du-Monde sur l'Arve, au cours de la crue du 07 au 15 octobre 2012. Indication des horaires des suivis effectués par : l'OFEV à 7h tous les 5 jours de 1965-2003 (vert) ; Baëff (1891) à 13h tous les jours en 1890 (bleu) 188

4.14 Station de l'Arve à Bout-du-Monde : (a) Concentration en MES horaire (Cs_h) en fonction du débit horaire (Q_h) pour la période 1974-2013 (en noir) et Cs_h en fonction du débit journalier (Q_j) pour la période 1964-2003 (en rouge) ; Relations puissance établies à partir des deux jeux de données (droites noire et rouge respectivement) ; (b) Cs_h en fonction de Q_h pour les périodes de fonte (en bleu) et de pluie (en rouge) de 1974 à 2013 ; Relations puissance établies à partir des deux jeux de données (droites bleue et rouge respectivement) 190

4.15 Concentration en MES horaire (Cs_h) en fonction du débit horaire (Q_h) de 1974 à 2013 à la station de l'Arve à Bout-du-Monde ; (a) Relation puissance simple (en noir) et relation puissance construite en séparant le jeu de données en 3 en fonction du débit ($Q < 50$ m^3/s en rouge, 50 m^3/s $< Q <$ 150 m^3/s en bleu et $Q >$ 150 m^3/s en vert) ; (b) relations puissance pondérées par le flux (en rouge) et par la racine carrée du flux (en bleu) . 191

4.16 Station Arve à Genève Bout-du-Monde de septembre 2012 à mars 2013 : chronique de concentration en MES (C_s) horaire mesurée et chroniques de C_s reconstituées à partir des relations CsQ simple (méthode M8), en 3 parties, pondérée par le flux et pondérée par la racine du flux. 192

4.17 Débit (gris) et concentration en MES (C_s, noir) enregistrés à la station de Grenoble-campus sur l'Isère, au cours de la crue de mai-juin 2008 ; C_s modélisée par une relation puissance classique (rouge) et avec introduction d'un terme cdQ/dt (vert). 194

4.18 Flux de MES (Fmes), teneurs en mercure particulaire total (HgT), somme des 7 PCB indicateurs des MES ($\sum$PCBi) et proportion des 7 congénères dans la somme, analyse granulométrique volumique (λ, Modes et σ) et teneurs en carbone organique particulaire (COP) des MES échantillonnées à la centrifugeuse à Jons (septembre 2011-février 2013). 198

4.19 (a) Teneurs en mercure (HgT) des MES (b) en somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) des MES et (c) en carbone organique particulaire (COP) des MES ; non normalisées et normalisées par la teneur en carbone organique particulaire (COP) dans le Rhône à Jons en régime de base, en crue (Q>800 m^3/s) et en période de chasse. (n : nombre de données ; $p(a/b)$: p-value du test de Mann-Whitney-Wilcoxon appliqué aux jeux de données correspondant aux régimes a et b.) 200

4.20 Teneurs en mercure particulaire total (HgT), en carbone organique particulaire (COP), somme des 7 PCB indicateurs des MES ($\sum$PCBi) et proportion des 7 congénères dans la somme, des MES échantillonnées manuellement (échantillons composites journaliers) à Pougny et Seyssel, et à la centrifugeuse à Creys et Jons lors des opérations de chasses de 2012. 203

4.21 Analyse granulométrique volumique (λ, Modes et σ) des MES échantillonnées manuellement (échantillons composites journaliers) à Pougny et Seyssel, et à la centrifugeuse à Creys et Jons lors des opérations de chasses de 2012. 205

4.22 Teneurs en mercure et en $\sum$PCBi des MES collectées dans les échantillons de piège à sédiments dans le Rhône à Jons en 2011-2012 207

4.23 Flux de mercure et somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) dans le Rhône à Jons pendant les périodes de régime de base, de crue et de chasse de l'année hydrologique 2011-2012, calculés selon les A, B, C, D et E. 208

4.24 Ecarts relatifs des flux de mercure (HgT) et de somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) calculés par les méthodes A, B et C à partir des 90 sous-échantillons issues du suivi OSR dégradé au pas de temps trimestriel (n=4), par rapport aux flux obtenus avec tout le jeu de données OSR, pour l'année 2011-2012 à Jons. 211

4.25 (a) Teneur en mercure total (HgT) et (b) somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) dans le Rhône à Jons en fonction du débit (Q), de la concentration en MES (Cs), de la teneur en carbone organique particulaire (COP) et de la proportion (λ) des sous-populations granulométriques fines (1-10 μm et 10-27 μm). Données issues des suivis OSR (2011-2013). Coefficient de corrélation de Spearman (Rs) et p-value (p) 213

4.26 (a) Concentration en mercure total (ng/L) et (b) concentration en $\sum$PCBi (ng/L) en fonction du débit (Q) dans le Rhône à Jons. Données issues du suivi OSR (2011-2013). Coefficient de corrélation de Spearman (Rs) et p-value (p) 214

5.1 Flux de MES (en Mt) dans le réseau hydrographique, pendant la crue du Rhône de mai-juin 2008 : (a) première phase du 26/05/08 au 03-05/06/08 et (b) deuxième phase du 03-05/06/08 au 10/06/08. Épaisseur des traits proportionnelle au flux de MES. (?) incertitude associée au flux (Cf. 5.1) 219
5.2 Flux de MES (en Mt) sur le Haut-Rhône : (a) semaine du 04/06/2012 au 10/06/2012 (abaissement de Génissiat) et (b) semaine du 10/06/2012 au 18/06/2012 (abaissement de Verbois). 223
5.3 Teneurs en mercure des MES échantillonnées à la station du Rhône à Arles lors des crues de 2008, en fonction du débit. Source : Cossa (2012) 228
5.4 Flux de MES ($Fmes$ en Mt) annuels et débit moyens annuels (Q en m^3/s, en rouge) (a) de l'Arve à Genève Bout-du-Monde entre 1974 et 2012 (années hydrologiques), (b) du Rhône à Arles entre 1967 et 2012 (années civiles) ; compilation effectuée dans Antonelli (2010). 230
5.5 Écarts des flux annuels moyens de MES calculés sur p années de suivi consécutives au flux moyen annuel de MES calculé sur la période 1974-2013 pour l'Arve à la station Bout-du-Monde. 233
5.6 Bilan des contributions en eau, MES, mercure et somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) des affluents au Haut-Rhône en 2011-2012 et sur 10 ans (2001-2012) 238
5.7 Contributions relatives sur la période 2001-2012 des affluents aux apports hydrique du Rhône à l'aval de la confluence Rhône-Saône 241
5.8 Flux de MES (Mt) mesurés et reconstitués du Haut-Rhône entre 1998 et 2012. Stockage annuel de MES (Mt) dans le réseau hydrographique. 242
5.9 Pourcentages moyens en PCB indicateurs des MES échantillonnées à la centrifugeuse ou manuellement dans le cadre du suivi de l'OSR (septembre 2011-février 2013) : Proportion de la teneur moyenne en PCBi par rapport à la teneur moyenne de la somme des PCB indicateurs. Nombre de prélèvements par centrifugation (cmo) ; par prélèvements manuels (man) 246
5.10 Bilan des contributions en eau, MES, mercure et somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) des affluents au Rhône aval en 2011-2012 et sur 10 ans (2001-2012) 247
5.11 Contribution des affluents au flux de MES du Rhône total 251
5.12 Couches raster des 4 indices HE, MM, DD et D proposés par Delmas *et al.* (2009) et estimation des exports de sédiments à l'exutoire SSY des bassins versants du Haut-Rhône et de ses affluents (Source : G. Fantino, 2013) 252
5.13 Flux de MES mesurés (2011-2012), reconstitués (2001-2011) et estimés par la méthode PESERA (Delmas *et al.*, 2009) 254

5.14 Sensibilité à l'érosion définie suivant la méthode décrite dans Bertrand (2009) pour les bassins versants de la Saône, du Haut-Rhône et de ses affluents. 255

6.1 Réseau du modèle 1D hydro-sédimentaire utilisé pour simuler les flux hydro-sédimentaires pendant les opérations de chasse de juin 2012 sur le Haut-Rhône. 263
6.2 Abaissement des aménagements de Verbois, de Chancy-Pougny, de Génissiat et de Seyssel mesuré pendant la chasse 2012 (relativement à la cote du 03/06/12 00 :00). 265
6.3 Abaissement des aménagements de Chautagne, de Belley, de Brégnier-Cordon et de Sault-Brénaz mesuré pendant la chasse 2012 (relativement à la cote du 03/06/12 00 :00). . 266
6.4 Calage des coefficients de Strickler avec la ligne d'eau du 24/03/2009 entre Sault-Brénaz et le barrage de Jons pour Q = 525 m^3/s. 268
6.5 Validation des coefficients de Strickler entre Sault-Brénaz et le barrage de Jons (ligne continue : ligne d'eau mesurée ; ligne discontinue : ligne d'eau simulée). 268
6.6 Hydrogramme mesuré et simulé (simulation entre Groslée et Jons) pour la chasse 2012 à Anthon, station hydrométrique de la CNR. 270
6.7 Chroniques de concentrations en MES et de débits enregistrées à Creys, Bugey et Jons, du 9 au 23 janvier 2011. Flux de MES, de mercure (Hg) et de somme des PCB indicateurs (PCBi) du 09 au 17/01/2011 et du 17 au 24/01/2011. 271
6.8 Variation du stock du fond sur le secteur entre Creys et Bugey en fonction du coefficient a_c (pour a_{pd} = 0,01). 273
6.9 Concentration en MES mesurée et simulée à Bugey (pour une simulation entre Creys et Bugey avec a_c = 0,01 et a_{pd} = 0,055. 274

C.1 Distributions granulométriques volumiques des échantillons prélevés à Jons le 05/01/2012 : manuellement (a) et avec la centrifugeuse de terrain Westfalia KA 2-86-075 Année 1978 (b) 320
C.2 Modes des quatre sous-populations granulométriques volumiques 1-10 μm, 10-27 μm, 27-80 μm et 80-2500 μm pour les n échantillons prélevés manuellement et à la centrifugeuse dans le Rhône à Jons. P-value des tests de Mann-Whitney-Wilcoxon appliqués aux modes granulométriques des sous-populations obtenues par les deux moyens de prélèvement. 320

D.1 Préleveur automatique réfrigéré Bühler installé puis désinstallé dans la station de Jons 324
D.2 Système de filtration Millipore et pompe Asti testés puis abandonnés dans cette thèse 326
D.3 Distributions granulométriques des échantillons prélevés lors de la crue de la Saône à Lyon en janvier 2012 : (a) manuellement dans le cours d'eau le 10/01/12 et (b) dans les dépôts de crues le 17/01/12 327
D.4 Benne de type Cemagref utilisée pour les prélèvements de sédiments de fond 328

F.1 (a) Photo aérienne (source Google Earth) de la confluence Rhône-Saône en période de crue, avec le non mélange des eaux visible à la diffluence de l'aménagement de Pierre-Bénite ; (b) Photo aérienne (source Géoportail) de la confluence de l'aménagement de Pierre-Bénite et de la position de la station de Ternay (notée « turbidité »), extrait de Roux (2011). 364

G.1 Relations entre la concentration en MES et la turbidité de l'Arve à Bout-du-Monde . 367
G.2 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Creys 368
G.3 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Bugey 368
G.4 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Jons 369
G.5 Relations entre la concentration en MES et la turbidité de la Saône à Lyon 369
G.6 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Guiers à Belmont 370
G.7 Relations entre la concentration en MES et la turbidité de l'Ain à Port-Galland . . . 370
G.8 Relations entre la concentration en MES et la turbidité de la Bourbre à Tignieu-Jameizieu 371
G.9 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Neyron 371
G.10 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Vieux-Rhône amont 372
G.11 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Vieux-Rhône aval 372
G.12 Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Perrache 373

H.1 Localisation des sections de jaugeage dans la zone Miribel-Jonage (traits en vert). VR signifie Vieux-Rhône. 375
H.2 Débit à Jons (Q en m^3/s) (mesure CNR à Perrache décalée à Jons avec le modèle hydraulique pour tenir compte du temps de propagation), dans le canal de Miribel (chronique reconstituée à partir du débit à Jons et des informations sur la gestion du barrage de Jonage) et dans le Vieux-Rhône (VR, chronique reconstituée par modélisation) en juin 2012. 377

Introduction

1 Problématique de la thèse

1.1 La contamination particulaire dans les cours d'eau

La pollution environnementale est la dégradation d'un milieu naturel par l'introduction de substances extérieures qui ne peuvent pas ou plus être éliminées par ce milieu. L'accumulation de ces substances provoque une rupture de l'équilibre de l'écosystème préalablement établi. Ramade (2012) précise que si la pollution de l'environnement était déjà un problème dans les cités antiques, ce phénomène s'est accru avec l'avènement de la civilisation industrielle moderne. En effet, les sources de pollution sont nombreuses et résultent en général de l'activité humaine. Les industries chimiques, minières ou pétrolières, les marées noires, accidents industriels, chimiques ou nucléaires ou éruptions volcaniques, sont quelques exemples de sources de contamination. La variété et l'intensité des sources de pollution a conduit au cours des deux derniers siècles à une dégradation des différents compartiments de l'environnement, l'air, l'eau et les sols, entraînant de multiples effets sur la biodiversité et la santé humaine.

Les eaux continentales, par leur cheminement sur de longues distances à travers des territoires variés, sont confrontées à de nombreuses pollutions qu'elles contribuent à déplacer depuis les sources d'émission vers les mers et à diffuser dans les différents compartiments biotiques et abiotiques. La pollution du compartiment aquatique continental concerne non seulement les eaux, mais aussi les particules solides transportées par les eaux, les sédiments sur le fond des rivères et des lacs et les êtres vivants présents dans le milieu. Dans le milieu aquatique, la répartition des substances entre les phases particulaire et dissoute se fait en fonction des propriétés physico-chimiques des molécules (coefficient de partage octanol/eau $\log(Kow)$ pour les contaminants organiques, coefficient de distribution Kd pour les métaux). La phase particulaire a ainsi été identifiée comme le réceptacle de nombreux contaminants (OSPAR, 2002) et les matières en suspension comme le moyen de transport privilégié de nombreux nutriments, métaux lourds et contaminants organiques (Foster et ChArlesworth, 1996; Walling *et al.*, 2003; Horowitz, 2008; Horowitz *et al.*, 2012), dont les polychlorobiphényles (PCB) et le mercure qui seront étudiés dans cette thèse.

Les particules solides se déplacent dans un cours d'eau selon leur type, leur disponibilité, le type d'écoulement, et la position à laquelle on se place dans la section. Typiquement, les particules les plus grossières, graviers et sables grossiers, se déplacent par charriage sur le fond du cours d'eau (bedload), les sables plus fins se déplacent en suspension juste au-dessus du lit sous l'effet d'un fort gradient vertical (suspended load), et les particules les plus fines (argiles et limons) sont en suspension relativement homogène dans la colonne d'eau (washload). De nombreux auteurs (Abarnou *et al.*, 1987; Pignatello et Xing, 1996; Horowitz, 2008; Jambon et Thomas, 2009; Lick, 2009) ont établi que les particules les plus fines, argiles et limons, sont les principales porteuses de contamination organique hydrophobe et métallique adsorbable, dont le mercure. Dans la suite de ce travail, le terme de matières en suspension (MES) fera donc référence aux particules fines qui se déplacent de façon homogène en suspension dans la colonne d'eau, c'est-à-dire au washload (ou charge de lessivage du bassin versant).

La Directive cadre sur l'eau (DCE) établie en 2000 (E.C., 2000) a pour objectif de protéger la qualité des eaux européennes. La DCE vise à atteindre le bon état écologique et chimique des masses d'eau en 2015 et cible 41 substances représentant un risque significatif pour l'environnement aquatique, parmi lesquelles 33 sont jugées prioritaires. Cette liste de molécules comporte des métaux toxiques (plomb, cadmium, mercure, nickel) et des composés organiques (hydrocarbures, pesticides, etc., E.C., 2001, 2008). Treize substances présentées dans l'annexe III de la directive 2008/105/CE (E.C., 2008) ont été intégrées comme substances prioritaires ou dangereuses prioritaires en 2013 (E.C., 2013). Les PCB Dioxin-like (Cf. §3.1) font partie de ces substances. Le bon état chimique d'une masse d'eau est atteint lorsque les concentrations des substances prioritaires dans les milieux aquatiques sont inférieures aux normes de qualité environnementales (NQE), fixées dans la directive E.C. (2008). Ces valeurs seuils sont actuellement définies pour l'eau et le biote, mais n'existent pas pour les sédiments superficiels et les MES. Le milieu marin fait partie du champ d'action de la DCE, dans laquelle ont été reprises les conventions d'Oslo et de Paris (Ospar[1], 1974 et 1978) pour la protection du Nord-Est Atlantique et la convention de Barcelone (1976) pour la protection de la Méditerranée. Dans ce contexte, les pays signataires sont notamment encouragés à évaluer la pollution apportée par les sources continentales à la Méditerranée, ce qui nécessite non seulement un suivi des niveaux de contamination (concentrations), mais aussi et surtout, une évaluation des flux émis par les cours d'eau et la réalisation de bilans de masse de contamination.

1. http ://www.ospar.org/

1.2 Difficulté de quantifier les flux dans les cours d'eau

Depuis les années 90, la volonté de quantifier les flux de contaminants particulaires transportés par les cours d'eau a conduit les instances internationales (SCOPE/UNEP, CIEM, OSPAR) et les Agences de l'eau françaises à identifier les deux principaux obstacles à cet objectif que sont (Coquery, 2009; Cadiou et Romana, 2009) :

1. le manque de données et de connaissances de qualité sur la distribution et la variabilité de la contamination des différents compartiments physiques et sur les processus de transport des contaminants dans le milieu ;
2. le besoin d'établir des méthodes robustes de détermination des flux.

Le flux de contaminant particulaire fait intervenir trois paramètres : le débit, la concentration en MES et la teneur en contaminant dans ces mêmes particules. L'état des connaissances sur la variabilité temporelle et spatiale de ces trois paramètres n'est pas équivalent. Il dépend de la quantité de données disponibles, qui est intimement liée aux contraintes de mesure des paramètres à comparer à la variabilité de ces 3 paramètres dans le temps et dans l'espace (Cf. Tab.1).

Tableau 1 – Etat des connaissances pour les réseaux d'observation classiques et ordre de grandeur des variations spatiale et temporelle relatives des paramètres à la base du calcul de flux de contaminant particulaire : le débit, la concentration en MES et les teneurs en contaminants dans les MES.

Mesure : Continue Discontinue Rare ou inexistante

Variation	Intérêt	Débit (eau)	Concentration en MES	Teneur en contaminant dans les MES
Temporelle	Quantification des flux événementiels et moyens	1 - 100	1 – 10 000	?
Spatiale	Comparaison des contributions des affluents	1 - 1000	1 - 10	PCBs: 1 - 10 ? Hg: 1 - 10 ?

Ainsi, à l'heure actuelle en France, le débit est mesuré en continu à pas de temps horaire pour la plupart des cours d'eau. La fréquence de cette mesure permet d'évaluer que pour une section de cours d'eau donnée, le débit peut varier typiquement d'un facteur 1 à 100 au cours du temps, et que d'un cours d'eau à l'autre, il peut varier d'un facteur 1 à 1 000.

Les données de concentrations en MES sont la plupart du temps issues de suivis ponctuels, discontinus, réalisés dans le cadre des réseaux de mesure de la qualité de l'eau (Walling et Webb, 1985; Meybeck, 1992; Phillips *et al.*, 1999), généralement à pas de temps fixe. La fréquence de ces mesures ne permet presque jamais de mesurer les variations temporelles des concentrations en MES, mais la généralisation de ces mesures dans le cadre des suivis réglementaires de la qualité de l'eau

a permis d'augmenter la quantité de données disponibles. De plus, le développement au cours des dernières décennies de techniques telles que la turbidimétrie permet à l'heure actuelle de mesurer en continu les concentrations en MES, sous réserve de disposer de données de calage suffisantes (Foster *et al.*, 1992; Gippel, 1995; Clifford *et al.*, 1995; Vongvixay, 2012; Thollet *et al.*, 2013). Les données disponibles autorisent à évaluer que la concentration en MES d'un cours d'eau peut varier temporellement d'un facteur 1 à 10 000, en fonction des événements hydrologiques. D'un cours d'eau à l'autre, les variations sont moindres et sont en général d'un facteur 1 à 10. Comme les variations temporelles de débit et de concentration en MES sont généralement corrélées positivement, les flux de MES peuvent varier sur 5 à 6 ordres de grandeur dans le temps.

Le paramètre pour lequel les connaissances sont les plus parcellaires est sans nul doute la teneur en contaminants des MES. Le développement de réseaux de mesure des contaminants particulaires à l'échelle des grands bassins versants reste limité par les contraintes de prélèvement et le coût des analyses (Horowitz, 2008). En effet, la mesure de ce paramètre n'est en général possible qu'en laboratoire, nécessite un haut niveau de technicité, une assurance qualité, du matériel spécifique, avancé et coûteux, demande de disposer d'une quantité importante de MES pour réaliser les analyses et est souvent coûteuse.

L'étude des teneurs en contaminants dans les MES est souvent limitée par les difficultés de prélèvement. La recherche de corrélation entre les données mesurées dans les différents compartiments, MES, sédiments superficiels mais encore carottes stratigraphiques, est d'un grand intérêt pour élargir le jeu de données disponibles pour l'estimation des flux de contaminants particulaires, à l'heure actuelle et dans le passé. Cependant, l'utilisation des teneurs en contaminants mesurées dans les sédiments superficiels ou les dépôts de crue pour calculer les flux de contaminants particulaires fait débat en raison des différences de granulométrie, caractéristiques et niveaux de contamination des particules. Les sédiments superficiels ont fait l'objet de nombreuses publications parmi lesquelles le rapport IPL (2009) pour le Rhône et ses affluents, Camacho-Ibar et McEvoy (1996) pour la baie de Liverpool, les rapports de Schmidt *et al.* (2010) et Corvi *et al.* (1986) pour les cours d'eau suisses, et de Piazza *et al.* (2008) pour le Mexique. Le rapport de Pardos *et al.* (2003) indique par exemple que les teneurs en métaux et en micropolluants organiques dans les MES et dans la fraction des sédiments < 63 μm ne montrent pas de différences notables. A partir de la comparaison des données dans les MES et dans les sédiments collectées par l'AERMC dans le cadre du réseau Eau et MES, le rapport IPL (2009) conclut que pour certaines molécules, notamment les métaux, les niveaux de concentrations sont en général plus élevés d'un facteur 2 à 3 dans les sédiments. Comme aucune information de granulométrie ou de teneur en carbone organique des MES n'est disponible sur ce réseau, il n'est pas possible d'envisager une normalisation des teneurs pour les comparer.

Fruget *et al.* (2010) indiquent que la granulométrie des sédiments dans le Rhône est plus grossière que celle des MES. Ils préconisent de rapporter les teneurs en PCB mesurées dans les sédiments et dans les MES à la fraction granulométrique inférieure à 20 μm. Cette transformation est censée permettre de s'affranchir des différences de granulométrie entre les deux phases et de se concentrer sur les particules qui portent la contamination. Les auteurs retrouvent ainsi les mêmes taux de contamination pour les MES et les sédiments. D'autres paramètres comme la teneur en carbone organique particulaire (COP) peuvent être utilisés pour comparer les concentrations mesurées en les normalisant. Les règles de correction par la granulométrie ou le COP restent cependant assez arbitraires et hétérogènes, ce qui limite leur généralisation (différences selon les substances, les prélèvements et les sites) et les comparaisons.

Les longues séries temporelles de teneurs en contaminants particulaires dans les MES fluviales sont rares dans la littérature (Ollivier *et al.*, 2011), et les études portant sur les flux de contaminants particulaires se heurtent au manque de données. Les données collectées par Rondeau *et al.* (2005) sur le Saint-Laurent, par Hölemann *et al.* (2005) sur la Léna, par l'Institut fédéral d'hydrologie (BfG) sur l'Elbe (Heininger *et al.*, 2003) et le Rhin (Pohlert *et al.*, 2011; Schubert *et al.*, 2012), par le New York State Department of Environmental Conservation (NYSDEC) sur l'Hudson (Connolly *et al.*, 2000; Lick, 2009) ou encore par le United States Geological Survey (USGS) sur le Mississippi, la Columbia, le Colorado et le Rio Grande dans le cadre du programme NASQAN (National Stream Quality Accounting Network, Horowitz *et al.*, 2001a) sont quelques exemples de suivi des teneurs en contaminants dans les MES sur de longues périodes, mais font figure d'exceptions.

En France, les travaux menés sur la Seine par Chevreuil *et al.* (1988), Abarnou *et al.* (1987) ou Cossa *et al.* (1994) ont permis d'améliorer les connaissances des transferts de polluants organiques persistants (POP) tels que les PCB et de polluants métalliques comme le mercure. Plus récemment, le programme PIREN-Seine [2] contribue à fournir, à partir de mesures de terrain et de modélisations, une vision d'ensemble du fonctionnement du réseau hydrographique de la Seine (Meybeck *et al.*, 2000; Grosbois *et al.*, 2006; Némery et Garnier, 2007a,b; Franke *et al.*, 2009, 2010; Gaspéri, 2010). Plusieurs auteurs se sont également intéressés aux contaminants particulaires métalliques dans le bassin Adour/Garonne (Schäfer et Blanc, 2002; Audry *et al.*, 2004; Schäfer *et al.*, 2006; Masson *et al.*, 2006; Coynel *et al.*, 2007).

A l'exception de tels programmes de recherche ou d'observation intensive, les données de teneurs en contaminants particulaires restent rares, issues de suivis réglementaires, généralement à pas de temps fixe, avec une faible fréquence temporelle, typiquement quelques mesures par an en moyenne.

2. http ://www.sisyphe.upmc.fr/piren/

Ce type d'échantillonnage ne permet pas d'étudier les variations des teneurs en contaminants en fonction de l'hydrologie. Sur la base des données existantes, il est toutefois possible d'estimer que d'un affluent à l'autre, les variations de teneurs en contaminant ne varient probablement pas de plus d'un facteur 10. Ainsi, dans le cas des éléments traces,Horowitz (1995) considère ainsi qu'à l'exception de zones fortement impactées par des activités humaines ou lorsque les teneurs en contaminants sont très proches des limites de quantification, les teneurs en contaminants particulaires ne varient pas de plus d'un facteur deux. Horowitz (2008) indique qu'en un même site, les différences entre les moyennes annuelles sont en général inférieures aux erreurs associées aux méthodes d'analyse pour les déterminer (généralement 10 à 20 %).

A partir des informations sur la variabilité des trois paramètres qui constituent le flux de contaminants particulaires, il apparaît que sa variabilité temporelle et spatiale est énorme, et avant tout liée aux variations temporelles du flux de MES et aux contrastes spatiaux de leur niveau de contamination. L'établissement de méthodes de quantification des flux de contaminants particulaires est généralement limité par la disponibilité des données de concentrations en MES et de teneurs en contaminants. Les différentes méthodes de calcul de flux de contaminants en cours d'eau de la littérature sont recensées dans le rapport de Meybeck (1992) et sont reprises et discutées notamment par Cossa *et al.* (1994), Meybeck *et al.* (1994), Meybeck *et al.* (1996),Mano (2008) et IPL (2009). Toutefois, seules 3 méthodes parmi les 18 exposées concernent les contaminants particulaires, quand les autres sont réservées aux contaminants dissous ou aux MES seules, et aucune d'entre elles ne fait l'objet d'un consensus pour l'estimation des flux de contaminants particulaires. L'état de l'art en matière de calcul de flux de contaminants particulaires est donc relativement pauvre et la méthode la plus couramment employée pour déterminer les flux de contaminants particulaires consiste à établir une moyenne des teneurs en contaminants disponibles et de la multiplier par le flux de MES (Horowitz, 2008). Horowitz (1995) et Horowitz (2008) observent d'ailleurs que les variations inter- et intra-annuelles de la teneur en contaminants dans les MES, quel que soit l'élément considéré, sont de faible importance devant les variations du débit et de la concentration en MES. Ils préconisent donc d'établir la méthode de calcul du flux de MES la plus appropriée au jeu de données disponible avant de se préoccuper de la représentativité du jeu de données des teneurs en contaminants.

D'importants travaux ont été menés depuis plusieurs décennies pour établir des méthodes robustes d'estimation des flux de MES à partir de données discontinues (prélèvements). Les travaux de Walling et Webb (1985), Dickinson (1981), Littlewood (1992), Meybeck (1992), Phillips *et al.* (1999), Moatar et Meybeck (2005), Quilbe *et al.* (2006), Mano (2008), Raymond (2011) sont autant d'études cherchant à établir la meilleure méthode d'estimation du flux de MES à partir de mesures discontinues, sans pour autant réussir à définir une méthode permettant de réduire les incertitudes

dans tous les cas de figure. Le principal verrou du calcul de flux de MES réside dans la représentativité du jeu de données des concentrations en MES. En particulier, justement, le développement de techniques de mesure en continu, telles que la turbidimétrie, ou les prélèvements à pas de temps adaptatifs (crues) permettent d'améliorer l'estimation des flux de MES (Mano, 2008).

L'évaluation des incertitudes associées au calcul de flux de MES est également au cœur de ces travaux. Le programme de recherche Variflux, lancé en 2004, s'est ainsi attaché à quantifier les incertitudes sur les flux de MES et de contaminants dissous obtenus à partir des données discontinues issues des réseaux de mesure réglementaires. A partir d'une étude statistique menée en dégradant les jeux de données haute fréquence (journalière à infra-journalière) de suivis réglementaires menés en France et aux Etats-Unis, Moatar et Meybeck (2007) et Moatar *et al.* (2008) proposent une abaque reliant l'incertitude sur le flux de MES et de contaminants dissous à la fréquence d'échantillonnage et à la taille du bassin versant. Le but premier de cette abaque est de définir l'incertitude sur le flux calculé à partir des données issues des suivis réglementaires, et donc de permettre l'utilisation des données existantes. Cette abaque est également utilisée pour préconiser un pas de temps de mesure à appliquer à un bassin versant pour obtenir un flux avec une incertitude donnée. Notre principale critique de cette approche est qu'elle reste attachée à un suivi à pas de temps fixe des concentrations en MES. En général, ce type de suivi ne permet pas de mesurer la dynamique des concentrations en MES. Or, les variations temporelles de ce paramètre sont telles qu'il est indispensable de les mesurer pour améliorer l'évaluation des flux. Nous préférons donc une approche basée sur la mesure des concentrations en MES, en appliquant, soit un suivi à pas de temps variable, adapté au suivi des événements hydrologiques comme c'est le cas à la station du Rhône à Arles (Antonelli, 2010), soit en mesurant en continu les concentrations en MES, par exemple en utilisant des turbidimètres comme Mano (2008) sur l'Isère à Grenoble.

1.3 Contexte de la thèse et approche scientifique

Le Rhône constitue un apport important de MES et de contaminants à la mer Méditerranée (UNEP/MAP/MED, 2003; Ollivier *et al.*, 2011). Les contaminants particulaires, métalliques, organiques ou encore radioactifs ont par conséquent déjà fait l'objet de mesures dans le cadre de travaux de recherche (dont Radakovitch *et al.* (2008), Antonelli (2010), Tronczynski et Héas-Moisan (1996), Castelle (2010), Cossa (2012)) et du réseau de suivi de l'Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse depuis 1996. Les données collectées ont mis en lumière la nécessité de développer un réseau de suivi des flux particulaires à l'échelle du bassin versant pour en améliorer la connaissance et la gestion. Ces questionnements ont contribué à la création en 2009 de l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) dans le cadre du Plan Rhône, soutenu par l'UE (FEDER). L'OSR regroupe des ges-

tionnaires de l'eau sur le bassin versant du Rhône [3] et des partenaires scientifiques [4]. Les recherches de l'OSR sont structurées autour d'une douzaine d'actions, programmées sur la base d'un contrat triennal (2010-2013) en cours de renouvellement. La consolidation du réseau de mesure des MES et contaminants associés ou encore le suivi d'événements hydro-sédimentaires tels que les crues ou les chasses de barrages sont des actions menées dans le cadre de l'OSR. Le regroupement de plusieurs équipes de recherche a notamment permis la répartition des analyses de contaminants au sein des laboratoires en fonction des instrumentations disponibles et des compétences propres à chacun. Les contaminants analysés par les équipes sont des contaminants métalliques (Cerege), organiques et mercure (Irstea) et radioactifs (IRSN). Cette thèse s'est déroulée en lien étroit avec l'OSR, tant pour la collecte des données que pour les questionnements associés à la quantification et à l'interprétation des flux.

Les contaminants étudiés dans cette thèse sont les PCB et le mercure. Le choix de ces deux types de contaminants apparaît comme complémentaire. Ils ont en effet des origines et des comportements différents, tout en partageant leur affinité pour les matières en suspension qui sont leur principal moyen de transport en rivière. L'intérêt que nous portons aux PCB relève d'un contexte local particulier. La contamination du Rhône par les PCB a conduit à une interdiction de consommation des poissons sur la plus grande partie du linéaire rhodanien et a fait l'objet d'un intérêt médiatique important dans les années 2000. Les PCB sont une famille de molécules organiques appelées congénères. L'étude de ces composés dans les MES se heurte à des problèmes de prélèvement (quantité importante de matière nécessaire), d'analyse (limites de quantification, coût) et d'expression des résultats (mode de calcul de la somme des congénères étudiés). Une fois ces problèmes dépassés, l'étude des profils de PCB, c'est-à-dire des proportions des différents congénères de PCB présents, constitue un intéressant point de départ pour la recherche de l'origine des contaminations, qui est toujours anthropique puisqu'il s'agit de molécules de synthèse.

Le mercure est un contaminant métallique fortement toxique. Ce métal a été quantifié dans la chaîne trophique dans de nombreux cours d'eau en France ; il a notamment déjà été étudié dans le Rhône aval par le passé (Cossa, 2012; Castelle, 2010). Les difficultés de mesure de ce contaminant dans les MES sont réduites par rapport aux PCB (technique analytique rapide et automatisée pour le dosage au niveau trace ou avec une faible limite de quantification, requiert une moins grande

3. Services de l'Etat, Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse (AE RMC), Compagnie nationale du Rhône (CNR), Electricité de France (EDF) et régions riveraines du fleuve : Rhône-Alpes, Provence-Alpes-Côte-d'Azur et Languedoc-Roussillon

4. CNRS de Lyon et d'Aix-Marseille (Unité Mixte de Recherche Environnement-Ville-Société ; Centre Européen de Recherche et d'Enseignement en Géoscience de l'Environnement, Cerege), Irstea Lyon, Ecole Nationale des Travaux Publics d'Etat (ENTPE), Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer (Ifremer) et Mediterranean Institute of Oceanography (MIO)

quantité de matière, expression simplifiée des résultats). En revanche, contrairement aux PCB, le mercure existe à l'état naturel dans l'environnement. La distinction entre le fond géochimique naturel et le mercure d'origine anthropique représente une difficulté dans l'interprétation des teneurs en mercure.

Les flux de PCB et de mercure véhiculés par les MES dans le Rhône constituent donc l'objet d'étude de cette thèse. L'étude s'appuie sur le réseau de mesure du Haut-Rhône, en particulier de l'Arve à Genève et du Rhône à Jons, deux stations développées en grande partie au cours des trois années de la thèse dans le cadre de l'OSR. Elle s'étend ensuite au Rhône aval (station d'Arles) et à ses principaux affluents en termes d'apports en MES, la Saône, l'Isère et la Durance, afin de proposer une analyse des flux à l'échelle du bassin versant. La zone d'étude est donc comprise entre le Léman, qui constitue un point d'arrêt pour les MES provenant de l'amont, et la Méditerranée, exutoire des flux polluants. En se basant avant tout sur l'observation, ce travail a pour objectif d'étudier la variabilité spatio-temporelle des concentrations en MES et des teneurs en PCB et mercure dans les MES afin d'améliorer la quantification et l'interprétation des flux particulaires du Rhône.

Cette thèse a été financée par la Région Rhône-Alpes (ARC Environnement, convention 12-013144-01) et le Plan Rhône.

2 Le mercure

2.1 Caractéristiques physico-chimiques et réglementation

Le mercure existe dans la nature sous de nombreuses formes physico-chimiques, organiques et inorganiques, aux degrés d'oxydation 0, I ou II (Cf. Tab. 2). Selon Cossa et Ficht (1999), la forme la plus mobile est le mercure élémentaire Hg^0, les formes les plus stables le sulfure et le séléniure (HgSe) et la forme la plus toxique le monométhylmercure (CH_3Hg^+).

Le mercure élémentaire est le seul métal liquide à température ambiante et sa masse volumique élevée le classe parmi les métaux lourds. Avec une pression de vapeur relativement élevée, il est le plus volatil des métaux. Il se combine facilement avec d'autres métaux comme l'étain, l'or ou l'argent, pour former des amalgames. Le mercure présente également une grande affinité pour les composés soufrés inorganiques ou organiques (carbonés).

Le mercure est toxique pour la plupart des espèces vivantes (UNEP/MAP/MED, 2003). Il provoque l'inhibition des processus enzymatiques, affectant la reproduction et le système nerveux des oiseaux et des mammifères. Chez l'homme, il provoque également des lésions irréversibles des

Tableau 2 – Les différentes formes physico-chimiques du mercure dans l'environnement, extrait de Cossa et Ficht (1999)

Valence	Dénomination	Formule chimique
0	Mercure élémentaire	Hg^0
I	Composés mercureux, instables	
	Composés mercuriques	
II	Ion mercurique libre	Hg^{2+}
II	Chlorocomplexes	$HgCl^+$, $HgCl_2$, $HgCl_3^-$
II	Hydroxocomplexes	$Hg(OH)^+$, $Hg(OH)_2$
II	Thiocomplexes	HgSR, CH_3HgSR
II	Monométhylmercure	CH_3HgCl
II	Diméthylmercure	CH_3HgCH_3
II	Sulfure de mercure	HgS
II	Séléniure de mercure	HgSe
II	Complexes fulviques et humiques	

reins. Chez les poissons, les effets du mercure se traduisent par des dommages aux branchies et la cécité. Des concentrations élevées de mercure réduisent la croissance des plantes.

La capacité du mercure à se bioaccumuler et à se bioamplifier dans la chaîne alimentaire augmente sa dangerosité (Thomassin et Touzé, 2003). Le méthylmercure est le principal composé mis en cause dans ces phénomènes. Sa forme physico-chimique facilite en effet sa fixation dans les graisses et la chair des poissons. Les concentrations de mercure en fin de chaîne alimentaire dans les poissons carnivores peuvent être jusqu'à dix millions de fois supérieures aux concentrations dans l'eau (Cossa et Ficht, 1999). Pour l'homme, l'alimentation est la principale source de contamination au méthylmercure et représente 90 % des voies d'exposition (UNEP/MAP/MED, 2005). Les autres voies d'exposition sont l'inhalation et l'utilisation d'amalgames dentaires à base de mercure. Selon l'Oganisation mondiale de la santé (OMS), dans certaines populations tirant leur subsistance de la pêche, notamment au Brésil, au Canada, en Chine, en Colombie et au Groenland, il est apparu qu'entre 1,5 et 17 enfants pour 1000 présentaient des troubles cognitifs (léger retard mental) dus à la consommation de poisson contenant du mercure. L'exemple le plus tristement célèbre de contamination par le mercure est celui de la baie de Minamata au Japon (Bisson *et al.*, 2010). Le déversement de 150 tonnes de mercure dans l'eau de la baie entre 1932 et 1968 a conduit à l'intoxication de plusieurs milliers de personnes, des pêcheurs et leurs familles, par ingestion de poissons contaminés (Bisson *et al.*, 2010).

La dose hebdomadaire tolérable définie pour le mercure inorganique en 2010 par le comité mixte FAO/OMS d'experts en additifs alimentaires (JECFA) est de 4 μg/kg de poids corporel. Celle pour

le méthylmercure, définie en 2003, est de 1,6 μg/kg de poids corporel. En Europe et en France, la législation fixe la limite à 1 μg/L pour les eaux destinées à la consommation humaine (E.C., 1998). Les teneurs maximales en mercure pour autoriser la vente de poisson sont de 1 mg/kg pour les poissons prédateurs et de 0,5 mg/kg pour les autres (E.C., 2001). Le transfert de mercure se faisant également à travers le plasma et par le lait maternel, les femmes enceintes sont particulièrement ciblées par les recommandations de l'OMS.

Le mercure fait partie de la liste des substances prioritaires de la DCE. La norme de qualité environnementale exprimée en valeur moyenne annuelle (NQE-MA) pour les eaux de surface intérieure est de 50 mg/L et la NQE exprimée en concentration maximale admissible (NQE-CMA) est de 0,07 μg/L (E.C., 2008). Ces concentrations s'appliquent à la concentration en mercure total. Le critère d'évaluation écotoxicologique (EAC) déterminé par la convention OSPAR pour le mercure dans les sédiments marins est de 0,05 à 0,5 mg/kg (OSPAR, 2002). Les EAC sont définis comme les niveaux de concentration d'une substance à partir desquels une préoccupation est justifiée.

2.2 Sources de mercure

Le mercure est un métal présent naturellement dans l'environnement. Sous sa forme élémentaire, il est présent à l'état de trace dans l'écorce terrestre, à des concentrations de l'ordre de 10^{-3} mg/kg (Coquery, 1994; UNEP/MAP/MED, 2003). Les sols peuvent contenir naturellement de 0,03 à 0,15 mg/kg de mercure en fonction de la roche-mère à partir de laquelle ils se sont formés. Par exemple, des sols formés sur des sables quartzeux renferment de l'ordre de 0,04 mg/kg de mercure alors que ceux formés sur des schistes renferment de l'ordre de 0,4 mg/kg de mercure (Thomassin et Touzé, 2003). Le rapport du Réseau National d'Observation de la qualité du milieu marin (RNO, 2002) indique que le niveau de fond géochimique dans les sédiments marins se situe autour de 0,1 mg/kg. Les concentrations en mercure naturel vont de 0,01 à 12 ng/L dans les eaux brutes (phases dissoutes et particulaires) de cours d'eau en milieu continental (Thomassin et Touzé, 2003).

Les sources de mercure dans l'environnement sont soit naturelles soit anthropiques. Le rapport de Bisson *et al.* (2010) indique que l'importante volatilité du mercure fait que sa principale source reste le dégazage de l'écorce terrestre et l'activité volcanique. Ils évaluent les émissions naturelles à 3 000 t/an et les émissions anthropogéniques à 4 500 t/an. Cossa et Ficht (1999) estiment la part anthropique des émissions de mercure à l'échelle de la planète à plus de 50 %. Les sources anthropiques de mercure sont principalement liées à l'utilisation des combustibles fossiles (650 à 3 500 t/an), à l'incinération des déchets (150 à 2 200 t/an), à la métallurgie (50 à 200 t/an) et à la

combustion du bois (60 à 300 t/an). Dans certaines parties du monde comme la Guyane, l'orpaillage et le traitement des minerais d'or et d'argent sont également une source importante de pollution au mercure (Coquery, 1994; Cossa *et al.*, 1994). L'exploitation du mercure par l'homme remonte à plus de 2000 ans. Elle a commencé à devenir importante à partir du XVIème siècle avec l'utilisation du mercure dans l'amalgamation de l'argent destiné à produire la monnaie. Le pic d'utilisation du mercure en Amérique du Nord et en Europe a eu lieu à la fin des années 1970. A cette période, le mercure a été reconnu comme dangereux et son utilisation s'est réduite sous le coup des interdictions (Thomassin et Touzé, 2003). Les sources diffuses restent nombreuses : batteries électriques et piles, tubes fluorescents, thermomètres, peintures, amalgames dentaires, gaz d'échappement des véhicules, décharges d'ordures, certains dépôts d'armes, sols contaminés et certaines exploitations de gaz naturel (Cossa et Ficht, 1999; Bisson *et al.*, 2010).

Selin (2009) indique qu'à l'échelle planétaire, les émissions totales de mercure dans l'atmosphère vont de 2 200 à 4 000 t/an et qu'elles sont restées relativement constantes depuis 1990. Pacyna *et al.* (2006) chiffrent à 2 200 t les émissions pour l'année 2000, dont 54 % pour l'Asie. Driscoll *et al.* (2013) chiffrent plutôt les émissions actuelles vers l'atmosphère à 6 500 à 8 200 t/an, dont 40 % en provenance de l'Asie. L'Afrique arrive en deuxième position avec 18 % des émissions et l'Europe en troisième position avec 8 % des émissions. Le principal pays européen émetteur est l'Allemagne (centrales à charbon), la France est en cinquième position (Cossa et Ficht, 1999).

Cossa et Ficht (1999) et Cossa *et al.* (1996) considèrent qu'à l'échelle mondiale, les apports en mercure à l'océan par voie atmosphérique s'élèvent à 2 000 t/an, et que l'océan restitue chaque année la même quantité de mercure vers l'atmosphère ; les échanges atmosphère/océan seraient ainsi équilibrés. Pour Driscoll *et al.* (2013), les échanges de l'océan vers l'atmosphère sont de l'ordre de 3 000 t/an, tandis que de l'atmosphère à l'océan ils sont de 4 000 t/an. Ils précisent que les dépôts de mercure atmosphériques ont augmenté globalement d'un facteur trois par rapport à la période préindustrielle. Pour les régions côtières européennes, les apports atmosphériques peuvent atteindre 40 ng/m^2/an le long des côtes du Danemark. Pour la Méditerranée occidentale, l'estimation est de 12 ng/m^2/an. Cossa et Ficht (1999) et Cossa *et al.* (1996) considèrent que les apports dissous par les fleuves aux océans à l'échelle mondiale sont dix fois plus faibles que les apports atmosphériques et seraient de l'ordre de 200 t/an. Le flux de mercure associé aux particules charriées par les fleuves est estimé à près de 1 000 t/an par Cossa *et al.* (1996). Driscoll *et al.* (2013) chiffrent les apports en mercure total et en méthylmercure des fleuves à l'océan à 380 t/an et 20 t/an respectivement. Pour Driscoll *et al.* (2013), le bilan annuel pour l'océan est donc de 4 380 t d'apports de mercure total par l'atmosphère et les fleuves et de 3 200 t d'exports, dont 200 t de dépôt dans les sédiments du fond.

2.3 Contamination des cours d'eau

La répartition du mercure dans l'environnement est conditionnée par sa très grande volatilité à température ambiante, la stabilité de ses liaisons avec le carbone et sa capacité à se bioaccumuler (Cossa et Ficht, 1999). Sa forme élémentaire est très volatile et sous forme gazeuse, il est très mobile et transporté sur de grandes distances dans l'atmosphère. Le transfert de l'atmosphère vers les eaux de surface ou vers les sols se fait par la pluie après oxydation dans les nuages. Les formes ionisées du mercure se fixent facilement aux oxydes de fer, d'aluminium et de manganèse et particulièrement à la matière organique (Coquery, 1994). Dans les sols ou dans les rivières, le mercure s'associe donc aux particules solides, avec lesquelles il peut voyager sur de plus longues distances. Les sédiments constituent un des réservoirs les plus importants de mercure dans l'environnement.

Le cycle biogéochimique du mercure fait intervenir des conversions d'espèces chimiques et des changements de phase, liquide, solide ou gaz (Cossa et Ficht, 1999). Globalement, la plus grande partie du mercure mobilisé est recyclée plusieurs fois entre les eaux de surface et l'atmosphère. Une petite fraction seulement s'échappe du cycle par enfouissement dans les sédiments. Le devenir des différentes formes du mercure dans l'environnement est donc varié, entraînant sa présence dans la plupart des milieux (Cf. Tab. 3 pour l'exemple de la France métropolitaine, selon Bisson *et al.* (2010)).

Tableau 3 – Concentrations en mercure total et méthylmercure mesurées en France, d'après Bisson *et al.* (2010)

	Eaux					
	Eau sout.	Lacs	Mers	Rivières	Pluie	Sédiments
	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L	ng/L	mg/kg
Hg total	0,5-15	2-12	0,01-6	0,05-3		$< 0,4$
Methylmercure		0,04-0,8			$< 0,5$-0,6	
				Biote		
	Sols	Air	Poissons		Plantes	
			eau douce	eau mer	aquatiques	
	mg/kg	ng/m^3	mg/kg	mg/kg	mg/kg	
Hg total	0,03-0,15	1-4				
Methylmercure			0,2-7	0,01-1,5	$< 0,1$	

En milieu aqueux, le mercure est soit réduit soit méthylé (Cossa et Ficht, 1999). La réduction des formes divalentes du mercure conduit à leur retour vers l'atmosphère. La méthylation en revanche favorise la bioaccumulation dans les organismes vivants et l'adsorption sur les particules en suspension. Les différentes formes chimiques du mercure dans l'eau dépendent principalement du

pH, de la présence ou de l'absence de matières organiques, du potentiel d'oxydo-réduction du milieu et de la concentration en MES. En rivière, pour des valeurs de pH usuelles comprises entre 7 et 8,5, la majeure partie du mercure n'est pas dissoute mais adsorbée sur les particules en suspension (UNEP/MAP/MED, 2003). La phase particulaire est donc généralement la voie dominante du transport du mercure en rivière (Thomassin et Touzé, 2003). D'important taux de transport par voie particulaire sont observés pour le Pô, avec 88 % de transport particulaire (UNEP/MAP/MED, 2003) ou encore dans le Lot et la Garonne, où selon Schäfer *et al.* (2006) jusqu'à 98 % du mercure est transporté en phase particulaire. L'adsorption peut être particulièrement importante pour les très fines particules, de diamètre inférieur à 0,45 μm, majoritairement composées d'hydroxydes de fer, d'aluminium, de manganèse ou de matière organique. En conditions acides en revanche, le mercure se désorbe des particules.

Le coefficient de partage particulaire-dissous Kd est le rapport entre la teneur d'une substance dans la phase particulaire et dans la phase dissoute. Un log Kd positif traduit une affinité plus importante de la substance pour la phase particulaire. Les coefficients de partage sol/eau, sédiments-eau, matière en suspension-eau sont très variables suivant la nature du support d'adsorption (sol, MES,...) et la nature du mercure considérée. Le log Kd sédiment-eau du mercure en milieu marin est estimé à 5,5 par Coquery *et al.* (1995) et à 5,05 en eau douce par Stortelder *el al.* (1989). Le log Kd MES-eau est de 5,23 selon Stortelder *el al.* (1989). Le mercure a donc une forte affinité pour la phase particulaire.

Les teneurs moyennes en mercure particulaire du Rhône peuvent être jusqu'à dix fois supérieures aux teneurs mesurées dans la croûte et varier de 0,18 mg/kg à 1,71 mg/kg (Cossa et Martin, 1991). Les concentrations actuelles classent le Rhône parmi les grands fleuves urbanisés les moins contaminés en mercure (Cf. Tab. 4). En effet, les rivières Léna, Ob, Iénisseï, considérées comme vierges de contamination au mercure, présentent des concentrations en mercure particulaire de l'ordre des teneurs contenues dans la croûte terreste, de 0,03 à 0,15 mg/kg (Coquery *et al.*, 1995). En revanche, le Niagara, le Pô, le Rhin, la Seine et le Var, présentent des teneurs moyennes en mercure particulaire de 1,22 à 1,57 mg/kg.

Le flux de mercure particulaire du Rhône à Arles pour l'année 2009 est estimé à 144 kg/an (Castelle, 2010), ce qui correspond à 92 % du flux total de mercure passé à Arles. Pour la Seine, Cossa *et al.* (1994) évaluent le flux de mercure annuel à 163 kg pour l'année 1990 et à 216 kg pour l'année 1991. Le flux moyen annuel de mercure à l'exutoire du Lot est estimé à 35 à 530 kg/an selon les années, dont 58 à 84 % sont de source anthropique.

Tableau 4 – Teneurs moyennes (minimale-maximale) en mercure particulaire mesurées dans quelques fleuves de la planète d'après la littérature

Fleuve (Pays)	Années	Teneur (mg/kg)	Source
Rhône (France)	1985	0,9	Figueres *et al.* (1985)
	1989	0,23-1,71	Cossa et Martin (1991)
	1994-95	0,481 (0,080-1,560)	Chiffoleau (1995)
	1994-95	1,14	Pont (1996)
	2009-10	0,180 (0,065-0,841)	Castelle (2010)
Saône (France)	1989	0,44	Santiago *et al.* (1993)
Seine (France)	1997	1,22 (0,43-2,67)	Coquery *et al.* (1997)
			Cossa et Ficht (1999)
Garonne (France)	1985	0,7	Figueres *et al.* (1985)
			Schäfer et Blanc (2002)
Loire (France)	1982	0,6	Figueres *et al.* (1985)
	1995	0,10-0,50	Coquery *et al.* (1997)
Var (France)	1994-1995	0,04	Pont (1996)
Charente (France)	1985	1,2	Cossa et Martin (1991)
Argens (France)	1994-1995	$<$0,03	Pont (1996)
Herault (France)	1994-1995	0,14	Pont (1996)
Orb (France)	1994-1995	0,29	Pont (1996)
Po (Italie)		1,54	UNEP/MAP/MED (2003)
Rhin (Allemagne)		1,46	Cossa *et al.* (1996)
	1999-2000	0,09 (0,05-0,12) 0,143	Pardos *et al.* (2003)
Elbe (Allemagne)		1,3	Cossa et Ficht (1999)
			Coquery et Cossa (1995b)
Niagara (USA)		1,57	Cossa *et al.* (1996)
Léna (Russie)	1991	0,04-0,20	Coquery *et al.* (1995)
Ob (Russie)	1993	0,04-0,06	Coquery *et al.* (1995)
Iénisseï (Russie)	1993	0,04-0,06	Coquery *et al.* (1995)
Saint-Laurent (Canada)	1995-96	0,15 (0,04-0,52)	Quémerais *et al.* (1998)
			Quémerais *et al.* (1999)
11 cours d'eaux suisses	1999-2000	0,14 (0,02-0,59)	Pardos *et al.* (2003)

3 Les polychlorobiphényles

3.1 Caractéristiques physico-chimiques et réglementation

Les polychlorobiphényles (PCB) sont des composés aromatiques organochlorés, couramment appelés pyralènes en France. Ils sont constitués de deux cycles aromatiques reliés par l'un de leurs sommets et pouvant porter jusqu'à 5 atomes de chlore chacun (Fig. 1). Il existe donc 10 degrés de chloration allant du monochloro-biphényle au décachloro-biphényle (Dargnat et Fisson, 2010). Leur formule chimique générale est $C_{12}H_{(10-n)}Cl_n$ (avec n compris entre 1 et 10). Les multiples combinaisons possibles donnent lieu à 209 congénères théoriques différents (Brunet, 2007), numérotés de 1 à 209 par l'International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC). En réalité, les contraintes de synthèse ne permettent de produire qu'environ 150 congénères différents (Meunier, 2008).

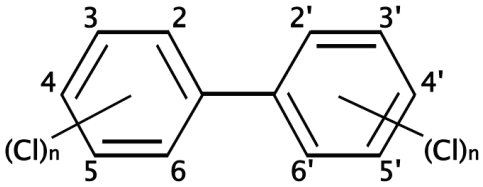


FIGURE 1 – Structure chimique des PCB.

Ces composés sont persistants et la stabilité des molécules augmente avec leur degré de chloration. Leur temps de demi-vie dans l'environnement peut aller de quelques jours à plusieurs années selon les milieux (Brunet, 2007). Les PCB les plus chlorés, dits PCB lourds, ne sont pas biodégradables. Leur solubilité aqueuse est généralement faible et diminue quand le nombre d'atomes de chlore augmente, variant de 6 à 106 mg/L (Chevreuil *et al.*, 2009). Pour une substance donnée, le coefficient Kow indique le rapport entre sa concentration à l'équilibre dans l'octanol et sa concentration dans l'eau. Il traduit le caractère hydrophobe d'une molécule et son affinité pour une matrice solide. Une molécule présentant un $logKow < 3$ est considérée comme hydrophile et sera retrouvée préférentiellement en phase dissoute. Un $logKow > 5$ indique que la substance s'accumule surtout dans les sédiments ou les MES. Le $logKow$ des PCB augmentent avec le nombre d'atomes de chlore et varie de 4,84 à 7,14 (Chevreuil *et al.*, 2009).

Les PCB sont donc hydrophobes et lipophiles, ce qui les amènent à se fixer dans les matrices organiques telles que certains sédiments ou les graisses animales, dans lesquelles ils ont tendance à s'accumuler (GST-PCB, 2012). Ils s'accumulent en grande quantité dans les graisses des poissons et la contamination de l'homme se fait principalement par la voie alimentaire. Les effets à court terme sont de la fatigue, des nausées, des vomissements et des pertes de mémoire. A long terme, la consommation de PCB entraîne des retards de croissance et des problèmes de comportement chez

les enfants (Bisson *et al.*, 2005). Ils sont peu volatils mais cette voie de dispersion existe malgré tout, conduisant ces molécules à être quantifiées jusque dans la zone arctique (Carroll *et al.*, 2008).

Les congénères appartiennent soit aux PCB de type dioxine, ou PCB dioxin-like (PCB-DL), soit aux autres PCB (PCB-NDL), en fonction de la configuration de leur molécule, largement impliquée dans son mode d'action et sa toxicité (ORS, 2008). Les PCB-DL ont une configuration plane, très comparable aux dioxines, rendant leurs mécanismes de toxicité semblables à ces dernières. Bien qu'étant moins utilisés dans l'industrie, ces congénères sont considérés comme les plus dangereux pour la santé. Depuis 1997, 12 congénères font partie de la liste des PCB-DL, les PCB 77, 81, 105, 114, 118, 123, 126, 156, 157, 167, 169 et 189 (INERIS, 2011). Par ailleurs, en 1982, le Bureau communautaire de référence de la Commission européenne (Bruxelles) a sélectionné 7 PCB indicateurs (PCBi) qui doivent être recherchés en priorité dans les matrices organiques (sédiment, sang, chair, graisse). Ces PCB indicateurs, les congénères 28, 52, 101, 118, 138, 153 et 180, ont été choisis du fait de leur persistance, de leur abondance dans l'environnement et de leurs propriétés toxicologiques. Ils représentent près de 80 % des PCB totaux retrouvés dans les échantillons environnementaux (eau, sédiment, échantillons biologiques) (Dargnat et Fisson, 2010). L'usage actuel est d'exprimer les concentrations soit en congénères individuels soit comme la somme des concentrations des PCBi ou $\sum$PCBi.

Les PCB-DL ont été récemment ajoutées aux substances prioritaires de la DCE (E.C., 2013). Ils apparaissent également sur la liste des polluants organiques persistants (POP) retenue par le protocole d'Aarhus[5] du 24/06/1998 et par la Convention de Stockholm[6] de 2001. Les valeurs seuils établies par les autorités pour réglementer la présence de PCB dans les eaux, les sols et les organismes vivants sont souvent exprimées selon une quantité équivalente de toxicité (TEQ) basée sur la dioxine considérée comme la plus toxique (dioxine Seveso 2,3,7,8-TCDD). L'OMS a établi une dose journalière tolérable de 1,3 pg/kg/jour pour les PCB-DL (UNEP/MAP/MED, 2005). En Europe, la limite maximale de concentration pour la consommation des poissons est fixée pour la somme des dioxines, des furannes et des PCB de type dioxine à 8 pg TEQ/g de poids frais de poisson (Afssa, 2010). En France, la concentration en PCB de l'eau destinée à la consommation humaine ne doit pas dépasser 0,1 μg/L (MEDD, 2001) et la valeur limite de la concentration des rejets d'eaux résiduaires est de 0,5 μg/L (MEDD, 1985). Il n'existe pas de NQE pour les PCB dans les MES. Le critère d'évaluation écotoxicologique (EAC) déterminé par la convention OSPAR pour la somme des PCBi dans les sédiments marins est de 1 à 10 μg/kg sec, en fonction de la distance par rapport aux sources ponctuelles, mais aussi de la teneur en carbone organique des sédiments. Les EAC sont

5. http ://www.unece.org/env/lrtap/pops_ h1.html
6. http ://europa.eu/legislation_ summaries/environment/air_ pollution/l21279_ fr.htm

définis comme les niveaux de concentration d'une substance à partir desquels une préoccupation est justifiée ; ces valeurs sont en général provisoires (OSPAR, 2000).

3.2 Sources de PCB

Synthétisés en laboratoire pour la première fois en 1881, les PCB ont été produits de façon massive à partir de 1929 aux Etats-Unis par Monsanto et à partir de 1930 en Allemagne par Bayer (Harremoes *et al.*, 2001; INERIS, 2011). Ils n'existent pas de façon naturelle. Ils étaient utilisés comme isolant et fluide caloporteur dans les transformateurs et les condensateurs, et comme additifs dans les peintures, les papiers autocopiants et les plastiques (Bianco et Valter, 2002; Marchand, 1989). Les produits commerciaux de marques Aroclor et Askarel (Etats-Unis), Chlophen (Allemagne) ou Phénochlor et Pyralène (France) se présentaient sous forme de mélanges de PCB. Ces mélanges comportent de 20 à 70 % de chlore et les plus répandus sont les Aroclors 1242, 1248, 1254 et 1260 (INERIS, 2011). La production des PCB en France a cessé depuis 1986 et leur usage est interdit depuis 1987 (Rhône-Alpes, 2013). Le plan national de décontamination et d'élimination des appareils contenant des PCB (Agence de l'écologie et du développement durable ADEME, 2003) impose l'élimination des appareils contenant des concentrations en PCB supérieures à 500 mg/kg au plus tard le 31 décembre 2010. Cependant, du fait de leur persistance, les PCB continuent d'être présents dans tous les compartiments, biologique, dissous et particulaire, des rivières françaises et mondiales.

Les sources potentielles de contamination des cours d'eau identifiées dans le rapport Fruget *et al.* (2010) sont pour la plupart des sources diffuses encore actives telles que les retombées atmosphériques, les rejets domestiques et ruissellements urbains traités ou non dans les stations d'épuration, les stocks de déchets non contrôlés, ou les rejets d'installations de traitement des PCB ou encore des parcs de transformateurs électriques. Des rejets accidentels ou des actes de vandalisme sont parfois responsables de pollutions ponctuelles. Marchand (1989) estime que la production mondiale cumulée de PCB est de 1,2 Mt et que 30 % de cette quantité est dispersée dans l'environnement, principalement dans l'océan. La production totale de PCB en France est estimée à 123 000 t, soit 10 % de la production mondiale, et les apports de PCB au milieu marin côtier par les fleuves et l'atmosphère sont évalués entre 2,5 et 3,0 t/an. La quantité de PCB utilisée sur le sol français se situe entre 50 000 et 60 000 t.

3.3 Contamination des cours d'eau

Les données disponibles dans la littérature portant sur les concentrations en PCB mesurées dans les MES et les flux de PCB dans les cours d'eau de la planète sont recensées dans les Tab. 5 et

Tab. 6. Cette revue bibliographique met en avant une grande hétérogénéité des méthodes de calcul et d'expression des résultats. Brunet (2007) a fait l'inventaire des valeurs trouvées dans la littérature pour les concentrations en PCB dans l'eau, les sédiments et les poissons de plusieurs cours d'eau dans le monde. A titre d'information, nous avons reproduit les tableaux pour les teneurs dans les sédiments en Annexe A. La contamination des MES par les PCB semble présente dans la plupart des régions du monde. Le Rhône présente des teneurs en PCB dans les MES importantes par rapport aux cours d'eau suisses (Cf. Tab. 6). Toutefois, les teneurs en PCB du Rhône sont plus environ deux fois plus faibles que les teneurs en PCB dans la Seine.

Le rapport UNEP/MAP/MED (2005) souligne que la principale voie d'entrée des PCB et de la plupart des organohalogénés dans la Méditerranée est le dépôt atmosphérique qui représente 80 % des apports, le reste transitant par les cours d'eau. Marchand (1989) liste les flux annuels de PCB pour les fleuves français et quelques fleuves à l'étranger. Ces estimations sont reprises dans le Tab. 6. Les flux sont souvent rapportés sous la forme de flux totaux, comprenant le transport par l'eau et les particules. Au niveau mondial, les apports de PCB par les fleuves au milieu côtier varient de 10 à 8 000 kg/an. Pour les années récentes, les flux de PCB annuels du Rhône sont du même ordre de grandeur que ceux de l'Ebre et sont environ 2 à 3 fois plus faibles que ceux de la Seine.

Les caractéristiques physico-chimiques des PCB les amènent à se fixer préférentiellement sur les particules présentes dans les cours d'eau. Ce n'est pourtant pas toujours le cas ; Gomez-Gutierrez *et al.* (2006) indiquent que 75 % du flux annuel de PCB de l'Ebre est véhiculé par la phase dissoute. Les auteurs précisent que ce flux est dominé par les congénères les moins chlorés, plus facilement transportés en phase dissoute. Dargnat et Fisson (2010) indiquent que les concentrations en PCB mesurées dans la Seine entre 1988 et 2005 n'augmentent pas de l'amont vers l'aval. En revanche, les profils de PCB changent et les auteurs constatent un enrichissement des échantillons en PCB légers entre l'amont et l'aval de Rouen. Comme les PCB légers sont moins stables dans l'environnement, les auteurs indiquent que leur présence en plus grande quantité à l'aval de Rouen suggère une source d'apports locaux. Tout comme pour l'Ebre, le flux de PCB de la Seine est composé d'une plus grande part de congénères légers et leurs auteurs indiquent que le flux dissous pourrait donc représenter une part plus importante du flux de PCB. Notons également que, dans le cas de très faibles concentrations en MES, la phase dissoute peut devenir le principal réservoir de PCB. C'est le cas de la Méditerranée par exemple, où les concentrations en MES sont de l'ordre de 0,4 à 1 mg/L (Dachs *et al.*, 1997; UNEP/MAP/MED, 2003). Dans le cas du Rhône, en revanche, Tronczynski et Héas-Moisan (1996) et Tronczynski et Tixier (2012) ont montré que la contribution du flux de PCB particulaires au flux total du Rhône est supérieure à 90 %, confirmant que pour le Rhône les MES sont la principale voie de transfert des PCB vers la mer. Le pourcentage de flux particulaire/dissous

dépend de la répartition des congénères lourds/légers (selon l'historique de la contamination).

Les concentrations et les flux sont souvent exprimés sous la forme d'une somme de PCB, mais les congénères considérés varient d'une étude à l'autre, rendant les résultats difficilement comparables. Dans le cas du Rhin par exemple, les flux calculés par la Commission internationale pour la protection du Rhin (CIPR[7]) pour la période 1985-1992 sont 20 à 80 fois plus faibles que ceux proposés dans Marchand (1989) ; cette comparaison est toutefois difficile vu le manque d'information sur les congénères et les phases étudiés. Dans une optique d'harmonisation, Babut *et al.* (2009) ont étudié les corrélations entre les concentrations en $\sum$PCB-DL et en $\sum$PCBi et suggèrent d'établir une méthode normée pour passer de l'une à l'autre. Néanmoins, ces deux groupes de PCB ne sont pas les seuls utilisés pour exprimer des résultats (Cf. Tab. 5 et Tab. 6).

De plus, la méthode de calcul de cette somme de PCB n'est pas toujours explicitée, et en particulier il n'est pas précisé quelle valeur est utilisée dans le cas où l'un des congénères n'est pas quantifié. OSPAR (2002) recommande dans ce cas de considérer la concentration du congénère comme équivalente à la limite de quantification (LQ) de l'analyse ou LQ divisée par 2. Toutefois, il n'est pas rare que la concentration d'un congénère non quantifié soit considérée comme nulle. Ces considérations peuvent faire varier considérablement les résultats d'analyse exprimés en somme des PCBi(Sabot, 2013).

Les protocoles d'analyse ont également évolué dans le temps, permettant une meilleure quantification des congénères. La baisse des limites de quantification implique dans certains cas des résultats qui diffèrent, comme cela a été constaté par Tronczynski *et al.* (1999) pour la Seine. Les protocoles peuvent également différer d'un laboratoire à l'autre. Sur le Rhône, les concentrations exprimées en somme des PCBi pour l'année 2010-2011 sont deux fois plus faibles que pour l'année 2009-2010 (Cossa, 2012). Les débits hydriques sont pourtant semblables pour les deux années. Les auteurs mettent en avant un changement de laboratoire d'analyse entre les deux périodes, avec des différences de concentration d'un facteur deux pour 5 échantillons analysés par les deux laboratoires. Ils suggèrent d'effectuer une intercomparaison pour clarifier ce problème.

Enfin, les fréquences de mesure et les méthodes de calcul des flux ont également évolué, rendant difficile la comparaison des flux obtenus pour un même cours d'eau. C'est par exemple le cas pour le Rhône (Cf. Tab. 6). Le flux de PCB proposé par Marchand (1989) pour le Rhône est deux à six fois plus important que le flux déterminé pour les années 1994-95 et 2009-10 par Tronczynski et Héas-Moisan (1996) et Tronczynski et Tixier (2012). Marchand (1989) n'a toutefois pas précisé de

7. http ://www.iksr.org/

quels congénères il s'agit ; Tronczynski et Héas-Moisan (1996) et Tronczynski et Tixier (2012) ont présenté des flux de $\sum$PCBi. Pour les suivis de 1994-95 et 2009-10, une fréquence de prélèvement bimensuelle hors des périodes de crue et plus fréquente pendant les périodes de crue a été adoptée. Les résultats de ces suivis ont mis en évidence une dilution des teneurs en PCB dans les MES en période de crue. Si le flux proposé par Marchand (1989) a été estimé à partir de teneurs mesurées hors période de crue, il est probable qu'il soit surestimé. Par ailleurs, Cossa (2012) remet en question le flux obtenu pour l'année 1994-95. Il indique, d'une part, que le flux de PCB de 2009-10 est seulement trois fois plus faible qu'en 1994-95, alors que la différence entre les flux de MES des deux années est d'un facteur 6 (15,6 Mt de MES en 1994-95 contre 2,7 Mt en 2009-10). D'autre part, il montre, par comparaison des teneurs mesurées entre 1994 et 2009, qu'elles n'ont pas diminué au cours de cette période. Il suggère donc que le flux de l'année 1994-95 pourrait être légèrement sous-estimé.

Nous voyons apparaître ici les principaux problèmes liés au calcul de flux de PCB et de contaminants particulaires en général : le manque de connaissance des variations temporelles des teneurs, qui ne permet pas d'évaluer la représentativité temporelle de la mesure effectuée, et un besoin d'homogénéiser les pratiques de prélèvements, d'analyse et d'expression des résultats.

Tableau 5 – Teneurs moyennes (minimale-maximale) en PCB mesurées dans les MES recensées dans la littérature

Fleuve (Pays)	Années	PCB	Teneur (μg/kg)	Source
Rhône à Lyon (France)	2008-2009	PCBi	14 - 140	Fruget *et al.* (2010)
Rhône à Arles (France)	2009-10	(b)	58,9 (13,8 - 135,8)	Tronczynski et Tixier (2012)
	2009-10	PCBi	36,1 (8,0 - 84,2)	Tronczynski et Tixier (2012)
	2010-11	PCBi	15,0 (5,2 - 49,0)	Cossa (2012)
	1994-95	(c)	4,6 - 67	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
Ebre (Espagne)	2002-03	(d)	140 (78 - 249)	Gomez-Gutierrez *et al.* (2006)
Rio de la Plata (Argentine)		(c)	11,5 - 26	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
Lac Supérieur (USA)		(c)	29 - 329	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
Lac Ontario (USA)		(c)	82 - 158	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
Seine (France)	1985-86	(e)	6,5 - 38,3	Abarnou (1988)
	1990-92	(f)	44 - 114	Cossa *et al.* (1994)
	1990-92	(c)	434	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
	Fev. 1995	(c)	220	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
11 cours d'eau suisses	1999-2000	PCBi	7,9 (0,35 - 58)	Pardos *et al.* (2003)
mer Baltique	1991-1992	68 PCB	3,2 - 31	Strandberg *et al.* (1998)
Swale (G-B)	1997-1999	(g)	<2	Owens *et al.* (2001)
Aire (G-B)	1997-1999	(g)	52	Owens *et al.* (2001) et Meharg *et al.* (2003)
Calder (G-B)	1997-1999	(g)	31	Owens *et al.* (2001)
Shoal Creek (USA)	1999-2000	Tous	< 10-170	Mahler et Van Metre (2003)
Barton Creek (USA)	1999-2000	Tous	< 16-520	Mahler et Van Metre (2003)

(a) $\sum$*PCB 28, 52, 44, 70, 101, 118, 153, 138, 187, 128, 180 et 170*
(b) $\sum$*PCB 18, 31, 28, 52, 49, 44, 103, 66, 101, 87, 110, 151, 118, 153, 105, 138, 183, 167, 174, 156, 180, 170, 189 et 194*
(c) $\sum$*PCB 28, 31, 52, 101,105, 118, 153, 105, 138, 156 et 180*
(d) $\sum$*PCB 28, 52, 99, 101, 149, 118, 153, 138 et 180*
(e) $\sum$*PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153, 180 et 194*
(f) $\sum$*PCB 101, 118, 138, 153 et 180*
(g) $\sum$*PCB 8, 18, 28, 31, 52, 77, 101, 105, 114, 118, 123, 126, 128, 138, 149, 153, 156, 157, 167, 169, 170, 180 et 209*
PCBi : $\sum$*PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153 et 180*

Tableau 6 – Estimations de flux moyens annuels de PCB transportés par les fleuves présentées dans la littérature

Fleuve (Pays)	Flux (kg/an)	PCB considérés	Type de flux	Source
Seine (France)	230 à 430	-	Total	Marchand (1989)
	170 (80 + 90)	(a)	Total	Abarnou (1988)
	155 à 210	(b)	particulaire	Cossa *et al.* (1994)
Gironde (France)	25 à 45	-	Total	Marchand (1989)
Loire (France)	60 à 110	-	Total	Marchand (1989)
Rhône (France)	600	-	Total	Marchand (1989)
	290	PCBi	particulaire (= 99% du total)	Tronczynski et Héas-Moisan (1996)
	560	PCBi	particulaire	Collilieux et Clément (2008)
	87,3	PCBi	particulaire (= 90% du total)	Tronczynski et Tixier (2012)
Var (France)	10	-	Total	Marchand (1989)
Ebre (Espagne)	80	(c)	Total (dont 75 % dissous)	Gomez-Gutierrez *et al.* (2006)
Niagara (USA)	1700-1900	-	Total	Marchand (1989)
Rhin (Hollande)	7600	-	Total	Marchand (1989)
	390 (1985)- 90 (1992)	-	-	Brunet (2007) et CIPR[8]
Weser (Hollande)	198	-	Total	Marchand (1989)
Elbe (Hollande)	564	-	Total	Marchand (1989)
Elbe (Allemagne)	176	(d)	particulaire	Heemken *et al.* (2000)
Mulde (Allemagne)	16	(d)	particulaire	Heemken *et al.* (2000)
Swale (G-B)	0,05	(e)	particulaire	Walling *et al.* (2003)
Aire (G-B)	6,5	(e)	particulaire	Walling *et al.* (2003)
Humber (G-B)	1,5	PCB77+118	particulaire	Zhou *et al.* (1998)
Ob (Russie)	6,1	(f)	Total	Carroll *et al.* (2008)
Ienisei (Russie)	5,8	(f)	Total	Carroll *et al.* (2008)

(a) $\sum$*PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153, 180 et 194*
(b) $\sum$*PCB 101, 118, 138, 153 et 180*
(c) $\sum$*PCB 28, 52, 99, 101, 118, 138, 149, 153 et 180*
(d) $\sum$*PCB 28, 52, 101, 105, 118, 138, 153, 156 et 180*
(e) $\sum$*PCB 8, 18, 28, 31, 52, 77, 101, 105, 114, 118, 123, 126, 128, 138, 149, 153, 156, 157, 167, 169, 170, 180 et 209*
(f) $\sum$*PCB 28, 31, 52, 101, 105, 118, 138, 153, 156 et 180*
(-) non indiqué
PCBi : $\sum$*PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153 et 180*

4 Le Rhône : un fleuve contrasté et fortement aménagé

4.1 Caractéristiques hydrographiques

La plupart des informations présentées dans ce paragraphe est issue des ouvrages de Bravard (1987) et de Bravard et Clemens (2008) qui font une présentation précise du Rhône.

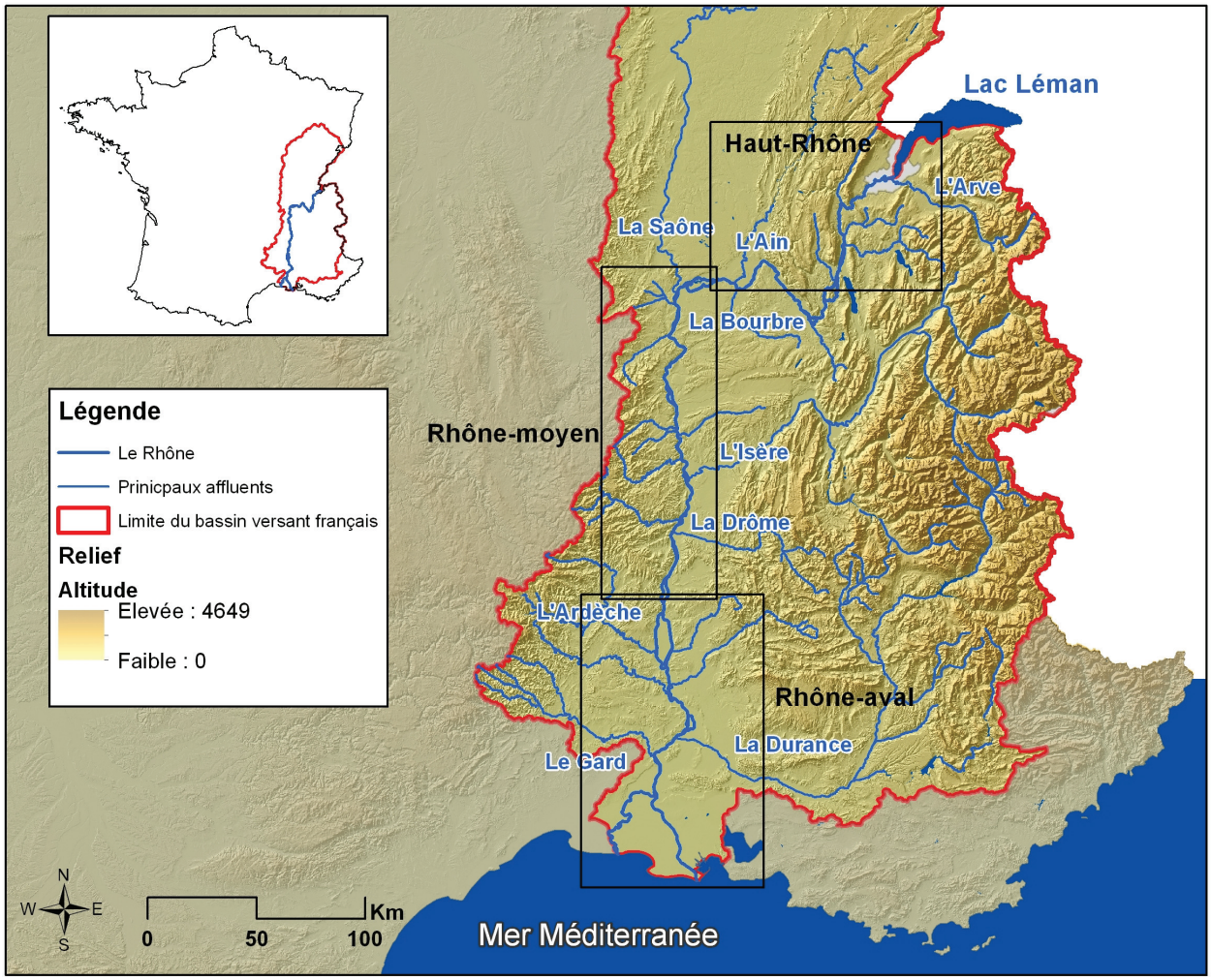


FIGURE 2 – Réseau hydrographique du Rhône et de ses principaux affluents

Le Rhône prend sa source en Suisse, dans le massif du Saint Gothard, et parcourt 810 km avant d'arriver à la mer Méditerranée, dans le sud de la France, au niveau du delta de Camargue (Bravard, 1987). Par ses dimensions, il est le deuxième fleuve sur le territoire français après la Loire (Bravard et Clemens, 2008). Depuis la construction du barrage d'Assouan sur le Nil dans les années 60, le Rhône est le premier fleuve méditerranéen en termes de débit d'eau annuel avec un apport de 53,9 km^3/an, et le second en terme de surface de bassin versant avec 95 600 km^2 (UNEP/MAP/MED, 2003). Le

bassin versant du Rhône se distingue par une grande hétérogénéité géologique et climatique. Son régime hydrologique est influencé par la fonte des glaciers et des neiges à l'amont, par la pluie et les événements hydrologiques cévenols extrêmes à l'aval (Pardé, 1925).

Les territoires qu'il traverse sont variés en termes de reliefs et de climats et Bravard et Clemens (2008) distinguent cinq entités hydrographiques :

- le Rhône alpestre, de la source au lac Léman qui s'écoule sur le territoire suisse sous la forme d'un torrent de montagne et draine 5 000 km^2, ce qui représente environ 5 % de la superficie totale du bassin. A la sortie du Léman, le Rhône traverse Genève où il est rejoint après quelques kilomètres par l'Arve en rive gauche ;
- le Haut-Rhône français (Cf. Fig. 2), qui traverse le Jura, les Préalpes et la plaine de l'Ain sur plus de 200 km et couvre un bassin versant de 12 300 km^2. Les principaux affluents du Haut-Rhône sont (Cf. Fig. 3.5), de l'amont vers l'aval, la Valserine (rive droite), le Fier (rive gauche), le Guiers (rive gauche), la Bourbre (rive gauche) et l'Ain (rive droite). Les affluents en rive gauche viennent des préalpes et les affluents en rive droite du Jura. C'est entre le Fier et le Guiers que le Lac du Bourget se déverse dans le Rhône en rive gauche par le canal de Savières. Le canal permet d'écrêter les crues du Rhône, l'écoulement se faisant alors du Rhône vers le lac ;
- le Rhône Moyen (Cf. Fig. 2), s'étirant sur 110 km et drainant un territoire de 46 150 km^2 entre les confluences de la Saône et de l'Isère ;
- le Rhône Aval (Cf. Fig. 2), de l'Isère à Arles, long de 160 km avec un bassin de 29 150 km^2. Sur cette portion, les principaux affluents, aux influences méditerranéennes, sont la Drôme, l'Ardèche, le Gard et la Durance (Cf. Fig. 3.16) ;
- et le delta, entre Arles et la mer, où le fleuve se répartit entre le petit Rhône à l'ouest et le grand Rhône à l'est.

De l'amont vers l'aval, la pente ne cesse de s'atténuer, passant de 0,9 % dans la partie suisse à seulement 0,004 % au niveau du delta. Le débit moyen annuel du Rhône à la station de Beaucaire située 15 km en amont d'Arles est de 1 690 m^3/s pour la période 1920-2011[9]. Le plus faible débit journalier enregistré est de 300 m^3/s le 8 août 1976 et le plus fort est de 11 500 m^3/s le 3 décembre 2003. Ce dernier chiffre a fait l'objet d'une conférence de consensus[10] organisée par le préfet coordonnateur du bassin Rhône Méditerranée à la demande du Ministère de l'écologie et du développement durable en 2005. Les débits instantanés de période de retour 1 an, 2 ans, 10 ans, 50 ans et 100 ans sont respectivement de 4 000, 5 000, 8 400, 10 400 et 11 200 m^3/s (Eyrolle *et al.*,

9. données CNR, statistiques : http ://www.hydro.eaufrance.fr, code station : V7200010
10. http ://ccbr.lyon.cemagref.fr/

2012).

Le Léman est le plus grand lac européen, avec une superficie de 582 km^2 et une longueur de 70 km. La traversée de cette masse d'eau par le Rhône provoque la décantation des matières en suspension, de sorte que les eaux en sortie de Léman sont à peu près dénuées de particules. Depuis 1995, le barrage du Seujet construit en sortie du Léman dans Genève assure la régularisation du niveau du lac Léman et la modulation des débits du Rhône par l'amortissement des crues et le soutien des étiages. Les débits et volumes sortant du lac Léman sont régis par deux conventions. La convention suisse inter-cantonale (1884) définit le réglage de la cote du plan d'eau du Léman et fixe le débit minimum sortant du lac à 100 m^3/s du 1er mai au 30 septembre et à 50 m^3/s du 1er octobre au 30 avril avec une forte modulation journalière et hebdomadaire. La convention internationale d'Emosson du 23 août 1963 prévoit la restitution à la France des eaux provenant du bassin versant de l'Arve et accumulées dans le barrage suisse d'Emosson. Le volume annuel de cette restitution est fixé à 87 Mm^3.

Les quatre principaux affluents du Rhône en termes d'apports en eau sont l'Ain, affluent jurassien (module = 104 m^3/s, débit spécifique = 28 $L/s/km^2$), la Saône, qui draine en partie les Vosges, le Jura et le Massif Central (475 m^3/s, 16 $L/s/km^2$), l'Isère, descendant des Alpes (333 m^3/s, 28 $L/s/km^2$) et la Durance, affluent préalpin soumis au climat méditerranéen (180 m^3/s, 13 $L/s/km^2$).

4.2 Les aménagements du Rhône

Le Rhône a connu de nombreux aménagements pour faciliter la navigation et la production d'énergie. L'exploitation hydroélectrique du Rhône a débuté en 1898 avec la mise en service du barrage de Cusset à l'amont de Lyon, opéré par Electricité de France (EDF [11]). La Compagnie Nationale du Rhône (CNR [12]) a par la suite construit 18 autres aménagements hydroélectriques sur le Rhône français (Cf. Fig 3). Sur le tronçon du Rhône entre le Léman et la frontière franco-suisse, les aménagements de Verbois et du Seujet sont exploités par les Services Industriels de la ville de Genève (SIG [13]) et l'aménagement de Chancy-Pougny par la Société des Forces Motrices de Chancy-Pougny (SFMCP [14]), dont les SIG et la CNR sont actionnaires. Au total, ce sont donc 22 aménagements qui ont été construits sur le Rhône entre le Léman et la mer. Ces aménagements ne représentent ni une pression polluante, ni des zones de prélèvement d'eau, mais ils constituent néanmoins un obstacle au transit sédimentaire et les sédiments s'accumulent progressivement dans les retenues. C'est par-

11. http ://france.edf.com
12. http ://www.cnr.tm.fr/fr/
13. http ://www.sig-ge.ch
14. http ://www.sfmcp.ch/

ticulièrement le cas du barrage suisse de Verbois (SIG), qui se situe à l'aval de la confluence entre l'Arve et le Rhône, l'Arve étant un gros contributeur en MES. L'accumulation de sédiments dans la retenue de Verbois provoque l'exhaussement de la ligne d'eau et entraîne un risque d'inondation des bas quartiers de Genève en cas de crue. Pour limiter ces problèmes, des opérations de chasse hydraulique sont menées périodiquement depuis 1898 en collaboration entre les Français et les Suisses. Ces opérations consistent à abaisser la retenue du barrage de Verbois pendant une semaine pour permettre d'évacuer les sédiments piégés dans la retenue vers l'aval. Ces chasses sont associées à une ouverture préalable du barrage de Génissiat, depuis sa mise en eau en 1948, pour limiter l'accumulation de sédiments dans la retenue et pour assurer une régulation des concentrations en MES en utilisant les vannes de fond et de demi-fond du barrage de Génissiat. Ces opérations sont réglementées par l'accord franco-suisse du 4 octobre 1967 qui fixe la saison des chasses aux alentours du mois de juin, une périodicité de trois ans et des consignes de débit. Entre 1969 et 2003, le rythme triennal a été respecté ; puis, suite à un moratoire pour la recherche de solutions de gestion alternatives, une interruption de 9 ans a eu lieu entre 2003 et 2012 (CNR, 2012). Suite à une forte mortalité piscicole due à un problème de gestion des débits amont en 1978, des seuils de concentration en MES ont été établis en 1981 et encadrent ces opérations de chasse.

4.3 Les flux particulaires transportés par le Rhône

Le Rhône constitue l'apport principal de matières solides à la Méditerranée (UNEP/MAP/MED, 2003; Ollivier *et al.*, 2011). D'après le rapport UNEP/MAP/MED (2003), les apports spécifiques annuels de sédiments du Rhône à la Méditerranée sont de 324 t/km^2/an, ce qui est près de deux fois supérieur aux valeurs obtenues pour les autres fleuves méditerranéens, pourtant déjà caractérisés par des taux d'érosion très élevés. Néanmoins, Ollivier *et al.* (2010) indiquent qu'avec une concentration moyenne en MES de 120 mg/L (Pont, 1997; Ollivier *et al.*, 2010), le Rhône reste parmi les rivières du monde pour lesquelles les concentrations en MES sont faibles, par comparaison avec la moyenne mondiale de 535 mg/L établie par Berner (2012). Les données collectées par Pont (1997) entre 1992 et 1995 ont montré que le flux annuel de MES du Rhône peut varier d'un facteur 20 d'une année à l'autre, avec des valeurs allant de 1,2 à 22,7 Mt de MES pour ces trois années de mesure. Les études menées dans le cadre du projet EXTREMA ont mis en évidence que les crues peuvent représenter jusqu'à 95 % du flux annuel de MES du Rhône à Arles (Eyrolle, 2010), ce qui souligne la nécessité d'échantillonner ces évènements pour produire une estimation correcte des flux annuels.

L'Etude Globale Rhône (EGR), réalisée en 2000 par SOGREAH (Hydratec, 2003), représente un travail important de synthèse des données se rapportant au transport solide du Rhône. Elle décrit les principaux mécanismes de la dynamique fluviale du Rhône et proposent des estimations de flux

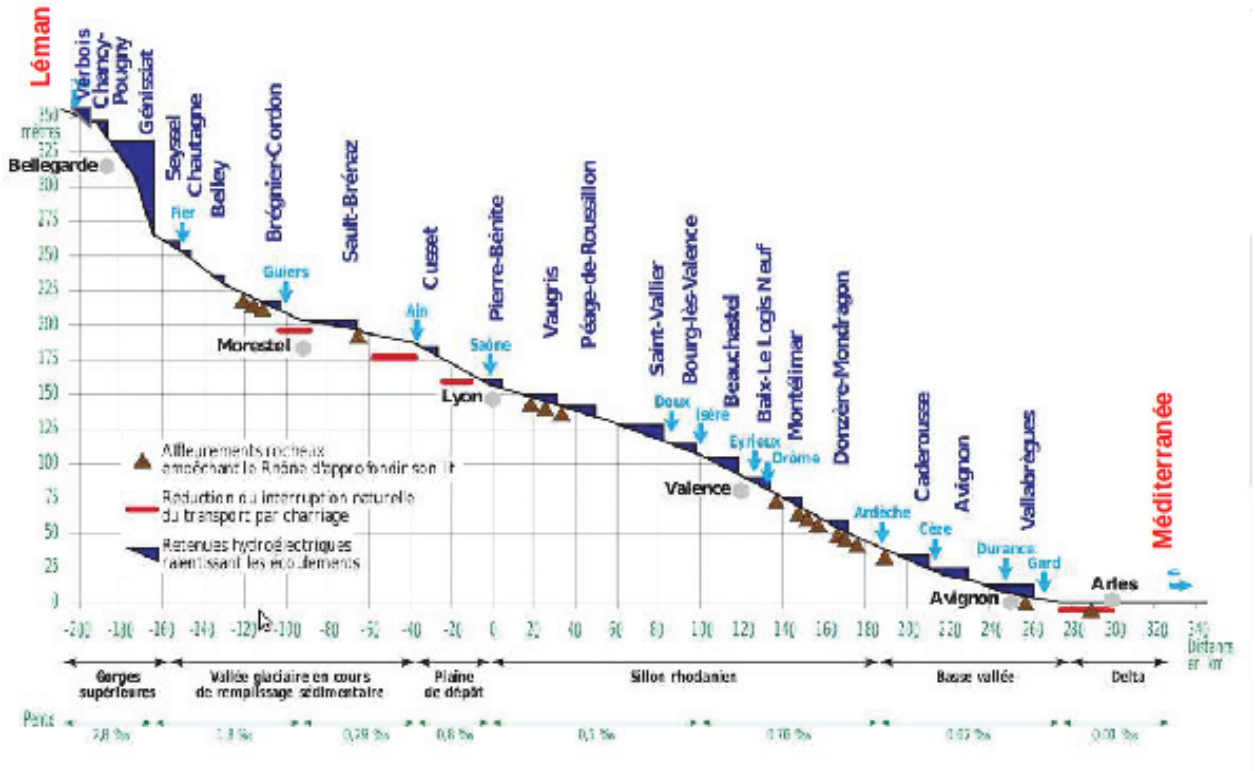


FIGURE 3 – Localisation des aménagements hydro-éléctriques sur le Haut-Rhône. Source CNR (CNR, 2012)

solides par charriage et par suspension pour les principaux affluents du bassin versant, en se basant sur des données issues de la littérature. Selon cette étude, qui fait référence à l'heure actuelle, les quatre affluents les plus contributeurs au flux de MES du Rhône sont l'Arve (1 à 3,6 Mt/an), la Saône (1,5 à 3 Mt/an), l'Isère (3,5 Mt/an) et la Durance (1,8 Mt/an). En termes d'apports en matières en suspension, l'Arve, seul affluent alpestre en aval du Léman et principale source de MES au Haut-Rhône, a fait l'objet de plusieurs publications depuis la fin du 19ème siècle (Baëff, 1891; Collet *et al.*, 1916; Hydratec, 2003).

5 Le Rhône, un fleuve pollué ?

5.1 Suivi et études de la contamination

Le Rhône est soumis à de nombreuses pressions polluantes associées aux industries situées le long du corridor rhodanien et des affluents, notamment de l'Isère, à la présence de l'aire urbaine de Lyon qui concentre un quart de la population du bassin versant, au réseau de transport important avec notamment un intense trafic fluvial de marchandises, à la production d'énergie nucléaire avec

l'installation de quatre centrales sur ses rives, mais aussi des pressions associées à l'agriculture apportées au Rhône par la Saône. Différentes études ont montré que le Rhône transporte une grande variété de contaminants associés aux matières en suspension (Cossa et Martin, 1991; Tronczynski et Héas-Moisan, 1996; Radakovitch *et al.*, 2008; Sicre *et al.*, 2008; Antonelli, 2010; Castelle, 2010; Ollivier *et al.*, 2011; Eyrolle *et al.*, 2012; Cossa, 2012; Tronczynski et Tixier, 2012).

Les études menées sur les contaminants particulaires du Rhône portent sur les éléments traces (Radakovitch *et al.*, 2008), les éléments traces et majeurs (Ollivier *et al.*, 2011), les éléments radioactifs (Antonelli, 2010; Eyrolle *et al.*, 2012), le mercure (Cossa et Martin, 1991; Castelle, 2010; Cossa, 2012) et les contaminants organiques (Sicre *et al.*, 2008; Tronczynski et Héas-Moisan, 1996; Cossa, 2012; Tronczynski et Tixier, 2012). Ces études se basent sur des données de concentrations en MES et de teneurs en contaminants collectées avec une haute fréquence de mesure, typiquement avec des pas de temps variant de 1 à 15 jours selon les événements hydrologiques et la taille des bassins versants.

Les données collectées au cours de ces études améliorent la connaissance des processus qui régissent le transport des contaminants particulaires et des variations temporelles des concentrations à l'échelle annuelle ou à l'échelle d'un événement (Ollivier *et al.*, 2011). C'est par exemple le cas des travaux menés par Castelle (2010), Cossa (2012) ou Eyrolle *et al.* (2012) dans le cadre du projet EXTREMA, dédié à l'analyse des conséquences d'épisodes météo-climatiques extrêmes (Eyrolle, 2010). Les flux de matière en suspension, de mercure, de contaminants organiques persistants et de radionucléides associés à ces événements se sont révélés largement supérieurs à ceux qui résultent des processus de transferts moyens et sont souvent équivalents aux flux cumulés sur plusieurs mois, voire plusieurs années en régime de base (hors crue). Dutordoir *et al.* (2012) et Minaudo (2011) présentent des données collectées sur les contaminants particulaires de l'Isère. Ils étudient notamment les relations entre les teneurs en contaminants particulaires et les flux de MES au cours de la crue de mai 2008.

Ces différentes études sont en général le fruit de suivis fins des teneurs en contaminants sur de courtes périodes et à des échelles géographiques réduites à cause du coût et des difficultés techniques de mise en place qu'ils impliquent. Depuis 2005 sur le Rhône aval, un effort d'échantillonnage particulier a été mené avec la mise en place de la Station Observatoire du Rhône à Arles (SORA). Opérée par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), elle est équipée pour la mesure des concentrations dissoute et particulaire en radioéléments, nutriments et contaminants chimiques ; depuis 2008, elle permet le calcul de bilans de flux de MES et de contaminants chimiques (Antonelli, 2010). Le développement de ce type de suivi à plus long terme en différents points du bassin versant du Rhône est devenu une nécessité pour quantifier les flux de MES et de contaminants associés et pour étudier leur dynamique.

Les données collectées quotidiennement à SORA depuis 2005 ont permis d'établir que le Rhône déverse en moyenne 9,6 Mt de matières en suspension (MES) par an dans la Méditerranée (Eyrolle *et al.*, 2012; Delmas *et al.*, 2012). Ce flux représente près de 60 % des exports de particules du territoire français vers la mer, faisant du Rhône un important contributeur de MES à la Méditerranée. Eyrolle *et al.* (2012) ont montré l'importance des crues dans le transit des sédiments du Rhône vers la mer à travers l'étude de vingt événements de crue survenus entre 2001 et 2008. La crue de décembre 2003 (de fréquence de retour supérieure à 50 ans) aurait produit près de 5 Mt de MES en six jours (Ollivier *et al.*, 2010; Eyrolle *et al.*, 2012).

Sur le bassin versant du Rhône, l'Agence de l'eau Rhône-Méditerranée & Corse (AERMC) a mis en place le réseau de suivi Eau et MES entre 1991 et 2009 (AERMC, 2009). Les 17 stations composant ce réseau ont fait l'objet de prélèvements d'eau et de MES à raison de quatre fois par an pour rechercher plus de 600 substances. Ces données sont bancarisées et disponibles sur internet [15]. Le premier objectif du réseau était d'acquérir une vision globale de l'état des cours d'eau aux stations considérées, et le jeu de données collecté constitue une intéressante base pour évaluer les tendances des contaminations sur les vingt dernières années. La question de l'utilisation de ces données pour calculer des flux de contaminants particulaires avec une incertitude acceptable a fait l'objet de trois études par IPL (2009), Roux (2011) et Linne (2011). Les limites pointées par ces études concernent majoritairement la fréquence d'échantillonnage, trop faible pour mesurer les variations liées au cycle hydrologique, et certaines discontinuités des protocoles d'analyse chimique qui compliquent l'interprétation des données. Pour améliorer le réseau de mesure, de prélèvement et d'analyse en vue de calculer des flux de contaminants, les auteurs suggèrent notamment de disposer d'une mesure en continu des débits et des concentrations en MES, et de mettre en place un échantillonnage temporel des teneurs en contaminant, centré sur les évènements hydrologiques majeurs.

Depuis 2009, la création de l'Observatoire des sédiments du Rhône (OSR [16]) a permis le développement d'un réseau de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires sur le Rhône. L'OSR est une plate-forme de recherche pluri-partenariale créée en 2009, dont la vocation est de produire sur le long terme des connaissances scientifiques interdisciplinaires permettant de mieux comprendre la dynamique sédimentaire du Rhône et d'éclairer les opérateurs publics. L'OSR produit et collecte des données quantitatives permettant de caractériser les flux de matière, les stocks sédimentaires et les pollutions associées. L'objet d'étude de l'OSR est la vallée du Rhône, du Léman à la Méditerranée.

15. http ://sierm.eaurmc.fr/telechargement/telechargement.php
16. http ://www.graie.org/osr/

5.2 Le mercure dans le Rhône

Le rapport UNEP/MAP/MED (2003) souligne que la distinction entre la part naturelle et la part anthropique de la contamination constitue la principale difficulté des études environnementales sur les métaux lourds. Le fond géochimique de mercure est très variable en fonction de la géologie de la région. Pour le bassin versant du Rhône, cet exercice est compliqué par une géologie complexe, puisque le Rhône draine une partie des Alpes en rive gauche et une partie du Jura, des Vosges et du Massif Central en rive droite. L'inventaire géochimique mené par le bureau de recherches géologiques et minières (BRGM[17]) pour le bassin Rhône Méditerranée Corse est présenté dans les rapports Sonney *et al.* (2005a) et Sonney *et al.* (2005b). L'objectif était d'identifier les zones à risque de teneurs naturelles élevées en éléments traces dans les eaux de surface et les eaux souterraines. Pour le mercure dans les MES, AERMC (2004) considère que plusieurs stations de mesure situées sur le Rhône mettent en évidence une pollution du fleuve par le mercure, par comparaison avec le fond géochimique. Les cours d'eau identifiés sont le Rhône à l'aval de Genève (concentrations dans la fraction particulaire : environ 1 μg/L), le Gland, un affluent du Doubs (0,58 μg/g dans les bryophytes), le Drac (0,6 μg/g dans les bryophytes), l'Isère à Grenoble (concentrations dans la fraction particulaire : 0,96 μg/L), la Durance à l'aval des Mées (jusqu'à 1,25 μg/g dans les bryophytes) et l'Orb à Béziers (concentrations dans la fraction particulaire : 0,29 μg/L).

Les rapports Sonney *et al.* (2005a) et Sonney *et al.* (2005b) indiquent que le risque de trouver des zones à risque de fond géochimique en mercure élevé est très faible sur le bassin versant. Seules les roches basiques et ultrabasiques du massif de Belledonne sont identifiées formellement comme contenant des filons de mercure. Ils en concluent que les fortes concentrations en mercure retrouvées aux différentes stations ont probablement une origine anthropique. La pollution atmosphérique est également identifiée comme un acteur important dans la contamination des eaux du bassin, avec des concentrations en mercure mesurées dans les pluies allant jusqu'à 1,7 μg/L (Sonney *et al.*, 2005a).

Parmi les sources connues de mercure sur le bassin versant, les usines de production de chlore, qui utilisent du mercure dans leur procédé industriel, sont fortement ciblées par l'association France Nature Environnement (FNE[18]). Il s'agit des sites Arkema à Jarrie dans l'Isère (cours d'eau : Drac, affluent de l'Isère), Arkema à Lavéra dans les Bouches-du-Rhône (à proximité de l'étang du Berre et de la côte méditerranéenne), Solvay Electrolyse à Tavaux dans le Jura (cours d'eau : Doubs). L'usine Arkema de Saint-Auban a été condamnée pour la pollution de la Durance au mercure, au chlore et aux solvants chlorés, de 2003 à 2005, et l'abandon de déchets dans les eaux (Alpes-de-Haute-Provence)[19] ; elle est actuellement en cours de démantèlement. Ces sites ont des capacités

17. http ://www.brgm.fr/
18. http ://www.fne.asso.fr
19. http ://www.journaldelenvironnement.net/article/arkema-condamnee-pour-pollution-de-la-durance,27989

de production très différentes, les plus importantes étant Arkema à Lavera et Solvay Electrolyse à Tavaux.

Les teneurs en mercure particulaire du Rhône peuvent être jusqu'à dix fois supérieures aux teneurs mesurées dans les cours d'eau considérés comme propres tels que l'Ob ou la Iénisseï (Cf. Tab. 3). Castelle (2010) montre que les teneurs en mercure dans les MES du Rhône à Arles ont diminué d'un facteur 3 en 15 ans, passant de 0,481 mg/kg en 1994-95 à 0,18 mg/kg en 2009-10. Les concentrations actuelles classent le Rhône parmi les grands fleuves urbanisés de France les moins contaminés en mercure. Pour l'année 2010-2011, Cossa (2012) indiquent que les teneurs en mercure mesurées à Arles sont en continuité avec celles de l'année précédente. Au cours de l'année 2009, les concentrations en mercure particulaire ont peu évolué, mais montrent une légère tendance à la baisse quand la concentration en MES diminue (Castelle, 2010). Un phénomène de dilution semble se produire alors, avec l'arrivée de particules moins chargées. Le flux de mercure particulaire du Rhône à Arles pour l'année 2009 est estimé à 0,144 t/an sur la base de concentrations bimensuelles (Castelle, 2010), ce qui correspond à 92 % du flux total de mercure passé à Arles.

Santiago *et al.* (1993) fait état de teneurs en mercure de l'ordre de 0,44 mg/kg dans les sédiments prélevés dans la Saône à Lyon en novembre 1989. Rappelons que les sols contiennent naturellement entre 0,03 et 0,15 mg/kg en fonction de la roche dont ils sont issus (Cf. Tab. 3). Toujours selon Santiago *et al.* (1993) sur la même période, les concentrations en mercure dans les sédiments du Rhône étaient de l'ordre de 0,20 mg/kg à Pougny sur le Haut-Rhône, de 0,90 mg/kg à Lyon avant la confluence avec la Saône, de 0,49 mg/kg à Chasse sur Rhône en aval de la confluence Rhône/Saône et de 0,39 mg/kg à Arles. La concentration mesurée pour la Saône apparaît donc comme moyenne au regard des autres concentrations. Sonney *et al.* (2005b) indiquent, comme pour le reste du bassin du Rhône, que rien ne permet de penser que le fond géochimique de la Saône puisse être élevé. Il est donc probable qu'une source de mercure anthropique soit également présente sur le bassin versant de la Saône.

Les teneurs en mercure mesurées dans les MES et les sédiments d'une dizaine de cours d'eau suisses sont proches du fond géochimique et ne mettent pas en évidence une contamination par le mercure (Pardos *et al.*, 2003). En revanche, Vernet et Scolari (1976) indiquent qu'à cette époque, le mercure est un contaminant majeur dans la zone en aval du Léman. A l'aplomb de Chancy, ils notent que la teneur en mercure mesurée dans la fraction < 63 μm des sédiments est passée de 0,20 mg/kg à 0,30 mg/kg entre 1978 et 1979. Pour 1979, les auteurs estiment que 1 à 3 kg de mercure sont rejetés chaque jour par le Rhône amont dans le Léman et ciblent notamment les stations d'épuration comme sources de pollution.

5.3 Les PCB dans le Rhône

En France, la pollution du Rhône par les PCB a fait l'objet d'un soulèvement médiatique important. Citons par exemple ce dossier de presse du WWF paru le 19/09/2007 et intitulé "Pollution du Rhône au PCB - Un Tchernobyl à la Française" (WWF, 2007). Les premières inquiétudes sont apparues dans les années 80, suite à l'installation de l'usine d'élimination des PCB TREDI à Saint Vulbas le long du Rhône. En 1985, une pollution par les PCB est identifiée dans le Rhône avec des valeurs dans les poissons 2 à 3 fois supérieures à la norme de 2 000 ng/g poids frais alors en vigueur (Monod *et al.*, 1990). La FRAPNA dépose alors une plainte contre X pour pollution du Rhône par les PCB (WWF, 2007). Début 2005, des analyses menées par un pêcheur professionnel ont révélé des teneurs élevées en PCB dans des poissons prélevés dans le canal de Jonage. Un premier arrêté préfectoral est pris en septembre 2005 pour interdire la commercialisation et la consommation des poissons pêchés dans le canal de Jonage, un bras du Rhône bordant les communes de Meyzieu et Décines, et le plan d'eau du Grand Large. Cet arrêté est étendu en 2007 par les préfets de l'Ain, de l'Isère et du Rhône à une zone d'une centaine de kilomètres, depuis le barrage de Sault-Brénaz dans l'Ain, à 55 kilomètres à l'est de Lyon, jusqu'à celui de Vaugris au sud de Vienne dans l'Isère. Début 2007, le préfet coordonnateur de bassin a mis en place une stratégie de pilotage coordonnée à l'échelle du bassin. Les recherches, qui se sont poursuivies dans ce cadre, ont révélé un taux de PCB supérieur aux seuils réglementaires sur tout le linéaire du Rhône, du barrage de Sault-Brenaz (Ain) jusqu'à la mer. Ces résultats ont conduit les préfets de département concernés à interdire la consommation de poisson sur l'ensemble du linéaire (Brunet, 2007; Préfecture Rhône-Alpes, 2010).

La quantification des PCB fait l'objet d'une attention particulière depuis une vingtaine d'année sur le Rhône. D'après Tronczynski et Héas-Moisan (1996), le Rhône fait partie des zones industrialisées moyennement contaminées par les composés organochlorés. L'association Robin des bois [20] a recensé pour l'ensemble du territoire français les sites industriels et les accidents en lien avec la dispersion de PCB dans l'environnement. Dans la version d'avril 2013 de l'atlas, l'association compte pour le bassin versant du Rhône 5 sites de production, 11 sites de regroupement, de maintenance et d'élimination, 89 sols ou remblais pollués et 26 pillages, soit 133 sites pollués. Les sites de production sont Arkema, producteur de pyralène à Jarrie (Isère), Rhodia Chimie, producteur de pyralène au Pont-de-Claix (Isère), Jeumont-Schneider-Transformateurs, fabricant de transformateurs à Lyon (Rhône), Areva, fabricant de transformateurs à Aix-les-bains (Savoie) et Rectiphase, (groupe Schneider Electric) fabrication de condensateurs à Pringy (Haute-Savoie).

20. http ://www.robindesbois.org/PCB/pollution-pcb.html

L'usine Trédi a souvent été soupçonnée d'être responsable de la pollution du Rhône par les PCB. Le rapport de Fruget *et al.* (2010) rappelle que cette usine détruit depuis 1986 plusieurs milliers de tonnes de PCB par an. Le procédé employé est une incinération à haute température (1 100 °C) suivie d'un refroidissement brutal, nécessitant une consommation d'eau importante. Dès les années 90, un contrôle très strict et systématique de la teneur des rejets en PCB a été mis en place. Les analyses quotidiennes montrent que le rejet moyen annuel de PCB au Rhône s'est maintenu autour de 1 kg/an jusqu'en 2007 et s'est limité à 100 g/an depuis. La société Trédi Saint Vulbas a effectué des analyses de PCB, de dioxines et de furanes sur les MES et les sédiments du fond (Fruget *et al.*, 2010). Les MES ont été collectées par centrifugeuse à l'occasion de quatre campagnes de prélèvement entre 2008 et 2009. Les sédiments du fond ont été collectés avec une benne à sédiments au cours de huit campagnes entre 2006 et 2009. Les campagnes de mesures ont été réalisées en amont et en aval du point de rejet de l'usine dans le Rhône amont au niveau des sites de Lucey, Loyettes, Montalieu, Massignieu, Proulieu et Saint Vulbas et sur le Séran, affluent qui n'est a priori pas soumis à une contamination et qui permet de fournir un échantillon dit de "référence point zéro". Les échantillons collectés ont été séchés à l'air libre, broyés au pilon, conditionnés dans des bocaux en verre et envoyés au laboratoire CARSO pour analyser les PCBi, PCB-DL, dioxines et furannes par spectrométrie de masser haute résolution. Les données sont fournies et discutées dans le rapport Fruget *et al.* (2010). Les campagnes de prélèvements réalisées par Fruget *et al.* (2010) en 2008-2009 ont montré que le flux de PCB circulant dans le Rhône en aval du rejet est compris entre 3 et 12 kg/an. La contribution globale du rejet de l'usine TREDI Saint Vulbas est donc inférieure à 3 % des PCB véhiculés par le fleuve.

Tronczynski et Tixier (2012) soulignent que la stabilité des teneurs en PCB dans les MES du Rhône sur la période 1994-2010 (Cf.Tab. 5), alors qu'un autre composé organique étudié, le pp' DDE a vu sa teneur diminuer de moitié sur la même période. Cela pourrait indiquer qu'un important stock de PCB est présent dans les sédiments du Rhône et/ou que le bassin versant est soumis à des apports constants en PCB. Une étude menée en novembre 1989 par Santiago *et al.* (1993) présente les concentrations en PCB totaux mesurés dans les MES du Rhône de l'amont vers l'aval entre Bouveret (amont du Léman) et Arles, en incluant la Saône à Lyon. Les teneurs relevées sont inférieures à la limite de quantification en amont de Pougny sur le Haut-Rhône, de l'ordre de 90 ng/g à Pougny, de 114 ng/g à Lyon avant la confluence avec la Saône, de 226 ng/g dans la Saône à Lyon, de 1115 ng/g à Chasse sur Rhône en aval de la confluence Rhône/Saône et de 631 ng/g à Arles. La valeur mesurée dans le Rhône à Lyon est en accord avec les valeurs mesurées par Fruget *et al.* (2010). La teneur mesurée dans la Saône est deux fois plus importante que celle mesurée dans le Rhône à Lyon. La concentration mesurée à Chasse sur Rhône apparaît très élevée, au regard des concentrations mesurées dans le Rhône et la Saône avant leur confluence. Cette étude, menée sur

seulement un mois, offre toutefois une vision sur l'ensemble du Rhône, de l'amont vers l'aval, des teneurs en PCB.

Entre 2008 et 2009, des carottes sédimentaires ont été prélevées par l'ENTPE en quatre sites sur le Rhône à l'amont et à l'aval de Lyon : la lône de la Morte, la retenue du Grand Large, la darse de Crépieux et la lône de l'Ile-du-Beurre. L'objectif était d'étudier la contamination historique en PCB de ces sites (Desmet *et al.*, 2012). Cette étude a mis en évidence le pic historique de contamination au PCB dans les sédiments du Rhône à la fin des années 1970.

6 Objectifs et démarche scientifique

Dans cette thèse, nous cherchons à faire progresser la connaissance des flux de MES et de contaminants particulaires au sein du Rhône. Cette connaissance est actuellement limitée par le manque de données d'observation à haute résolution spatio-temporelle dont l'acquisition est freinée par des verrous technologiques et méthodologiques importants. Ce manque de données empêche d'estimer et d'interpréter les flux de contaminants particulaires de façon robuste. Les processus intervenant dans la dynamique des flux et des phases porteuses ne sont également pas identifiés, ce qui restreint les possibilités de reconstituer et modéliser les flux et processus hydro-sédimentaires et chimiques en rivière.

L'enjeu de cette étude est donc de contribuer à lever ces principaux verrous scientifiques identifiés pour l'estimation des flux de MES et de contaminants particulaire. Les objectifs généraux de la thèse sont les suivants :

- l'étude de la variabilité temporelle et spatiale des concentrations en MES et des teneurs en contaminants sur le Rhône et ses principaux affluents, et l'identification des paramètres qui contrôlent ces variations,
- la quantification des flux de MES et de contaminants associés,
- l'identification et la hiérarchisation des sources d'incertitudes associées au calcul de flux de contaminants particulaires et la quantification de ces incertitudes,
- l'étude des variations spatiales et temporelles des flux de MES et de contaminants particulaires à l'échelle du réseau hydrographique,
- le développement de la modélisation des processus hydro-sédimentaires au sein d'un réseau hydrographique très artificialisé.

La zone d'étude considérée est le Rhône entre la sortie du Léman, où la concentration en MES peut être supposée nulle, et la Méditerranée, afin de quantifier les flux à la mer. Les apports des

affluents majeurs que sont l'Arve, la Saône, l'Isère et la Durance sont également étudiés pour proposer une évaluation des flux particulaires à l'échelle du Rhône.

Ce travail s'appuie sur le réseau de mesure de l'OSR, qui permet de mesurer les flux de MES et de suivre à haute fréquence l'évolution temporelle des teneurs en contaminants au niveau des principaux points clé du réseau hydrographique de la zone d'étude. Un suivi plus détaillé est effectué sur le Haut-Rhône, dont le réseau de mesure, développé dans le cadre de cette thèse, permet depuis 2011 de mesurer en continu les flux de MES et de suivre les teneurs en contaminants sur cette partie du bassin versant.

Etant donné son importance dans le calcul du flux de contaminants particulaires, la connaissance fine de la variabilité du flux de MES représente un atout majeur. Les chroniques continues de MES produites par le réseau de mesure constituent un jeu de données intéressant pour étudier les processus mis en œuvre et établir la méthode de calcul la plus adaptée pour les années antérieures, pour lesquelles seules des données discrètes sont disponibles. Une fois les flux de MES établis avec une incertitude acceptable, il devient pertinent de s'intéresser aux variations des teneurs en contaminants et aux mécanismes qui les contrôlent. La méthode la plus à même de fournir des flux de contaminants particulaires fiables doit en effet prendre en compte ces variations.

Ce manuscrit est constitué de sept chapitres :

1. un état de l'art de la quantification des flux de MES et de contaminants particulaires dans lequel sont présentés les paramètres constituant les flux, les méthodes existantes pour les calculer et les sources d'incertitudes identifiées ;
2. le détail des techniques utilisées sur le Rhône et ses affluents pour mesurer les trois paramètres du flux de contaminants particulaires : le débit, la concentration en MES et la teneur en contaminants particulaires ; certaines de ces techniques ont fait l'objet de développement et de validation spécifiques dans le cadre de cette thèse ;
3. la présentation du réseau de mesure et des données disponibles à différentes échelles de temps et d'espace. La qualité du jeu de données collectées est évaluée dans cette partie afin d'appréhender son potentiel et ses limites pour l'étude des flux particulaires ;
4. l'étude de la variabilité spatio-temporelle des débits, concentrations en MES et teneurs en contaminants, débouchant notamment sur la justification du choix des méthodes de calcul des flux des MES et des contaminants particulaires utilisées pour les situations où un suivi continu n'est pas disponible ;

5. l'interprétation des flux de MES, de PCB et de mercure obtenus dans le Rhône et ses principaux affluents lors de deux événements hydrosédimentaires importants, la crue de mai-juin 2008 et les chasses de juin 2012, puis à l'échelle annuelle et pluriannuelle, dont des essais d'analyse spatiale pour évaluer le flux de MES ;
6. une contribution à la modélisation des processus hydro-sédimentaires observés dans le Rhône, et en particulier le paramétrage du coefficient de dispersion longitudinale (article soumis), la représentation des aménagements et le paramétrage sédimentaire, avec la prise en compte de la granulométrie ;
7. Enfin, une conclusion générale et les perspectives de ce travail.

1 Quantification des flux particulaires : état de l'art

1.1 Introduction

Ce premier chapitre présente un état de l'art des connaissances en matière de quantification des flux de MES et de contaminants particulaires. Il a pour objectif de définir le flux de contaminants particulaires. Les différentes méthodes utilisées dans la littérature pour calculer les flux de MES et de contaminants particulaires à partir de mesures discontinues sont présentées et discutées dans cette partie. Nous recensons également les pratiques courantes d'expression des teneurs en contaminants et les méthodes classiques de normalisation des teneurs. La bonne compréhension de ces derniers points est en effet nécessaire pour interpréter les résultats concernant les contaminants et pour comparer les données produites avec celles de la littérature. Enfin, nous identifions les sources d'incertitude associées au calcul du flux de contaminants particulaires et, en se basant sur des valeurs trouvées dans la littérature, nous proposons une hiérarchie de ces sources d'incertitude.

Nota : les dimensions des paramètres apparaissant dans les équations sont indiquées plutôt que leurs unités. Elles sont indiquées entre crochets, à l'aide des lettres M pour masse, L pour longueur et T pour temps.

1.2 Définitions et principes des observations

1.2.1 Définition du flux particulaire et des particules considérées

Dans cette thèse, nous nous intéressons aux flux de contaminants transportés par les matières en suspension en rivière. Plusieurs types de particules solides se déplacent dans un cours d'eau en fonction de la position à laquelle on se place dans la section. Les particules les plus grossières (graviers et sables grossiers) se déplacent par charriage sur le fond du cours d'eau (bedload), les sables plus fins se déplacent en suspension juste au dessus du lit sous l'effet d'un fort gradient vertical (sus-

pended load) et les particules les plus fines (argiles et limons) sont en suspension dans la colonne d'eau (washload). Le washload concerne la plus grande partie de la section et on peut considérer une certaine homogénéité dans la répartition des particules dans la colonne d'eau. Il a été établi par de nombreux auteurs (Abarnou *et al.*, 1987; Pignatello et Xing, 1996; Horowitz, 2008; Jambon et Thomas, 2009; Lick, 2009) que les particules les plus fines (argiles et limons) sont les principales porteuses de contamination organique hydrophobe et métallique adsorbable (dont le mercure). Dans la suite de ce travail, le terme de matières en suspension (MES) fera donc référence aux particules fines qui se déplacent de façon homogène en suspension dans la colonne d'eau, c'est-à-dire au washload. D'un point de vue pratique, ces particules correspondent à celles que nous échantillonnons à proximité de la surface de l'écoulement, dont la granulométrie est potentiellement variable selon les événements.

Dans la littérature, le concept de flux de MES est utilisé pour désigner un flux homogène au sein de la section, mais il n'existe pas de consensus large autour de la définition précise des particules concernées par l'établissement de ce flux. De plus, cette définition n'est pas toujours clairement explicitée dans les publications. Dans certains cas, le flux de MES établi correspond au flux de suspension totale, i.e. au washload et au suspended load, et inclut donc les sables en suspension hétérogène. Dans d'autres cas, le flux de MES ne prend en compte que le washload. Selon la problématique étudiée, il est capital de ne pas confondre les deux flux qui correspondent à des populations sédimentaires très différentes en termes de granulométrie, d'affinité pour les contaminants hydrophobes, et de comportement mécanique (cohésion, transport, dépôt et resuspension).

Les flux de MES et de contaminants particulaires étudiés dans ce travail se rapportent uniquement aux fines particules en suspension dans la section (washload) et aux contaminants transportés par ces particules, reconnues comme les principales porteuses de contamination. Il est primordial que les particules échantillonnées pour établir les teneurs en contaminants soient les mêmes particules, i.e. les mêmes caractéristiques (granulométrie, composition), que les particules considérées lors de la mesure de la concentration en MES.

La répartition des contaminants entre la phase particulaire et la phase liquide est le résultat d'échanges (sorption et désorption) des molécules pour atteindre un équilibre thermodynamique dans chaque phase. La sorption des molécules met en jeu deux processus, l'absorption et l'adsorption (Tronczynski *et al.*, 1999).

Dans le cas de l'**absorption**, les molécules entrent dans la particule et se lient à elle. Ce partage dépend de la masse ou du volume des particules solides et de leur composition. Les liaisons établies sont en général des forces faibles de type forces de Van der Waals. Les composés hydrophobes comme

les PCB se lient préférentiellement à la matière organique qui compose la particule et cette affinité, liée au caractère hydrophobe de la molécule, est plus marquée pour les PCB lourds, qui comportent un grand nombre d'atomes de chlore (Pignatello et Xing, 1996). Abarnou *et al.* (1987) précisent que la matière organique présente dans les MES domine les processus de sorption-désorption des composés hydrophobes, et que la taille des particules a moins d'influence. Dans le cas du mercure, l'affinité pour la matière organique est due à des liaisons fortes entre le soufre présent dans la matière organique et le mercure (Jambon et Thomas, 2009).

Dans le cas de l'**adsorption**, les molécules se fixent à la surface de la particule. C'est ici la surface d'échange qui gouverne le partage (Pignatello et Xing, 1996). Pour des particules sphériques, la surface spécifique S_s [L^{-1}], i.e. le rapport de la surface S [L^2] sur le volume V [L^3] , est proportionnelle à l'inverse du diamètre D [L] :

$$S_s = \frac{S}{V} = \frac{6\pi D^2}{\pi D^3} = \frac{6}{D} \tag{1.1}$$

Par conséquent, pour une même masse de particules, un ensemble de particules fines offre donc une plus grande surface qu'un ensemble de particules plus grossières. Pour les particules petites, le processus d'adsorption est donc plus important que pour les particules grossières. Jambon et Thomas (2009), Pierard *et al.* (1996), Horowitz (2008) et Lick (2009) observent une teneur massique en contaminants plus élevée dans les particules fines que dans les limons et les sables. La teneur en contaminants dans les MES analysées est donc susceptible de varier suivant la distribution granulométrique de l'échantillon et la teneur en matière organique des MES. L'étude des caractéristiques des particules, en particulier leur granulométrie et leur teneur en carbone organique, apparaît donc comme un point clé pour interpréter les flux de contaminants particulaires.

Le flux au temps t de contaminant particulaire $\phi_c(t)$ [MT^{-1}] à travers une section transversale A [L^2] de rivière est évalué par intégration du produit des vitesses $v(y,z,t)$ [LT^{-1}], des concentrations en MES $c_s(y,z,t)$ [ML^{-3}] et des teneurs en contaminants des particules $c_c(y,z,t)$ [MM^{-1}] en tout point (y,z) de la section :

$$\phi_c(t) = \int_A v(y,z,t)\ c_s(y,z,t)\ c_c(y,z,t)\ dA \tag{1.2}$$

Et sur une période de temps (t_1, t_2) le flux cumulé Φ_c [M] correspond à l'intégration dans le temps des flux instantanés :

$$\Phi_c = \int_{t_1}^{t_2} \phi_c^{(t)}\ dt = \int_{t_1}^{t_2} \int_A v(y,z,t)\ c_s(y,z,t)\ c_c(y,z,t)\ dA\ dt \tag{1.3}$$

Pour pouvoir discrétiser cette équation, nous nous trouvons confrontés aux questions de l'hétérogénéité des concentrations en MES et des teneurs en contaminants au sein de la section, et de la variabilité spatio-temporelle des vitesses, des concentrations en MES et des teneurs en contaminants.

Sous hypothèse d'uniformité spatiale de la concentration en MES C_s et de la teneur en contaminant C_c, le flux Φ_c peut s'exprimer en fonction du débit $Q(t) = \int_A v(y,z,t)dA$:

$$\Phi_c = \int_{t_1}^{t_2} Q(t)\ C_s(t) C_c(t)\ dt \tag{1.4}$$

Enfin, si la mesure du débit, de la concentration en MES et des teneurs en contaminants permet de tenir compte des variations temporelles de chaque paramètre, i.e. si le pas de temps de mesure est inférieur au rythme de leurs variations temporelles, alors le flux de contaminant particulaire au sein d'une section de mesure peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\Phi_c = \sum_{i=1}^{N} \Phi_{c,i} = \sum_{i=1}^{N} Q_i\ C_{s,i}\ C_{c,i}\ T_i \tag{1.5}$$

avec Q_i le débit d'eau, $C_{s,i}$ la concentration massique en MES, $C_{c,i}$ la teneur en contaminant par masse de MES sèches, évalués en moyenne sur la sous-période de temps T_i.

1.2.2 Principe de mesure des trois paramètres du flux particulaire

1.2.2.1 Le débit

Le débit correspond à l'intégration de la vitesse de l'écoulement sur la section. Comme la vitesse n'est pas uniforme au sein d'une section de rivière, sa connaissance en tout point de la section est nécessaire pour établir le débit.

La méthode classique d'exploration du champ des vitesses au sein d'une section emploie un moulinet, constitué d'une hélice montée sur une perche. Une relation entre la vitesse de rotation de l'hélice et la vitesse du courant est calibrée par le constructeur. Le micro-moulinet est utilisé pour les petites rivières, et pour les cours d'eau plus importants, le moulinet est fixé sur un saumon (lest) en forme d'ogive. L'exploration du champ des vitesses se fait en positionnant l'appareil à différentes profondeurs le long de verticales choisies pour bien documenter la section. La mise en œuvre de cette méthode est souvent fastidieuse, il faut au moins une demi-heure et jusqu'à plusieurs heures pour effectuer le jaugeage sur une section, et le champ de vitesses obtenu n'est pas continu. Le débit est alors obtenu par interpolation des vitesses entre les points de mesure, puis par intégration sur la section.

Le développement des techniques de mesure acoustiques facilite désormais la connaissance des vitesses en quasiment tout point de la section. L'utilisation d'ADCP (acoustic Doppler current pro-

filers) montés sur une embarcation s'est en effet considérablement développée au cours des dernières années pour mesurer les débits, notamment grâce à leur fiabilité et rapidité. Cette technique, basée sur l'enregistrement de la rétrodiffusion acoustique renvoyée par les particules transportées par le cours d'eau, permet d'obtenir le champ de vitesses à travers la section de mesure. L'intensité rétrodiffusée mesurée par ADCP est également considérée comme un indicateur acceptable des concentrations de MES et la recherche se porte actuellement sur des méthodes permettant d'utiliser cette mesure pour déduire les concentrations en MES au sein de la section (Kostaschuk *et al.*, 2005; Moore, 2011; Moore *et al.*, 2012, 2013).

La connaissance en continu de la vitesse en tout point de la section reste néanmoins exceptionnelle et il est plus courant de disposer de la mesure du débit en continu, déterminé au niveau des stations hydrométriques généralement par utilisation d'une courbe de tarage reliant le débit à la hauteur d'eau et établie à partir de jaugeages. La hauteur d'eau peut être mesurée en continu à l'aide de capteurs ultrason par exemple. La mesure du débit est alors donnée pour l'ensemble de la section de mesure.

Sur le Rhône et ses affluents, il existe un réseau de stations hydrométriques suffisamment dense et fiable, avec acquisition des niveaux d'eau au pas de temps variable adaptatif. Différents producteurs rendent disponibles ces données : CNR, DREAL Rhône-Alpes, SPC-Grand Delta [1], EDF, SIG, OFEV. Si le pas de temps moyen journalier est inadapté, le pas de temps moyen horaire est souvent un bon compromis entre la taille des fichiers de données à manipuler et la résolution temporelle suffisante. Le pas de temps instantané variable (adaptatif) permet la description la plus fine des événements les plus importants. La plupart des stations hydrométriques sur le Rhône et les affluents fonctionnent sur le principe d'une courbe de tarage (relation niveau-débit construite à l'aide de jaugeages), mais un certain nombre de stations situées dans des tronçons influencés par les aménagements aval fonctionnent avec une courbe de tarage à deux niveaux. C'est le cas de la Saône à Lyon, où la cote est influencée par la présence de la retenue de Pierre Bénite à l'aval. Une relation hauteur-débit double entrée a donc été établie à Couzon (une vingtaine de kilomètres en amont). Cette relation est constituée d'une multitude de relations hauteur-débit selon le niveau de la retenue de Pierre Bénite.

Il n'existe pas toujours de station hydrométrique à proximité immédiate de la station de suivi des flux particulaires considérée. C'est typiquement le cas de la station du Rhône à Jons, ainsi que le cas de différents affluents. Pour calculer les flux, on peut alors modéliser le débit à la station, à partir des points de mesure situés en amont, ou en aval, et en tenant compte du temps de propagation hydraulique. A défaut, on peut établir des relations empiriques entre les deux stations. Dans le cas

1. Service de prévision des crues

de la station de Jons, les stations hydrométriques les plus proches sont les stations de Perrache (28 km à l'aval) et d'Anthon (7 km à l'amont). La mesure ultrason effectuée à Perrache est estimée plus fiable par la CNR que la relation hauteur-débit à Anthon. Aucun apport ou perte significatifs d'eau n'ont lieu sur le tronçon Anthon-Perrache. Le décalage temporel pour tenir compte de la propagation entre la station de Jons et la station de Perrache est évalué à 8h.

La propagation dépend non seulement de la vitesse variable de l'eau, mais aussi de la conduite des aménagements du Rhône, en fonction du niveau de débit. Ainsi, en crue, les barrages s'ouvrent et une importante partie du débit est évacuée par les Vieux-Rhône. Le modèle hydraulique du Rhône, construit par l'OSR [2] entre le Léman et la mer est un outil bien adapté pour faire ce type de modélisation, puisqu'il tient compte de la gestion des ouvrages et est capable de combiner des écoulements issus de différents affluents. Le modèle est actuellement précisément paramétré entre le Léman et Lyon, hors crues débordantes. Il est présenté au §6.2 de cette thèse. C'est l'outil utilisé pour calculer la chronique de débit à Jons, à partir des débits mesurés à Anthon, ou la somme des débits mesurés à Lagnieu (Rhône), Port-Galland (Ain) et Tignieu-Jameizieu (Bourbre).

Au niveau d'une même station hydrométrique, le débit varie typiquement d'un à deux ordres de grandeur au cours du temps. Par exemple, au cours des dix dernières années, les débits horaires mesurés sur le Rhône à Perrache (CNR) varient de 100 à 3000 m^3/s, pour l'Arve à Bout-du-Monde (OFEV), ils varient de 6 à 700 m^3/s et pour la Bourbre à Tignieu (DREAL) de 1 à 50 m^3/s. La vitesse à laquelle les changements de débit ont lieu dépend du cours d'eau. Pour le Rhône à Perrache, une montée de crue dure de un à dix jours tandis que sur l'Arve, l'Ain ou la Bourbre, elle dure de quelques heures à quelques jours au maximum. En France, le débit est en général enregistré de façon continue et est disponible à un pas de temps horaire voire plus fin pour la plupart des cours d'eau sur le site de la Banque Hydro [3], ce qui permet de tenir compte de la variabilité du débit et de rendre négligeables les erreurs d'échantillonnage temporel, sauf pour les très petits cours d'eau très réactifs. La connaissance du débit n'est donc pas un problème pour le calcul de flux.

1.2.2.2 La concentration en MES

La concentration en MES peut être déterminée soit directement à partir d'échantillons filtrés, soit indirectement par mesure de la turbidité et transformation de la turbidité en concentration en MES.

Les mesures optiques à l'aide de turbidimètres calibrés se sont développées au cours des dix dernières années. Malgré des problèmes d'étalonnage associés notamment à des variations des caractéristiques des particules transportées dans le cours d'eau (Vongvixay, 2012; Saguintaah, 2012;

2. Observatoire des sédiments du Rhône
3. http ://www.hydro.eaufrance.fr/

Thollet *et al.*, 2013), de nombreuses études ont montré l'intérêt de la mesure de la turbidité pour estimer les concentrations en MES en continu (Gippel, 1995; Riley, 1998; Lenzi et Marchi, 2000; Brasington et Richards, 2000; Eads et Lewis, 2002; Mano, 2008; Horowitz, 2008).

La concentration en MES peut également être reconstituée par un modèle, notamment en établissant une relation entre la concentration en MES et le débit (Walling, 1977; Asselman, 1999).

La plupart du temps, la mesure de la concentration en MES est effectuée en un point unique de la section, souvent proche de la surface. Une hypothèse forte dans le calcul de flux est que cette mesure est représentative de l'ensemble de la section.

La principale cause d'hétérogénéité des concentrations en particules fines au sein d'une section provient de la proximité à l'amont d'une singularité perturbant l'écoulement. C'est notamment le cas au niveau d'une confluence, qui voit l'arrivée dans le cours d'eau principal d'un apport de particules avec des caractéristiques, concentrations, granulométrie et composition, différentes.

La longueur de bon mélange L_m est définie comme la longueur minimale d'un tronçon de cours d'eau permettant d'obtenir une concentration homogène d'une substance dissoute ou particulaire depuis son point d'injection, ou depuis une confluence entre deux cours d'eau de concentrations différentes. La longueur de bon mélange peut être très variable car elle dépend des caractéristiques du tronçon de cours d'eau et de la confluence considérée. Plusieurs formules empiriques ou semi-empiriques ont été proposées pour estimer L_m, selon les conditions d'écoulement et le type de cours d'eau. Elles doivent être maniées avec précaution et ne fournissent que des ordres de grandeur. Pour un cours d'eau, on pourra appliquer classiquement la formule de Rimmar (Eq. F.1) (André *et al.*, 1976; Boiten, 2000).

$$L_m = K' \frac{W^2}{H} \tag{1.6}$$

avec W [m] et H [m] la largeur et la profondeur moyennes du cours d'eau, respectivement, et K' [sans dimension] un coefficient variant en pratique entre 5 et 10 (entre 3 et 27 dans les cas extrêmes). A partir d'une étude théorique sur un cas de confluence simplifié, Smith et Daish (1991) aboutissent à une formule qui dans le cas de deux cours d'eau de profondeurs équivalentes se réduit à la formule de Rimmar avec K'=10.

Pour favoriser la répartition homogène des concentrations en MES au sein de la section, on se placera donc à une distance supérieure à la distance de bon mélange des zones de confluence pour que les eaux en provenance des deux parties du réseau hydrographique aient le temps de se mélanger.

Au niveau d'une section de mesure donnée, la concentration en MES peut varier sur trois à quatre ordres de grandeur. C'est le cas par exemple de l'Arve à Bout-du-Monde, où la concentration en MES mesurée entre 1965 et 2003 à raison d'un prélèvement tous les cinq jours en moyenne

(OFEV) varie de 1 mg/L à plus de 30 g/L. Pour le Rhône à Jons, l'enregistrement en continu de la concentration en MES horaire depuis 2010 fournit des valeurs variant entre 1 mg/L et 1 g/L. Les variations de concentration en MES sont surtout importantes en périodes de crue. En régime de base, elle varie tout au plus d'un facteur 5. Comme pour le débit, la vitesse à laquelle les variations de concentrations en MES ont lieu dépend du cours d'eau. Les durées de montée de crue solide sont en général du même ordre de grandeur que les durées de montée de crue liquide, et peuvent même être un peu plus courtes. Ainsi dans le cas du Rhône à Jons, une montée de crue solide dure de un à quelques jours tandis que sur l'Arve, elle dure en général quelques heures. Un échantillonnage à pas de temps horaire apparaît donc comme indispensable pour tenir compte de la variabilité de ce paramètre, notamment lors des périodes de crue, au cours desquelles 25 à 81 % du flux de MES annuel transite (Eyrolle *et al.*, 2012). La mise en place d'un suivi avec un pas de temps plus fin lors des crues et plus large en régime de base apparaît comme une alternative intéressante, dans le cas où un suivi continu n'est pas possible.

La plupart des données existantes de concentration en MES proviennent de prélèvements ponctuels réalisés dans le cadre de suivis réglementaires de la qualité de l'eau ou de programmes de recherche sur les cours d'eau, tels que le Piren Seine par exemple. L'échantillonnage discret est réalisé à pas de temps constant, journalier au mieux, hebdomadaire ou mensuel la plupart du temps, et principalement au cours des jours ouvrés (Walling et Webb, 1985; Phillips *et al.*, 1999; Moatar et Meybeck, 2005; Quilbe *et al.*, 2006; Horowitz, 2008; Mano, 2008; Raymond, 2011; Meybeck et Moatar, 2012). Ces suivis permettent rarement d'échantillonner les événements de crue et bien souvent le pas de temps est trop important pour que la concentration en MES puisse raisonnablement être considérée comme constante durant l'intervalle entre deux mesures.

1.2.2.3 La teneur en contaminants

La teneur en contaminants particulaires est déterminée par des analyses en laboratoire à partir de prélèvements de MES, réalisés à l'aide de dispositifs variés qui doivent permettre de collecter une masse suffisante de particules pour permettre les analyses. Les dispositifs déployés peuvent être des systèmes de prélèvement ponctuels, tels que des systèmes de filtration ou des centrifugeuses, ou des systèmes intégratifs dans le temps, comme des pièges à sédiments ou des échantillons fractionnés à prélèvement fréquent. Pour chaque dispositif de prélèvement, la comparaison des caractéristiques des particules prélevées avec celles des particules circulant dans le cours d'eau permet de contrôler que les particules recherchées sont bien échantillonnées.

Les prélèvements sont généralement effectués en un point de la section (Horowitz, 1995, 2008). La représentativité spatiale de la teneur en contaminant mesurée est associée à la représentativité spatiale de la concentration en MES et des caractéristiques des MES échantillonnées. Au niveau d'une section de mesure donnée, l'amplitude de variation de la teneur en contaminant au cours du temps dépend de l'espèce chimique étudiée et n'est pas toujours bien définie.

Dans le cas du Rhône à Arles, la somme des PCBi mesurée dans les MES par Tronczynski et Tixier (2012) pour 2009-2010 et par Cossa (2012) en 2010-2011 varie sur un ordre de grandeur au cours du temps. C'est également le cas de la teneur en mercure des MES mesurée par Cossa et Martin (1991), Castelle (2010) et Cossa (2012) dans le Rhône.

Les variations des teneurs en contaminants en fonction de l'hydrologie restent peu documentées. Sur la base de l'étude des crues de 2008 sur le Rhône à Arles, Cossa (2012) montre que d'un évènement à l'autre, la teneur en mercure des MES peut augmenter ou diminuer avec le débit, en fonction de l'affluent d'origine de la crue. Audry *et al.* (2004), Blanc *et al.* (1999) et Schäfer et Blanc (2002), ont indiqué que les variations temporelles du cadmium particulaire dans le Lot et la Garonne sont très inférieures à celles du débit ou de la concentration en MES.

Des corrélations sont également recherchées entre les teneurs en contaminants particulaires et la concentration ou le flux de MES par exemple (Schäfer et Blanc, 2002; Dutordoir *et al.*, 2012; Quémerais *et al.*, 1999; Tronczynski et Héas-Moisan, 1996; Horowitz *et al.*, 2001a). Toutefois, les processus qui régissent les variations des teneurs en contaminants particulaires restent mal connus, et demandent à être explorés pour chaque molécule.

Le coût et les difficultés de mise en œuvre des prélèvements de MES pour les analyses des contaminants conduisent généralement à un échantillonnage temporel discret, avec des fréquences de mesure très inférieures à celles du débit et de la concentration en MES (Horowitz, 1995, 2008).

1.2.3 Choix de la section de mesure

Le flux de contaminant particulaire transitant dans un cours d'eau est calculé à partir de la mesure des trois paramètres, Q, C_s et C_c. Il arrive que les trois paramètres ne soient pas mesurés au niveau de la même section.

Nous suggérons alors de choisir la station de mesure de la concentration en MES comme point d'établissement du flux de contaminants particulaires. Plusieurs raisons motivent ce choix.

Tout d'abord, la concentration en MES est, parmi les trois paramètres, celui qui varie potentiellement le plus spatialement. Des phénomènes de dépôt et d'érosion et des problèmes de mélange aux confluences sont ainsi susceptibles d'avoir lieu entre deux points de mesure de la concentration en MES.

Ensuite, le débit peut être facilement déterminé au niveau de la section de mesure de la concentration en MES soit par modélisation hydraulique soit à l'aide de formules empiriques, si aucun apport ou perte intermédiaire significative de débit n'a lieu sur la distance qui sépare les deux sections de mesure.

Enfin, nous verrons dans cette thèse que la teneur en contaminant des particules est peu variable spatialement sur un même cours d'eau. On peut donc considérer que les teneurs mesurées au niveau d'une autre section peu éloignée du cours d'eau seront les mêmes au niveau de la section de mesure de la concentration en MES, à condition que les particules présentent les mêmes caractéristiques, granulométrie et teneur en carbone organique notamment, aux deux sections.

1.2.4 Normalisation des teneurs en contaminants

La variabilité naturelle de la granulométrie et de la composition minéralogique des particules est susceptible de faire varier la teneur en contaminants mesurée dans les échantillons de sédiments ou de MES (de Groot *et al.*, 1982; Horowitz et Elrick, 1987). Kersten et Smedes (2002) définissent la normalisation comme une procédure pour corriger l'influence de la variabilité naturelle de la granulométrie et de la composition minéralogique des sédiments sur les teneurs en contaminants. Cette procédure est utilisée pour déterminer les tendances spatiales et temporelles des teneurs en contaminants dans les sédiments marins ou en rivière (Windom *et al.*, 1989; Klamer *et al.*, 1990; Daskalakis et O'Connor, 1995) et pour distinguer les sources anthropiques des sources naturelles des contaminants métalliques (Loring et Rantala, 1992).

Schäfer et Blanc (2002) constatent que pour des vitesses d'écoulement supérieures à 0,5 m/s, les échantillons collectés avec des pièges à sediments dans 6 rivières du système fluvial Adour/Garonne présentent des particules plus grossières que les échantillons collectés à la centrifugeuse. Bien qu'elle ne soit pas envisagée par les auteurs, une procédure de normalisation pourrait permettre de comparer les teneurs en contaminants d'échantillons collectés avec ces différents systèmes de prélèvements en rivière qui modifient les caractéristiques des particules.

Des procédures de normalisation des teneurs en contaminants dans les sédiments sont détaillées à la fois dans la littérature scientifique et dans les guides de méthodologie établis par les autorités pour harmoniser les programmes de surveillance. Le suivi des sédiments est développé depuis plus longtemps dans le milieu marin (ex du Réseau d'Observation de la Contamination Chimique du mi-

lieu marin (RNO/ROCCH) [4] depuis 1974 en France) et les guides tels que le guide JAMP développé dans le cadre de la convention OSPAR (2002) donnent des recommandations précises pour analyser les contaminants dans les sédiments marins et pour exprimer les résultats. Le suivi des sédiments dans les eaux continentales, plus récent, fait également l'objet de recommandations présentées au niveau européen dans le guide CMA (2010).

L'objectif des procédures de normalisation présentées dans ces différents guides est l'évaluation des tendances spatiales et temporelles des teneurs en contaminants, en s'affranchissant de l'influence de la variabilité naturelle de la composition des sédiments (granulométrie, matière organique et minéralogie) (CMA, 2010). Le CMA (2010), distingue les procédures de normalisation chimique par la teneur des particules en composés conservatifs et les procédures de normalisation physique par la fraction granulométrique d'intérêt.

La normalisation chimique est utilisée pour tenir compte de l'affinité de certains contaminants pour des composés présents dans les particules. Windom *et al.* (1989) montrent à partir de l'étude de sédiment marins et côtiers prélevés dans sud-est des Etats-Unis que certains métaux (As, Co, Cr, Cu, Fe, Pb, Mn, Ni et Zn) covarient significativement avec l'aluminium présent dans les particules. Les auteurs indiquent que ce n'est pas le cas du mercure et du cadmium, pour lesquels la teneur en matière organique des particules domine les processus d'affinité. Windom *et al.* (1989) concluent que la normalisation par l'aluminium des teneurs en métaux est un outil de comparaison des données collectées dans les sédiments marins du sud-est des Etats-Unis. Ils utilisent cette approche pour identifier les apports anthropiques de zinc et de plomb dans les sédiments provenant de la rivière Savannah, de la baie de Biscayne et de la baie de Pensacola.

Daskalakis et O'Connor (1995) confirment les corrélations entre certains métaux et l'aluminium contenus dans les sédiments marins du sud-est des Etats-Unis obtenus par Windom *et al.* (1989) et ajoutent que des corrélations significatives peuvent également être établies entre ces métaux et le fer.

Klamer *et al.* (1990) analysent les métaux traces (sans le mercure) et contaminants organiques (PCB et hydrocarbures HAP) dans des sédiments prélevés en mer de Wadden (Pays-Bas). Ils montrent que les contaminants organiques, notamment les PCB, sont fortement corrélés à la teneur en carbone organique des échantillons. Une normalisation des teneurs en PCB par la teneur en carbone organique peut donc être employée pour étudier les variations spatiales et temporelles de la contamination organique. Cependant, Klamer *et al.* (1990) recommandent d'éviter la normalisation par le carbone organique particulaire ou par d'autres éléments conservatifs (Al ou Fe) pour l'étude des tendances spatiales et temporelles des contaminants organiques et des métaux. Ils soulignent en effet que cette normalisation nécessite de faire au moins une analyse supplémentaire des échantil-

4. http ://wwz.ifremer.fr/lermpl/Surveillance/Contaminant-chimique

lons pour déterminer la teneur de l'élément conservatif utilisé pour la normalisation et que l'erreur associée à la mesure de cet élément conservatif s'ajoute à l'erreur totale faite sur la teneur normalisée.

En général, les particules plus grossières présentent des concentrations en métaux et en contaminants organiques plus faibles que les particules fines. La normalisation physique consiste donc à identifier la fraction granulométrique porteuse de contamination, dite fraction d'intérêt, et à tamiser les échantillons pour isoler cette fraction. La teneur en contaminant est alors déterminée sur la fraction tamisée et exprimée en fonction de la masse de la fraction par rapport à la masse totale de l'échantillon.

En sédimentologie et en géologie, l'analyse granulométrique a permis de définir des classes de matériaux à partir de leur diamètre (Chamley, 1987; Rivière, 1977). Les plus couramment utilisées sont :

- cailloux : 200 > D > 20 mm
- graviers : 20 > D > 2 mm
- sables grossiers : 2 > D > 0,2 mm
- sables fins : 0,2 mm > D > 20 μm
- limons : 20 μm > D > 2 μm
- argiles : 2 μm > D

Kersten et Smedes (2002) indiquent que les contaminants métalliques dans les sédiments marins sont majoritairement associés aux argiles et considèrent que la fraction inférieure à 2 μm est la fraction d'intérêt. Comme la séparation par tamisage de cette fraction est laborieuse, les fractions inférieures à 20 ou 63 μm sont généralement utilisées. Ces diamètres correspondent respectivement aux séparations des classes limons fins / limons moyens et limons grossiers / sables très fins. La normalisation par la fraction inférieure à 63 μm est recommandée par Klamer *et al.* (1990), à la fois pour les contaminants métalliques et pour les contaminants organiques dans les sédiments marins.

1.3 Méthodes de calcul des flux de MES

Le principal verrou du calcul de flux de MES réside dans la représentativité du jeu de données des concentrations en MES. Les données de MES existantes, issues principalement de suivis réglementaires ou de programmes de recherche sur les cours d'eau, sont en général de nature discrète, avec un pas de temps mensuel, bimensuel, hebdomadaire ou au mieux journalier. Lorsque ce pas de temps est fixe, la probabilité d'échantillonner les événements de crue, qui produisent la majeure partie du flux, est considérablement réduite. La mise en place de suivi avec une fréquence d'échantillonnage plus importante en crue peut permettre de mieux appréhender la dynamique sédimentaire

d'un cours d'eau. Le développement des mesures de turbidité est très intéressant puisqu'il permet, une fois la calibration établie, d'obtenir une mesure en continu de la concentration en MES. Néanmoins, l'utilisation de turbidimètres en rivière pour le suivi des concentrations en MES reste récente et les chroniques de turbidité disponibles sont encore relativement courtes (une dizaine d'années au maximum). Des questions subsistent encore quant à la relation entre la turbidité et la concentration en MES, notamment lorsque la granulométrie des particules change au sein de la section de mesure (Gippel, 1995; Riley, 1998; Lenzi et Marchi, 2000; Brasington et Richards, 2000; Eads et Lewis, 2002; Mano, 2008; Horowitz, 2008).

Le calcul de flux de MES est généralement effectué à partir d'un jeu de données de débit continu et d'un jeu de concentrations en MES discontinu. Différentes méthodes de calcul des flux de MES ont été développées au cours des trente dernières années. Elles cherchent toutes la meilleure exploitation possible des deux chroniques (débit et concentrations en MES) disponibles à des pas de temps différents. Les études menées par Walling et Webb (1985), Dickinson (1981), Littlewood (1992), Meybeck (1992), Phillips *et al.* (1999), Moatar et Meybeck (2005), Quilbe *et al.* (2006), Mano (2008), Raymond (2011) recensent ces différentes méthodes et tentent d'établir celle qui permet d'obtenir la meilleure estimation du flux réel. Les différentes méthodes proposées peuvent être regroupées en 4 familles : les méthodes d'interpolation, les méthodes d'extrapolation, les méthodes d'estimation de la production sédimentaire du bassin versant et la modélisation hydrologique.

1.3.1 Les méthodes d'interpolation

Les méthodes d'interpolation consistent en une estimation directe du flux à partir des données discrètes de concentration en MES, en moyennant les concentrations et les débits mesurés au cours de la période. Walling et Webb (1985) recensent plusieurs variantes selon les options choisies pour effectuer la moyenne (i.e. utilisation de l'ensemble des débits enregistrés sur la période entre deux prélèvements ou seulement des débits mesurés au moment des prélèvements, etc.). Ces méthodes sont détaillées dans le Tab. 1.2, sous les numéros (1) à (5).

Dans les méthodes (1) et (4), les moyennes des débits et des concentrations sont effectuées séparément. Il s'agit donc de moyennes temporelles sans mettre en relation les deux grandeurs. Walling et Webb (1985) et Ferguson (1987) ont montré à partir d'études sur des jeux de données de concentration en MES sur des cours d'eau anglais et suisses que ces deux méthodes sont précises (elles donnent des résultats proches pour des sous-échantillons différents issus d'un même jeu de données) mais qu'elles sont biaisées. En effet, elles sous-estiment jusqu'à 40 % le flux mesuré, en fonction du pas de temps du sous-échantillonnage. Walling et Webb (1985) indiquent que ce biais est directement lié à l'utilisation d'une pondération de la moyenne des concentrations par le temps et non par les débits dans le calcul. La méthode (5) dérive de la méthode (4) et pondère la moyenne

des flux instantanés par la moyenne de tous les débits correspondant aux prises d'échantillon. Elle est recommandée par la convention OSPAR (OSPAR, 2000) pour le calcul des apports de MES des fleuves à la mer.

Dans les méthodes (2) et (3), en revanche, les concentrations moyennes sont pondérées par les débits. Quilbe *et al.* (2006) indiquent que la méthode (2) est fortement biaisée quand le jeu de données est peu fourni. Il fait référence à Dolan *et al.* (1981) qui conseillent pour réduire ce biais de remplacer la concentration ponctuelle par la concentration moyenne sur une période de temps donnée. Les méthodes (2), (3) et (5) utilisent donc une pondération par le débit. Elles fournissent des valeurs moyennes de flux proches de la valeur mesurée, mais avec une dispersion très importante, les valeurs obtenues pouvant atteindre de 10 à 300 % du flux mesuré (Walling et Webb, 1985).

Les méthodes (1) à (5) reposent sur l'hypothèse implicite que les concentrations mesurées de façon discrète sont représentatives de la période qui sépare deux prélèvements. La fréquence d'échantillonnage de la concentration en MES par rapport à ses variations temporelles est donc un paramètre déterminant dans la capacité de ces méthodes à estimer le flux de MES. Si l'échantillonnage ne couvre pas une gamme représentative de la variabilité des débits et concentrations, ces méthodes entraînent un biais sur l'estimation (Dolan *et al.*, 1981; Ferguson, 1987; Quilbe *et al.*, 2006; Raymond, 2011). Pour un cours d'eau donné, plus la concentration en MES varie vite au cours du temps (réactivité du cours d'eau) plus la durée entre deux prélèvements devra être faible pour que l'échantillonnage soit représentatif. La mise en place d'un pas de temps de prélèvement variable en fonction de l'hydrologie, plutôt que d'un pas de temps fixe, permet d'optimiser les prélèvements en augmentant leur nombre pendant les périodes de fortes variations et en les réduisant pendant les périodes de stabilité (IPL, 2009).

La méthode (6) a été proposée par Beale et est présentée par Littlewood (1995). Elle complète la méthode (5) en multipliant le flux de MES obtenu par un rapport qui permet de tenir compte de la covariance entre le flux de MES et le débit. Cette méthode se rapproche donc des méthodes d'extrapolation Cs(Q) décrites dans le paragraphe suivant. Quilbe *et al.* (2006) indique que ce type d'estimateur est adapté pour les cas où l'on dispose d'un grand nombre de données de débit et de seulement quelques données de concentration.

La méthode (7) n'est pas étudiée par Walling et Webb (1985), mais est discutée par Lang (1995). Elle correspond à une interpolation linéaire des concentrations entre deux points de mesure pour obtenir une chronique de concentration au même pas de temps que la chronique de débit. Le produit du débit et de la concentration est alors sommé sur la période considérée. Aucune moyenne n'est effectuée ici et elle permet de prendre en compte toute la variabilité du débit enregistrée, mais le problème de l'échantillonnage des variations de concentrations en MES demeure.

Tableau 1.1 – Méthodes de calcul de flux de MES par interpolation issues de la littérature

Méthode	Equation	Source
1	$\Phi_{s,1} = \left(\sum_{i=1}^{n} \frac{C_{s,i}}{n}\right) \left(\sum_{i=1}^{n} \frac{Q_i}{n}\right)$	Verhoff *et al.* (1980)
2	$\Phi_{s,2} = \left(\sum_{i=1}^{n} \frac{C_{s,i} Q_i}{n}\right)$	Rodda et Jones (1983)
3	$\Phi_{s,3} = \left(\sum_{i=1}^{n} C_{s,i} \overline{Q}_s\right)$	Walling et Webb (1981)
4	$\Phi_{s,4} = \overline{Q}_p \left(\sum_{i=1}^{n} \frac{C_{s,i}}{n}\right)$	Ongley (1973)
5	$\Phi_{s,5} = \frac{\sum_{i=1}^{n} (C_{s,i} Q_i)}{\sum_{i=1}^{n} Q_i} \overline{Q}_r$	Verhoff *et al.* (1980)
6	$\Phi_{s,6} = \Phi_{s,5}\ CF_1$	Littlewood (1995)
	$CF_1 = \frac{1 + \frac{1}{n}\frac{Slq}{\bar{l}\bar{q}}}{1 + \frac{1}{n}\frac{Sq^2}{\bar{q}^2}}$	
	$Slq = \left(\frac{1}{n-1}\right) \left[\sum_{i=1}^{n} (Q_i^2 C_{s,i}) - n\bar{q}\bar{l}\right]$	
	$Sq^2 = \left(\frac{1}{n-1}\right) \left[\sum_{i=1}^{n} Q_i^2 - n\bar{q}^2\right]$	
7	$\Phi_{s,7} = \sum_{i=1}^{n} \left(\sum_{k=1}^{m} C_{s,i} Q_k\right)$	Lang (1995)

Φ_s = Flux de MES [M] sur la période p
n = nombre de mesures de C_s au cours de la période
m = nombre de mesures de Q au cours de la période
$C_{s,i}$ = [M/L^3] Concentration instantanée en MES mesurée
Q_i = [L^3/T] Débit instantané au temps du prélèvement
$\overline{Q}_s$ = [L^3/T] Débit moyen entre deux prélèvements
$\overline{Q}_p$ = [L^3/T] Débit moyen de la période p
$\bar{q}$ = [L^3/T] moyenne des débits mesurés au moment des prélèvements
$\bar{l}$ = [M] moyenne des flux de MES au moment des prélèvements

Dans le cadre d'un calcul de flux annuel, ces différentes méthodes peuvent être appliquées soit sur l'ensemble de l'année, soit en subdivisant le jeu de données. Cette subdivision peut se faire selon la saison (fonte / pluie ou printemps / été / automne / hiver) ou selon les périodes de hautes et basses eaux (Dolan *et al.*, 1981). Le critère pour différencier les périodes de hautes eaux des périodes de basses eaux est alors soit le débit médian soit le débit moyen.

1.3.2 Les méthodes d'extrapolation

Les méthodes d'extrapolation visent à reconstituer une chronique de concentration en MES au pas de temps de la chronique de débit en se basant sur une relation de régression entre les deux variables.

La relation la plus couramment établie est une régression linéaire obtenue sur les logarithmes des séries de débit et de concentration (Walling, 1977; Asselman, 1999) (méthode 8 dans le Tab. 1.2). Quelques explications physiques peuvent être données aux paramètres a et b de la régression. D'après Asselman (2000), le paramètre a traduit la sensibilité à l'érosion du bassin versant. Le paramètre b pourrait être lié à la capacité d'érosion de la rivière et à l'augmentation de la disponibilité des sédiments en fonction du débit (Mano, 2008). Quilbe *et al.* (2006) indiquent que cette méthode ne nécessite pas forcément un important jeu de données de concentration, mais que ses résultats dépendent principalement de la qualité de la corrélation entre concentration et débit. A partir de données de MES collectées sur de petits cours d'eau en Angleterre et en Suède, Walling et Webb (1981), Jansson (1985) et Walling et Webb (1988) ont évalué que les méthodes de régression conduisent à une sous-estimation des flux, avec des flux estimés allant de 23 à 83 % des flux mesurés. Ferguson (1986) explique que cette sous-estimation est en partie due à un biais statistique engendré par la recherche de la corrélation sur les données logarithmiques de débit et de concentration. Il propose un facteur de correction pour tenir compte de ce biais (méthode 9 dans le Tab. 1.2). Le coefficient de correction utilisé dans la méthode 10 a été proposé par Duan (1983). Walling dans Hadley et Walling (1984) et Phillips *et al.* (1999) proposent également des facteurs de correction repris notamment dans Raymond (2011).

Malgré ces corrections, une importante dispersion est généralement observée dans les relations puissance entre le débit et la concentration en MES. De nombreux auteurs se sont penchés sur les phénomènes d'hystérésis fréquemment observés dans les relations entre débit et concentration en MES et ont recherché une explication physique, telle que la remise en suspension de sédiments stockés dans le réseau hydrographique (Asselman, 1999; Lenzi et Marchi, 2000; Jansson, 2002; Le Coz *et al.*, 2007; Launay *et al.*, 2012). Ils proposent plusieurs stratégies pour améliorer les relations (i.e. pour obtenir un coefficient de corrélation plus important) : séparation du jeu de données en deux (de juin à novembre et de décembre à mai), en fonction de la saison (printemps, été, automne, hiver), en

fonction de la position du point de prélèvement sur l'hydrogramme (montée ou descente de crue), en fonction des périodes de fonte et de stockage nival, prise en compte d'un décalage temporel entre le pic de débit et le pic de concentration en MES, etc.

Asselman (1999) propose de prendre en compte le stock de sédiments disponible sur le bassin versant, en introduisant dans la relation puissance un terme de déstockage en fonction du temps. Il s'agit alors d'évaluer le stock disponible en début de saison.

Quilbe *et al.* (2006) soulignent que pour toutes ces méthodes de régression, la qualité du résultat dépend avant tout de la gamme de données de concentration en MES et de débit présentes dans le jeu de données initial. Ils insistent sur le fait que les équations de régression ne devraient en fait être utilisées que pour de l'interpolation et non pour de l'extrapolation, et devraient donc être appliquées uniquement sur la gamme de mesure disponible.

Dans les méthodes (11) et (12), la relation de régression (sans correction ou avec correction de Ferguson) est appliquée à la courbe de fréquence des débits de l'année (Phillips *et al.*, 1999; Raymond, 2011). Tous les débits mesurés au cours de l'année (et pas seulement au moment de l'échantillonnage des concentrations) sont triés du plus fort au plus faible et leur fréquence d'apparition sur l'année est déterminée. La courbe de fréquence est alors divisée en un certain nombre d'intervalles. Pour chaque intervalle de fréquence, le débit médian est déterminé et la concentration en MES associée à ce débit est déterminée par la relation de régression établie à partir des prélèvements. Le flux annuel est obtenu en sommant les flux calculés par intervalle de fréquence (produit du débit médian et de sa concentration associée) et en les pondérant par la taille de l'intervalle. Il est recommandé pour cette méthode d'utiliser au moins 100 classes de fréquence de débit (Raymond, 2011). Cette méthode doit permettre de tenir compte de la représentativité de l'échantillonnage des couples concentration en MES-débit par rapport à l'ensemble des débits mesurés pendant l'année.

Des relations puissance avec la pluie plutôt qu'avec le débit sont parfois recherchées (Jansson, 1996). Mano (2008) indique que des corrélations multiples peuvent également être établies, en introduisant plusieurs paramètres en même temps dans la relation puissance (pluie, débit, décalage temporel...), ce qui peut même conduire jusqu'à l'utilisation de réseaux de neurones (Alp et Cigizoglu, 2007). Mailhot *et al.* (2008) ont développé une méthode de calcul du flux à partir de la distribution statistique des concentrations. La concentration est alors considérée comme une variable aléatoire dont la distribution statistique dépend des débits et des jours calendaires.

1.3.3 Les méthodes par estimation de l'érosion et modélisation hydrologique

Une autre approche consiste à relier les flux de sédiments à l'exutoire à la quantité de sol érodée sur le bassin versant (Delmas *et al.*, 2011). Pour faire ce lien et prédire les exports de sédiments à l'échelle annuelle à partir de données d'érosion, de nombreuses études utilisent le concept

Tableau 1.2 – Méthodes de calcul de flux de MES par extrapolation

Méthode	Equation	Source
8	$\Phi_{s,8} = \sum_p (\hat{C}_s Q)$ $\hat{C}_s = aQ^b \Rightarrow \log \hat{C}_s = \log a + b \log Q$	Walling (1977)
9	$\Phi_{s,9} = CF_2 \ \Phi_{s,8}$ $CF_2 = \exp(2{,}651 s^2)$	Ferguson (1986)
10	$\Phi_{s,10} = CF_3 \ \Phi_{s,8}$ $CF_3 = \left(\frac{1}{n}\right) \sum_{i=1}^{n} 10^{e_i}$ $e_i = \log C_{s,i} - \log \hat{C}_{s,i}$	Duan (1983)
11	$\Phi_{s,11} = \sum_{c=1}^{nc} (Q_{m_c} \hat{C}_{s,m_c} P_c)$ $\hat{C}_s = aQ^b$	Verhoff *et al.* (1980); Hadley et Walling (1984)
12	$\Phi_{s,12} = \sum_{c=1}^{nc} (Q_{m_c} \hat{C}_{s,m_c} P_c)$ $\hat{C}_s = aQ^b \times CF_2$	Hadley et Walling (1984)

$\hat{C}_s$ = Estimateur de la concentration en MES horaire
Q = Débit horaire [L^3/T] associé à la concentration en MES C_s [M/L^3]
a, b = Paramètres de régression [-]
s = Ecart-type de la régression [-]
Q_{m_c} = Débit médian [L^3/T] de la classe de débit c [-]
$\hat{C}_{s,m_c}$ = Estimateur de la concentration en MES [M/L^3] associée à Q_{m_c} [L^3/T]
P_c = Pourcentage [-] de la courbe des débits classés associé à la classe c [-]

de "Sediment Delivery Ratio" (SDR, Walling (1983)). Le SDR est défini comme le rapport entre l'érosion produite sur l'ensemble du bassin versant et le flux spécifique de sédiments à l'exutoire du bassin versant. Walling (1983) note que le SDR décroît généralement quand la surface du bassin versant augmente. Il l'explique par une augmentation des opportunités de dépôt lorsque la taille du bassin versant augmente. Plusieurs études ont donc cherché à définir le SDR en l'exprimant en fonction de l'aire du bassin versant (Walling, 1983). Cependant, De Vente et Poesen (2005) et Lu *et al.* (2006) soulignent que cette relation est très variable selon les études. Néanmoins, ces conclusions rejoignent celles de Walling (1983) qui considère que l'aire du bassin versant ne peut pas

être le seul paramètre qui explique l'amplitude du flux. La modélisation est alors nécessaire pour prendre en compte d'autres paramètres.

De Vente et Poesen (2005) identifient trois types de modèles employés pour prédire l'érosion et le transport de sédiments : les modèles empiriques, conceptuels et à base physique.

Un modèle empirique est une relation mathématique issue d'observations menées sur le terrain, mais qui n'est pas reliée à une base théorique. Pour estimer le taux moyen d'érosion des bassins versants, des équations empiriques intégrant plusieurs paramètres tels que la pente, l'altitude, l'occupation du sol, la météorologie ont été développées (Walling, 1983; Ludwig et Probst, 1998). Parmi les modèles empiriques, l'équation universelle de perte de sol (USLE, Wishmeier et Smith (1978)) est couramment employée. La perte de sol est exprimée en fonction de paramètres climatiques, topographiques, de la couverture du sol et des pratiques culturales. Cette équation a été établie pour être utilisée à l'échelle de la parcelle, mais est régulièrement employée pour estimer l'érosion à l'échelle du bassin versant en adaptant les paramètres du modèle (Mano, 2008). Cette équation permet donc d'exprimer l'érosion nette d'un bassin versant. Elle ne permet pas de prendre en compte le transfert des sédiments vers les cours d'eau et donc le SDR.

Delmas *et al.* (2009) développent quatre indicateurs pour décrire les processus majeurs de production et de transfert des sédiments au sein des bassins versants : l'érosion moyenne (HE), la mise en mouvement des particules (MM), le transfert par les cours d'eau décrit par la densité du réseau de drainage (DD) et le dépôt des particules sur les versants (D), Cf. Fig. 1.3. L'indice HE représente la source des particules transportées, MM et DD le potentiel de transfert des particules sur le bassin versant et D les pertes de particules au cours du transport. La somme pondérée de ces indicateurs produit une estimation des exports de sédiments à l'exutoire SSY selon l'équation :

$$SSY = \alpha HE + \beta MM + \gamma DD - \delta D \tag{1.7}$$

avec α, β, γ et δ les poids associés à chaque indicateur. Ce calcul peut être réalisé avec un logiciel de cartographie. L'information relative à chaque paramètre est contenue sous la forme de valeurs dans une couche appelée raster, découpée en pixels. La somme pondérée des informations est réalisée au niveau de chaque pixel. Pour obtenir l'estimation de l'export de sédiments à l'échelle du bassin versant, il faut alors sommer les résultats obtenus pour les pixels contenus dans le bassin versant.

Dans Delmas *et al.* (2009), les indicateurs HE, MM, DD et D ont été calculés pour 29 bassins versants européens. La comparaison des valeurs obtenues avec les flux de MES à l'exutoire des bassins versants mesurés sur le terrain ou calculés par d'autres modèles tels que le SDR ou l'équation USLE, a permis d'établir un poids à affecter à chacun des processus dans le bilan sédimentaire. Le modèle

ajusté pour les bassins versants européens correspond à l'équation empirique suivante :

$$Ln(SSY) = 0.034HE + 0.047MM + 0.061DD - 0.045D - 0.8648 \quad (1.8)$$

Tableau 1.3 – Processus considérés dans le calcul de l'estimation des exports de sédiments à l'exutoire SSY et définition des indicateurs HE, MM, DD et D (Delmas *et al.*, 2009)

	Processes	Indicators	Indicator definition/calculation
MM	Mass movement	% basin area with potential mass movement	Slope ≥10% and material = undifferentiated alluvial deposits (or glacial deposits) or clayey material
			Slope ≥20% and material = volcanic rocks
			Slope ≥25% and material = calcareous rocks
			Slope ≥50% and material = crystalline rocks and migmatites, loamy and sandy materials
			Slope ≥75% and material = detrital formations
HE	Hillslope erosion	Mean erosion rate for each basin (normed)	Pan-European assessment of hillslope, rill, and interrill erosion (Cerdan et al. 2006)
DD	Drainage density	Drainage density (normed)	Total length of river network for each basin/drainage area
D	Hillslope and floodplain deposits	% basin area with potential hillslope and floodplain deposits	Slope ≤2%

Les modèles conceptuels et à base physique, plus compliqués que les modèles empiriques, tendent vers de la modélisation hydrologique en prenant en compte un plus grand nombre de paramètres. Les modèles conceptuels cherchent à représenter les principaux processus intervenant dans la production et le transfert de sédiments vers les cours d'eau, mais ne décrivent pas la physique de ces processus à petite échelle. Les modèles conceptuels sont souvent des modèles à réservoirs connectés entre eux, qui permettent de prendre en compte les principaux processus. Parmi ces modèles, le modèle de Negev (cité dans Mano (2008)) permet de prendre en compte un stock de sédiments disponibles, détachés par la pluie.

Enfin les modèles à base physique décrivent les processus à une échelle d'observation fine. Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie sont utilisées pour décrire le transport des sédiments, en intégrant les phénomènes de dépôt et d'érosion, et le ruissellement. Les paramètres utilisés ont alors un sens physique. Ils reposent sur une discrétisation fine du bassin versant et nécessitent de nombreuses données d'entrée et un temps de calcul conséquent. Parmi d'autres modèles, De Vente et Poesen (2005) et Mano (2008) citent le modèle WEPP (Water Erosion Prediction Project), développé par l'USDA (United State Department of Agriculture) ; le modèle DHSVM (Distributed Hydrology Soil Vegetation Atmosphere) est développé par le LTHE (Laboratoire des Transferts en Hydrologie et Environnement) à Grenoble.

1.3.4 L'analogie avec le comportement sédimentaire des bassins versant proches

Dans le cas de l'absence de données de concentration en MES ou de débit sur un bassin versant, une analogie avec le comportement des bassins versants voisins peut être réalisée (ex : Hydratec (2003)). Il est alors nécessaire de caractériser le plus précisément possible les bassins versants pour justifier l'analogie. Bertrand (2009) propose une méthodologie pour identifier qualitativement les zones de sensibilité à l'érosion des bassins versants à partir des données de pente, de courbure du relief, d'occupation du sol et de géologie. Cette méthode initialement développée sur le bassin versant de l'Arc en Maurienne est généralisable. Pour chaque paramètre, une hiérarchisation selon la sensibilité à l'érosion est définie ; la classification établie pour le paramètre pente est détaillée dans le Tab. 1.4. Bertrand (2009) utilise ensuite la méthode de pondération de Saaty pour définir l'importance de chaque paramètre par rapport aux autres paramètres, comme indiqué dans le Tab. 1.5. La somme pondérée des informations géographiques est alors réalisée au sein d'un système d'information géographique (SIG) et le résultat se présente sous la forme d'une carte des zones de sensibilité à l'érosion.

Le résultat de cette analyse cartographique renforce la comparaison des bassins versants voisins mais, contrairement à l'équation USLE, elle ne permet pas de quantifier les flux de MES. Son intérêt réside dans un apport d'information pour qualifier le comportement sédimentaire d'un bassin versant. Il est alors possible de définir le flux spécifique de MES le plus approprié pour un bassin versant pour lequel on ne dispose pas de données. L'analyse de la sensibilité à l'érosion peut être complétée en croisant la carte de sensibilité avec une carte des précipitations (forçage hydro-climatique), pour déterminer les zones de production sédimentaire. En considérant alors le réseau hydrographique présent sur le bassin versant (la densité de drainage et connectivité du réseau), on peut identifier les voies de transport dans les cours d'eau et les zones de stockage des particules érodées (Bertrand, 2009).

Tableau 1.4 – Classification du paramètre "pente" pour l'identification des zones de sensibilité à l'érosion selon la méthode de Bertrand (2009)

Pente	Erodibilité
<2 %	nulle
2-8 %	très faible
8-12 %	faible
12-20 %	moyenne
20-40 %	forte
40-70 %	très forte
>70 %	extrême

Tableau 1.5 – Méthode de pondération de Saaty pour définir l'importance relative de chaque paramètre dans le calcul de la sensibilité à l'érosion des bassins versants selon Bertrand (2009)

	Courbe	Géologie	occupation du sol	Pente
Courbe	1	0,33	0,20	0,14
Géologie	3	1	0,33	0,2
occupation du sol	5	3	1	0,33
Pente	7	5	3	1
Somme	16	9,33	4,53	1,68

1.3.5 Comparaison des méthodes

Les travaux de Walling et Webb (1985), Phillips *et al.* (1999), Moatar et Meybeck (2005), Quilbe *et al.* (2006), Mano (2008) et Raymond (2011) comparent différentes méthodes existantes de calcul de flux de MES. Leur objectif est de déterminer quelle méthode est la plus à même d'estimer le flux de MES réel à partir d'un jeu de données de concentrations en MES discret.

Selon le GUM (JCGM, 2008), la capacité d'une méthode de calcul à reproduire la valeur réelle du flux peut être estimée à travers sa justesse et sa fidélité. La justesse définit la capacité d'une méthode de calcul à fournir en moyenne un résultat proche de la valeur réelle. Elle peut être évaluée par le biais B définit ainsi par Lang (1995) : $B = E(\hat{\Phi}) - \Phi$, avec Φ le flux réel ou mesuré et $\hat{\Phi}$ le flux estimé. Plus B est faible, plus la méthode est juste.

La fidélité d'une méthode est sa capacité à produire des résultats avec une faible dispersion pour différents échantillons. Lang (1995) propose de l'évaluer à l'aide de la dispersion D définie par $D = (var(\hat{\Phi}))^{1/2}$. Plus D est faible, plus la méthode est précise.

La méthode la plus performante pour estimer le flux de MES doit donc être à la fois juste et précise, et par conséquent avoir un biais et une dispersion faible.

D'autres comparateurs sont utilisés dans la littérature. Ainsi, Mano (2008) recourt à l'écart arithmétique moyen (EAM), le critère de Nash (NS) et le coefficient de corrélation (R^2).

$$EAM = 100 \frac{\sum_{i=1}^{n} |\Phi_i - \hat{\Phi}_i|}{\sum_{i=1}^{n} \Phi_i} \tag{1.9}$$

avec n le nombre de valeurs de flux mesuré Φ. L'EAM est compris entre 0 et $+\infty$ et plus la valeur est proche de 0, plus le flux estimé est proche du flux réel ou mesuré.

$$NS = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{n}(\Phi_i - \hat{\Phi}_i)^2}{\sum_{i=1}^{n}(\Phi_i - \overline{\Phi})^2} \tag{1.10}$$

Le critère de Nash NS permet d'évaluer le degré d'ajustement entre le flux réel ou mesuré Φ et le flux calculé $\hat{\Phi}$. Il est compris entre $-\infty$ et 1. Si NS vaut 1, la méthode de calcul estime parfaitement le flux réel ou mesuré. Une valeur de NS inférieur à 0 signifie que la méthode de calcul testée n'est pas meilleure que si toutes les valeurs de flux estimées étaient remplacées par la moyenne des flux mesurés. En général, la méthode est considérée comme un bon moyen d'estimer le flux lorsque le coefficient de Nash est supérieur à 0,7.

$$R^2 = \left(\frac{\sum_{i=1}^{n}(\hat{\Phi}_i - \overline{\hat{\Phi}})(\Phi_i - \overline{\Phi})}{\sqrt{\sum_{i=1}^{n}(\hat{\Phi}_i - \overline{\hat{\Phi}})^2}\sqrt{\sum_{i=1}^{n}(\Phi_i - \overline{\Phi})^2}} \right) \tag{1.11}$$

R^2 traduit la qualité de la relation linéaire entre les flux mesurés et modélisés. Il est compris entre 0 et 1, et plus il est proche de 1, plus les flux estimés sont proches des flux mesurés.

(Lang, 1995) indique que trois procédures peuvent être menées pour évaluer les performances des méthodes de calcul de flux :

a) la génération aléatoire d'échantillons de concentrations et de débits tirés d'une population connue, et l'analyse de la distribution de l'échantillonnage ;

b) la comparaison du bilan "vrai" et de "bilans estimés" à l'aide de mesures expérimentales. Le bilan vrai est alors calculé à partir de mesures de débits en continu et d'une chronique de concentrations à pas de temps fin. Les bilans "estimés" sont calculés en n'utilisant qu'une partie de l'information disponible sur les concentrations, c'est-à-dire en sous-échantillonnant la chronique de concentrations à un pas de temps plus large que la chronique de base Plusieurs sous-échantillons peuvent être obtenus en prenant différentes origines de la sous-chronique ou en utilisant différentes périodes d'extraction ;

c) un calcul théorique (se référer à Lang (1995) pour un exemple de calcul à partir de la méthode détaillée dans Toma *et al.* (1996)).

La procédure *a* a notamment été employée par les équipes du projet Variflux (2005-2008) (Coynel *et al.*, 2004; Moatar et Meybeck, 2005; Moatar *et al.*, 2006; Mano, 2008; Meybeck et Moatar, 2012), pour évaluer l'erreur sur le calcul de flux associée à un échantillonnage à large pas de temps fixe des MES. Ces auteurs présentent des indicateurs permettant d'évaluer la variabilité des flux de MES et de contaminants dissous. L'indicateur M2% est défini comme le flux de MES atteint en 2 % du temps. Pour les cours d'eau français étudiés par Variflux, dont le bassin versant varie de 100 à 100 000 km^2, le M2% varie de 82 à moins de 8 %, les plus fortes valeurs de M2 % étant atteintes pour les plus petits bassins versants. Ce résultat confirme que la majorité du flux de MES passe en un minimum de temps. Moatar *et al.* (2006) ont montré que l'estimateur M2% pouvait être relié à l'erreur (biais et imprécision) faite sur le calcul du flux de MES en fonction de la fréquence d'échantillonnage. Les auteurs proposent une abaque pour définir le pas de temps d'échantillonnage à mettre en place pour calculer un flux de MES avec un biais et une précision souhaitées, en fonction de la taille du bassin versant. Par exemple, pour estimer un flux de MES à $+/-20$ % du flux de référence et avec un biais inférieur à 1 ou 2 %, les mesures doivent être effectuées à un intervalle inférieur à 3 jours pour des rivières sont le bassin versant est inférieur à 10 000 km^2. Pour des rivières avec un bassin versant compris entre 200 000 et 500 000 km^2, la fréquence d'échantillonnage recommandée est de 12 à 20 jours. Cette méthode permet d'évaluer l'erreur commise sur le calcul de flux à partir de données discrètes collectées à pas de fixe, comme c'est souvent le cas dans le cadre des réseaux de suivi mis en place sur les cours d'eau. Elle est donc intéressante pour évaluer la qualité des données existantes sur un bassin versant, dans le but de les utiliser pour calculer des flux de MES. La principale critique de cette méthode réside dans les recommandations des pas de temps d'échantillonnage à appliquer. En effet, les pas de temps fixes conseillés sont souvent trop fins pour être réalisables par prélèvements manuels. En outre, Quilbe *et al.* (2006) insistent sur l'importance du mode d'échantillonnage des crues dans la qualité de l'estimation des flux qui en découlera. Ces événements transportent en effet souvent plus de 50 % du flux de MES en 1 à 5 % du temps (Wren *et al.*, 2000; Walling et Webb, 1988). Pour les petits bassins versants réactifs, il n'est pas rare que la durée de passage des crues soit infra-journalière. Un échantillonnage à pas de temps fixe tel que ceux définis dans Variflux a alors toutes les chances de rater bon nombre d'événements de crue sur une année. Il apparaît alors plus intéressant de mettre en place soit une mesure en continu de la concentration en MES via un turbidimètre, soit d'effectuer un échantillonnage à pas de temps variable en fonction de l'hydrologie, en réduisant le pas de temps pendant les périodes de crue.

La procédure *a* a également été suivie par Phillips *et al.* (1999) pour comparer 22 méthodes d'interpolation et d'extrapolation sur deux cours d'eau anglais, la rivière Ouse à Skelton (3315 km^2) et la rivière Swale à Catterick Bridge (500 km^2). Les données de débit et de concentration en MES étaient disponibles à un pas de temps de 15 minutes pour la totalité de l'année 1995. Ils ont

sous-échantillonné ces jeux de données à une fréquence hebdomadaire, bimensuelle et mensuelle, en obtenant pour chaque fréquence le maximum de sous-échantillons possible. Ils comparent alors la justesse et la fidélité des différentes méthodes en fonction de la fréquence d'échantillonnage. Phillips *et al.* (1999) observent que la fidélité des méthodes augmente clairement avec la fréquence d'échantillonnage, tandis que la justesse est moins influencée. La surface du bassin versant apparaît comme un facteur influençant à la fois la justesse et la fidélité, les deux diminuant quand la surface diminue. Aucune méthode n'est juste et ne permet de retrouver le flux mesuré, mais les méthodes les plus précises sont celles utilisant des relations puissance.

La procédure *b* a été appliquée par Walling et Webb (1985) sur le jeu de données journalières de la rivière Exe en Angleterre. Ils en concluent qu'aucune des méthodes testées (méthodes 1 à 5 du Tab. 1.1) ne fournit un flux de MES correspondant au flux mesuré pour la rivière Exe, si on les applique à partir d'un échantillonnage discret des concentrations en MES. Dans certains cas, les procédures de calcul sous-estiment le flux tandis que dans d'autres cas, le manque de précision est tel qu'une comparaison entre les différents sites de prélèvement est impossible. Ils suggèrent de plus que ces conclusions tirées de l'étude de la rivière Exe sont généralisables à d'autres cours d'eau anglais.

Horowitz (2003) a étudié des chroniques longues (environ 20 ans) de données hebdomadaires collectées en cinq sites présentant des bassins versants couvrant plus de 10^6 km^2 à moins de 10^3 km^2 (le Mississippi à Thebes (USA), la Yadkin à Yadkin College (USA), la Green River à Munford (USA), la Schuylkill River (USA) et le Rhin à Maxau (Allemagne)). Il en déduit en suivant la procédure *b* que les méthodes de régression ont tendance à sous-estimer les pics de concentration en MES et à surestimer les concentrations en MES en régime de base. Ces écarts ont plus d'impact pour des estimations de flux journaliers ou hebdomadaires que pour des flux trimestriels ou plus. Il montre que pour une période de 20 ans ou plus, une unique relation puissance établie à partir de toutes les données disponibles génère une erreur de 1 % et que de meilleurs résultats sont obtenus en utilisant des relations annuelles. En revanche, pour les trois rivières anglaises, Dart, Creedy et Exe étudiées par Walling et Webb (1988), les estimations de flux de MES à partir des courbes de calibration sans correction et avec correction de Ferguson et de Duan ne reproduisent que 3 à 47 % du flux mesuré.

La comparaison des méthodes de calcul montre qu'aucune méthode n'est meilleure que les autres dans tous les cas (Preston *et al.*, 1989). Lang (1995) et Quilbe *et al.* (2006) soulignent que le choix de la meilleure méthode de calcul est forcément dépendant du site, puisque des paramètres tels que la taille du bassin versant (Horowitz, 2003), la fréquence d'échantillonnage (Phillips *et al.*, 1999)

ou la longueur de la période d'estimation (Littlewood *et al.*, 1998; Horowitz, 2003) influent sur les résultats des différentes méthodes.

Quelques constats reviennent toutefois régulièrement dans la littérature. La fidélité des méthodes d'interpolation dépend fortement de la fréquence de mesure. Lang (1995), se basant sur plusieurs études menées sur des données à fréquence journalière prélevées sur des cours d'eau français de 7 à 37 000 km^2 entre 1981 et 1993, préconise de favoriser les méthodes prenant en compte l'ensemble de la chronique de débit au lieu des seuls débits mesurés au moment de l'échantillonnage des concentrations en MES. Il souligne que les méthodes prenant en compte la moyenne des débits entre deux échantillons et la méthode avec le ratio de Beale donnent souvent de bons résultats.

Les résultats obtenus par les méthodes de régression par relations puissance (rating curve) sont très dépendants de la qualité de la relation, qui doit être établie sur la plus grande gamme de valeur possible. Quilbe *et al.* (2006) préconisent d'utiliser en priorité les méthodes d'extrapolation, dès lors que le coefficient de corrélation de la relation de régression établie est supérieur à 0,5 (ce qui signifie que 50 % de la variabilité des concentrations est expliquée par le débit). Le problème est que ce coefficient dépend fortement de l'échantillonnage. Le choix des échelles spatiale et temporelle de l'étude influence considérablement la corrélation des deux paramètres. L'identification des processus intervenant dans la relation entre la concentration en MES et le débit est par conséquent essentielle pour pouvoir reproduire la dynamique sédimentaire.

Enfin, quelle que soit la méthode de calcul choisie, Lang (1995) préconise d'effectuer une analyse de la sensibilité des résultats au mode de calcul.

1.4 Méthodes de calcul des flux de contaminants particulaires

Le calcul de flux de contaminant particulaire fait intervenir un paramètre supplémentaire, la teneur en contaminants des MES. Les variations inter- et intra-annuelles de la teneur en contaminants dans les MES, quel que soit l'élément trace considéré, sont de faible importance devant les variations du débit et de la concentration en MES (Horowitz, 1995, 2008). Horowitz (1995) considère qu'à l'exception de zones fortement impactées par des activités humaines ou lorsque les teneurs en éléments traces sont très proches des limites de quantification, les teneurs en éléments traces particulaires ne varient pas de plus d'un facteur deux. En un même site, les différences entre les moyennes annuelles sont en général inférieures aux erreurs associées aux méthodes d'analyse pour les déterminer (généralement 10 à 20 %), tandis que pour les débits et les concentrations en MES, ces différences peuvent être de deux ordres de grandeur (Horowitz, 2008).

Il est donc primordial d'établir la méthode de calcul du flux de MES la plus appropriée au jeu de données disponible avant de se préoccuper de la représentativité du jeu de données des teneurs en contaminants. Par rapport aux méthodes de calcul de flux de MES, peu de méthodes sont détaillées dans la littérature pour déterminer le flux de contaminants particulaires. Les méthodes proposées dans le rapport de Meybeck (1992), qui fait référence au niveau du recensement des méthodes de calcul de flux de contaminants en cours d'eau, sont reprises et discutées notamment par Cossa *et al.* (1994), Meybeck *et al.* (1994), Meybeck *et al.* (1996), IPL (2009).

Dans un cas idéal où le flux de MES et la teneur en contaminants seraient connus en continu à un pas de temps suffisamment fin pour que leurs variations temporelles soient enregistrées, le flux de contaminant particulaire pourrait être estimé par :

$$\Phi_c = \sum_{i=1}^{n} Q_i C_{c,i} C_{s,i} \tag{1.12}$$

avec n le nombre de mesure de la teneur en contaminant C_c, Q_i le débit au moment de la mesure de C_c et C_s la concentration en MES au moment de la mesure de C_c. Cette approche proposée par Meybeck (1992) repose sur l'hypothèse d'un flux de contaminant particulaire constant sur le pas de temps séparant deux mesures. Elle ne peut être utilisée que dans le cas d'un suivi intensif des teneurs en contaminants, comme celui mis en place pour mesurer les radionucléides dans le Rhône à Arles (Antonelli, 2010). Les radionucléides transportés en phase particulaire sont mesurés dans un échantillon composite constitué de prélèvements horaires sur une durée d'un mois hors période de crue. En période de crue, l'échantillon composite est réalisé sur 8 heures, à partir de prélèvements toutes les 20 minutes. Le flux particulaire est défini pour chaque jour en multipliant le flux de MES

journalier et la teneur en radionucléides du jour. Le flux annuel est la somme des flux journaliers. Ce suivi permet une prise en compte des variations temporelles de la teneur en radionucléides et prend en compte les fluctuations de débit et de concentration en MES.

Pour les raisons techniques et financières, les données de teneurs en contaminants disponibles sont généralement de nature discrète, avec un pas de temps mensuel, bimensuel, hebdomadaire ou au mieux journalier. Par exemple, dans le cas du réseau Eau et MES déployé sur le bassin versant du Rhône par l'AERMC entre 1991 et 2009 (AERMC, 2009), la fréquence de prélèvement est de quatre par an. Lorsque ce pas de temps est fixe, la probabilité d'échantillonner les événements de crue est considérablement réduite et en général, les données issues de suivis à pas de temps fixe n'apportent qu'une information limitée sur le comportement des teneurs en contaminants en périodes de crue. Meybeck (1992) précise que pour ce genre de suivi, cette méthode ne permet pas de prendre en compte les variations de débit et de concentration en MES et qu'elle conduit à une sous-estimation des flux.

Pour tenir compte des fluctuations du flux de MES, il est nécessaire d'effectuer le calcul du flux de contaminants au pas de temps de mesure des concentrations en MES, si possible à pas de temps horaire et en continu, et non à celui des teneurs en contaminants. Les teneurs en contaminants n'étant pas connues à cette fréquence, elles peuvent être soit interpolées, soit extrapolées.

1.4.1 Les méthodes d'interpolation

Parmi les méthodes d'interpolation, la plus simple est de déterminer la teneur moyenne en contaminant mesurée en un site sur la période choisie pour déterminer le flux, et de la multiplier par le flux annuel de MES. Horowitz *et al.* (2001a), Horowitz *et al.* (2001b) et Horowitz (2008) estiment que cette méthode est le seul moyen d'estimer les flux de contaminants particulaires dans les grands cours d'eau à partir de données obtenues avec une fréquence très lâche. Les données du réseau Eau et MES de l'AERMC, avec 4 prélèvements par an en moyenne, rentrent dans cette catégorie.

Plutôt que d'utiliser la moyenne des concentrations, Meybeck (1992) propose de supposer que la teneur en contaminants dans les MES reste constante entre deux prélèvements. La teneur mesurée lors d'un prélèvement est multipliée au flux de MES déterminé pour la période jusqu'au prélèvement suivant. Meybeck *et al.* (1994) recommandent cette méthode pour tous les contaminants particulaires pour le calcul de flux à l'échelle annuelle. Ils précisent qu'elle nécessite une bonne connaissance du flux de MES, qui peut être calculé à l'aide des méthodes présentées dans la section 1.3, plus particulièrement grâce aux méthodes 5 (pondération par le débit) et 8 à 10 (relation puissance avec

le débit). Cette méthode consiste à faire une interpolation constante des teneurs en contaminants entre deux prélèvements. Elle a notamment été appliquée pour déterminer les flux de cadmium particulaire dans le Lot et la Garonne par Audry *et al.* (2004), Blanc *et al.* (1999) et Schäfer et Blanc (2002), après s'être assurés que les variations temporelles du cadmium particulaire dans le Lot et la Garonne sont très inférieures à celles du débit ou de la concentration en MES.

Plutôt qu'une interpolation constante, Ollivier *et al.* (2011) et Ollivier *et al.* (2010) utilisent une interpolation linéaire des teneurs entre les prélèvements pour calculer les flux particulaires d'éléments traces et majeurs dans le Rhône à Arles. Cette méthode n'est valable que dans le cas de prélèvements haute fréquence.

Ces différentes méthodes d'interpolation permettent de tenir compte des fluctuations de débit et de concentrations en MES au cours de la période entre deux mesures. Ce n'est en revanche pas le cas des éventuelles variations des teneurs en contaminants, qui ne sont prises en compte que si l'échantillonnage a permis de les mesurer. Horowitz (2008) indique que ces approches peuvent conduire à une erreur de plus de 75 % sur le flux de contaminants particulaires et que les erreurs associées à des concentrations relativement faibles, ainsi que celles associées à un faible nombre d'échantillons, ont tendance à être supérieures à celles associées à de fortes concentrations et à un grand nombre de données.

1.4.2 Les méthodes d'extrapolation

Les méthodes d'extrapolation reposent sur l'hypothèse de l'existence d'une relation entre la teneur en contaminants et une autre grandeur d'influence, qui est mesurable en continu (Meybeck, 1992). La teneur en contaminant peut alors être estimée pour chaque pas de temps de mesure du flux de MES. Les relations les plus couramment recherchées sont des relations puissance entre la teneur ou le flux de contaminants et le débit ou la concentration en MES (Horowitz, 2008). Cette approche a été utilisée avec succès pour estimer les concentrations/flux de contaminants dissous (Quémerais *et al.*, 1999; Tronczynski et Héas-Moisan, 1996). En revanche, les avis sont partagés dans la littérature sur l'efficacité de cette approche pour les contaminants particulaires (Horowitz, 1995; Horowitz *et al.*, 2001a; Horowitz, 2008).

Horowitz (1995) et Horowitz (2008) indiquent que pour un certain nombre de petits cours d'eau de la région d'Atlanta (USA), la concentration en MES apparaît être un bon substitut pour estimer les teneurs en contaminants. Des régressions utilisant soit les teneurs massiques (mg/kg) soit les

teneurs volumiques (μg/L) en contaminants se sont en effet montrées prometteuses, bien que l'erreur absolue pour les deux éléments testés était plutôt élevée (30 à 38 % pour Cu et Zn).

En revanche, pour de grands cours d'eau tels que le Mississippi, le Colorado, le Rio Grande et la rivière Columbia, Horowitz (2008) relève que les coefficients de corrélation (R^2) entre le débit ou la concentration en MES et la teneur en contaminants particulaires ne dépassent pas 0,20, bien que les corrélations soient statistiquement significatives avec un intervalle de confiance à 95 %.

Cette observation pour les grands fleuves n'est pas généralisable. En effet, Quémerais *et al.* (1999) établissent une relation puissance significative (R^2=0,55) entre la teneur en mercure particulaire et la concentration en MES mesurées dans la rivière Ottawa, les teneurs en mercure particulaire diminuant quand la concentration en MES augmente.

Cette tendance à la dilution en période de crue et lorsque les concentrations en MES augmentent est relevée également par Radakovitch *et al.* (2008) pour les métaux, notamment le cuivre et le chrome, dans les MES du Rhône.

Pour plusieurs métaux analysés dans les MES de l'Isère notamment au cours de la crue de mai 2008, Dutordoir *et al.* (2012) établissent des corrélations significatives (R^2>0,75) entre la concentration en contaminants (exprimée en μg/L, elle correspond au produit des concentrations en MES et de la teneur en contaminants) et le débit. Minaudo (2011) et Dutordoir *et al.* (2012) notent plutôt une stabilisation des teneurs en plusieurs métaux particulaires de l'Isère autour d'une valeur appelée "minimum en crue" lorsque les concentrations en MES augmentent. Ils suggèrent que cette valeur caractérise le bruit de fond géochimique provenant de l'amont. Cette observation d'une valeur limite de dilution est également faite par Tronczynski et Héas-Moisan (1996) pour les teneurs en PCB dans les MES du Rhône. Selon les auteurs, ceci indique que les particules transportées par les fortes crues méridionales contiennent une concentration relativement constante en PCB.

La forme et la significativité des relations varie donc selon les composés (Tronczynski et Héas-Moisan, 1996; Tronczynski et Tixier, 2012). La tendance à la dilution des teneurs lorsque la concentration en MES augmente peut ainsi être due à des apports de particules moins contaminées en provenance de l'amont. Quémerais *et al.* (1999) font ce constat pour les teneurs en mercure particulaire dans le Saint-Laurent, qui diminuent lorsque les affluents moins contaminés sont en crue. Ces variations de l'origine des MES qui circulent dans le cours d'eau compliquent considérablement l'établissement de relations significatives entre les teneurs en contaminants et les concentrations en MES, notamment dans le cas des grands cours d'eau, pour lesquels les sources de MES peuvent être multiples.

Horowitz (2008) souligne considère que les erreurs associées à l'établissement des teneurs en contaminant à l'aide d'une relation puissance ne sont pas limitées aux faibles concentrations, mais couvrent la totalité de la gamme. Il indique que quand les concentrations en MES ne sont pas disponibles et sont obtenues à partir d'une relation puissance avec le débit, l'erreur absolue sur l'estimation des teneurs en contaminants peut augmenter jusqu'à 90 %.

Meybeck (1992) propose comme variante de l'utilisation d'une relation puissance entre la teneur en contaminant et la concentration en MES, d'utiliser un bilan classé du transport des MES. Ce type de bilan s'apparente à la méthode 11 pour le flux de MES. Les flux de contaminants ne sont pas reconstitués pour chaque mesure de concentration en MES mais par classe de concentration en MES. Cette méthode est recommandée lorsque le bilan de MES est bien établi et la relation contaminant particulaire - MES est connue et stable. Elle est alors applicable pour des bilans pluriannuels et des régimes de MES très irréguliers (rivières méditerranéennes).

1.4.3 Conclusion

Il n'existe pas à notre connaissance d'étude de comparaison des différentes méthodes de calcul de flux de contaminants particulaires du même type que celles menées pour les flux de MES. La principale raison est probablement que les jeux de données de teneurs en contaminants établis à pas de temps fin et sur du long terme, permettant d'établir des flux de contaminants particulaires de référence fiables, restent rares. La constitution de jeux de données plus complets, permettant d'évaluer les variations spatiales des teneurs en contaminants reste un enjeu d'actualité.

1.5 Incertitudes sur le calcul de flux de contaminants particulaires

1.5.1 Expression de l'incertitude combinée

Selon le guide pour l'expression de l'incertitude de mesure (GUM, JCGM (2008)), référence internationale en analyse d'incertitudes, l'erreur occasionnée par un mesurage est constituée d'une composante aléatoire et d'une composante systématique. Pour chaque source d'incertitude sur la mesure du flux citée ci-dessus, des erreurs aléatoires et systématiques peuvent par conséquent être identifiées.

L'erreur aléatoire est due aux variations temporelles et spatiales imprévisibles de grandeurs influençant le paramètre mesuré ou "mesurande". Elle se traduit par des variations pour les observations répétées du mesurande. Cette erreur ne peut pas être compensée mais peut être réduite en augmentant le nombre d'observations. Son espérance mathématique est égale à zéro.

L'erreur systématique est due à l'effet reconnu et prévisible d'une grandeur d'influence sur le mesurande. Cet effet peut être quantifié et une correction peut être appliquée pour le compenser. Une fois la correction effectuée, l'espérance mathématique de l'erreur aléatoire restante est supposée égale à zéro. Selon le GUM, les erreurs systématiques quantifiables doivent être corrigées. L'incertitude sur cette correction doit alors être traitée comme celles issues d'effets aléatoires. Le mesurage reste alors une estimation de la valeur du mesurande en raison de l'incertitude provenant des effets aléatoires et de la correction imparfaite du résultat pour les effets systématiques.

Pour tenir compte des effets systématiques dans le modèle d'erreur, on ré-écrit l'Eq. 1.5 comme suit :

$$\Phi_c = k_Q \; k_{C_s} \; k_{C_c} \; \sum_{i=1}^{N} Q_i \; C_{s,i} \; C_{c,i} \; T_i \tag{1.13}$$

avec $k_Q = k_{C_s} = k_{C_c} = 1$ [-], les coefficients de correction des effets systématiques sur la mesure du débit, de la concentration en MES et de la teneur en contaminant. Plusieurs effets systématiques peuvent être identifiés pour un même paramètre ; dans ce cas, le coefficient de correction appliqué à la mesure du paramètre correspond au produit des coefficients de correction des effets systématiques identifiés.

D'après l'équation de propagation des incertitudes proposée par le GUM (JCGM, 2008), l'incertitude-type sur le flux de contaminant, en supposant que les sources d'erreur sont indépendantes, s'écrit :

$$u^2(\Phi_c) = u^2(k_Q) + u^2(k_{C_s}) + u^2(k_{C_c}) + \sum_{i=1}^{N} \frac{\Phi_{c,i}^2 \left[u^2(Q_i) + u^2(C_{s,i}) + u^2(C_{c,i})\right]}{\Phi_c^2} \tag{1.14}$$

Toutes les incertitudes-types, notées u, sont des estimations d'écarts-types de distributions d'erreur supposées gaussiennes et de moyenne nulle, et les u^2 correspondent à leurs variances. Le niveau

de confiance correspondant est donc de 68%. On exprimera l'incertitude finale ou "combinée" à un niveau de confiance de 95 %, en appliquant un coefficient d'élargissement $k = 2$ (JCGM, 2008) sous hypothèse de distribution gaussienne.

Les incertitudes notées $u(k_Q)$, $u(k_{C_s})$ et $u(k_{C_c})$ sont associées à la correction des différents effets systématiques identifiés pour chaque paramètre Q, C_s et C_c.

Les composantes d'incertitude $u(Q_i)$, $u(C_{s,i})$, $u(C_{c,i})$ qui apparaissent dans l'Eq. 1.14 correspondent à des effets aléatoires sur les estimations de débit, concentration et teneur moyens sur les intervalles de temps T_i. Pour chaque paramètre, elles correspondent à la somme de la variance sur la mesure instantanée u^2_{obs} et de la variance u^2_{calc} entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne du paramètre sur l'intervalle de temps T_i. Les erreurs u^2_{obs} et u^2_{calc} sont détaillées pour chaque paramètre dans les paragraphes suivants.

L'Eq. 1.14 indique que les incertitudes correspondant aux périodes où le flux $\Phi_{c,i}$ est le plus fort auront plus d'impact sur l'incertitude finale que les incertitudes correspondant à des périodes de flux faible. De plus, pour des périodes à flux équivalent, la contribution de ces composantes d'incertitude à l'incertitude finale sera réduite en $1/\sqrt{N}$, avec N le nombre d'échantillons temporels. Un échantillonnage temporel plus fréquent sur les périodes de flux important réduit donc l'incertitude finale de façon importante, alors qu'un échantillonnage temporel plus relâché sur les périodes de flux faible aura moins d'impact.

Une fois estimées les composantes d'incertitude jugées non négligeables, elles peuvent être combinées selon l'Eq. 1.14 pour évaluer l'incertitude globale, $u(\Phi_c)$ en %, sur le flux de contaminant. Pour une utilisation pratique, cette incertitude finale sera multipliée par un coefficient d'élargissement $k = 2$, pour obtenir un niveau de confiance de 95%. Ainsi, l'incertitude élargie sur le flux (en %) vaudra simplement :

$$U(\Phi_c) = 2\ u(\Phi_c) \tag{1.15}$$

Le flux sera donc exprimé comme $\Phi_c \pm U(\Phi_c)(\%)$, ou bien $\Phi_c \pm U(\Phi_c)\Phi_c$.

Enfin, il est très intéressant de présenter la contribution relative des différentes sources d'incertitude à l'incertitude finale, sous forme d'un camembert. Les contributions sont calculées sous forme de variances partielles rapportées à la variance totale, $u^2(\Phi_c)$, toujours selon l'Eq. 1.14.

Pour chaque paramètre, les sources d'incertitudes liées à l'établissement du flux sont de trois natures (Roux, 2011) :

- Les erreurs liées à la **mesure** de chaque paramètre dépendent de la technique de mesure employée et des différentes étapes de la chaîne analytique déployée.
- Les erreurs liées à la **représentativité spatiale** de la mesure dépendent de l'hétérogénéité du paramètre au sein de la section et du dispositif de mesure mis en place.
- Les erreurs liées à **représentativité temporelle** de la mesure dépendent de la fréquence de l'échantillonnage par rapport à la variabilité temporelle du paramètre. Elles se propagent dans la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne du paramètre sur l'intervalle de temps T_i.

Les sources d'incertitude, associées à des effets systématiques (k) ou à des effets aléatoires (u), identifiées pour le calcul de flux de contaminants particulaires Φ_c sont listées dans la Fig. et explicitées dans les §1.5.2 à 1.5.4. Les valeurs typiques présentées en italique sont issues de la littérature et nous présentons en gras la méthode d'estimation de chaque incertitude employée dans la thèse.

1.5.2 Incertitudes associées à la mesure du débit

1.5.2.1 Effets systématiques

L'erreur systématique associée à la mesure du débit est due au tracé de la courbe de tarage, aux jaugeages utilisés pour la construire et à l'enregistrement de niveau d'eau (McMillan *et al.*, 2012). Pour une station hydrométrique jaugée avec des techniques non biaisées et pour laquelle l'enregistrement de niveau d'eau est recalé régulièrement, on considérera que l'erreur systématique est réduite par le tracé même de la courbe de tarage.

L'établissement de bilans d'eau sur le réseau hydrographique est un bon moyen de quantifier cette incertitude. L'OSR a réalisé de tels bilans annuels sur le Rhône de Valence à Arles (Linne, 2011) et dans cette thèse nous présentons les bilans du Léman à Ternay (Cf. Cf. §3.5.1). Ces bilans sont typiquement bouclés à 2 à 6 % près, avec un biais négatif qui s'explique bien par les apports intermédiaires des sous-bassins non-jaugés. Ces bilans réalisés en liaison avec les producteurs ont parfois permis d'améliorer la gestion des courbes de tarage, comme pour la station du Rhône à Anthon par exemple.

La mesure du débit étant fournie pour l'ensemble de la section de mesure, la question de la variation spatiale du paramètre au sein de la section ne se pose pas.

Elle peut en revanche se poser dans le cas d'une modélisation du débit pour rapporter la mesure de débit au niveau de la section de mesure de la concentration en MES (à la station de Jons par exemple). Cette source d'erreur est considérée comme négligeable.

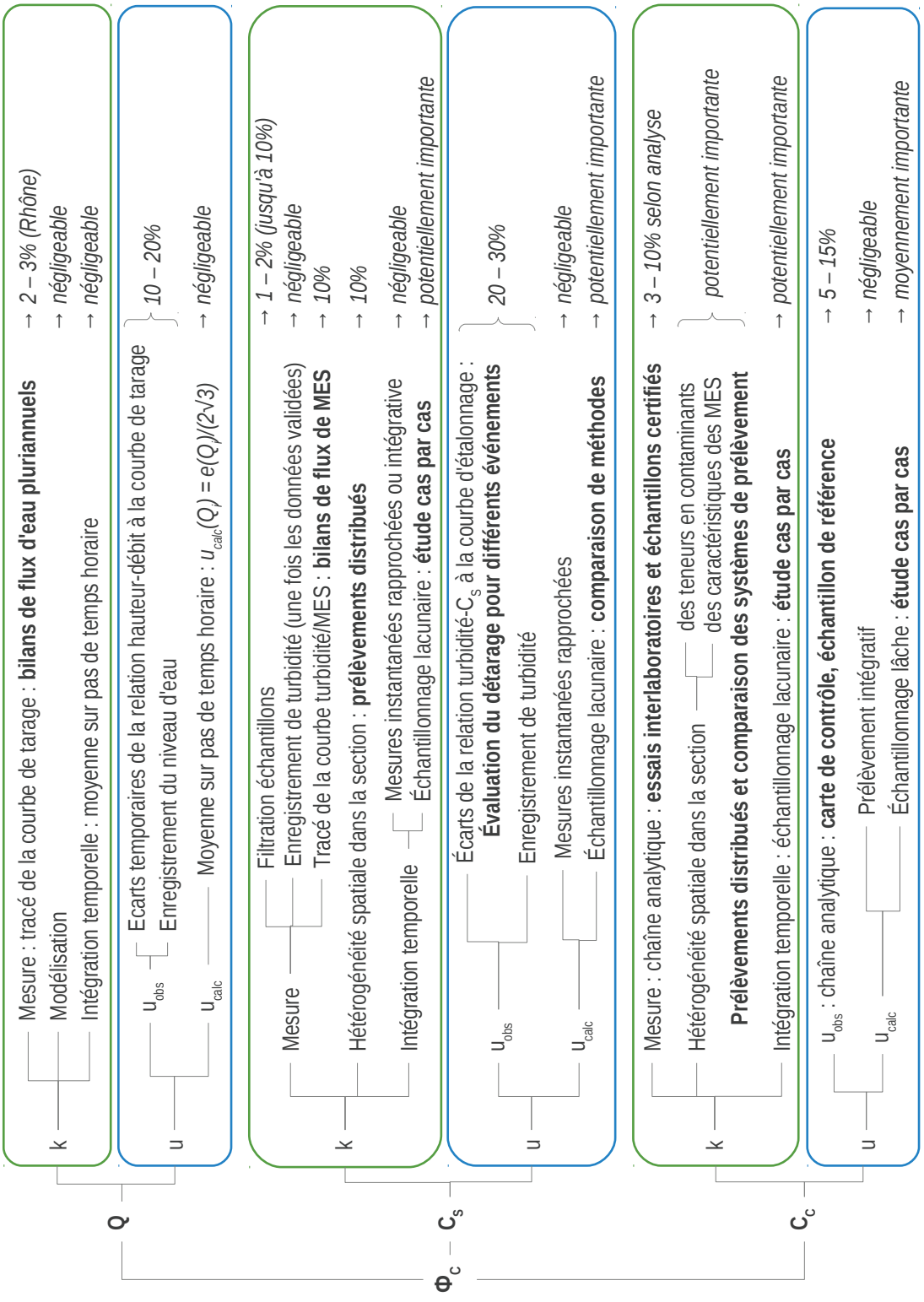


FIGURE 1.1 – Arbre des erreurs associées au calcul de flux de contaminants particulaires. Vert : effets systématiques (k). Bleu : effets aléatoires (u). En gras : méthode d'estimation employée dans la thèse. En italique : valeur typique issue de la littérature (Cf. §1.5.2 à 1.5.4)

L'erreur systématique sur la représentativité temporelle du débit est entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne de débit Q_i sur l'intervalle de temps T_i. On supposera généralement que le pas de temps de mesure est suffisamment fin pour que la procédure d'intégration temporelle des débits n'entraîne pas de biais significatif.

1.5.2.2 Effets aléatoires

L'incertitude de mesure du débit instantané liée aux effets aléatoires $u_{obs}(Q_i)$ est due principalement aux écarts temporaires de la relation hauteur-débit à la courbe de tarage, et aux incertitudes sur l'enregistrement de niveau d'eau. L'incertitude $u_{obs}(Q_i)$ communément admise sur un débit instantané issu d'une courbe de tarage de bonne qualité est de ±10 % (Olivier *et al.*, 2009; Pierrefeu, 2013). Pour des stations de moindre qualité (surtout à bas débit), l'incertitude peut atteindre 20% voire plus. Pour une courbe de tarage à deux niveaux, l'incertitude est de 10 à 15 %. Elle dépend de la différence de cote de plan d'eau entre les points de mesure amont et aval. Si cette différence est significative (au moins 5 à 10 cm), la méthode fournit une bonne estimation du débit.

Les incertitudes sur les débits produits sont variables en fonction des stations, de la gamme de débit, du type de courbe de tarage, de leur stabilité et sensibilité, et de la densité et qualité des jaugeages disponibles. Le débit n'est pas directement mesuré mais est calculé à partir de la mesure en continu des niveaux d'eau et d'une courbe de tarage. Les chroniques sont donc susceptibles d'être révisées et ré-actualisées et il est recommandé de rester en contact avec le gestionnaire de chaque station utilisée, pour obtenir les dernières chroniques disponibles et avoir des informations détaillées sur la fiabilité et les incertitudes associées aux chroniques de débit.

Même si on peut considérer une valeur relative constante, cette incertitude dépend en général fortement du niveau de débit (incertitudes plus fortes à bas débit, et en hautes eaux peu ou pas jaugées). Des travaux sont en cours à Irstea, en collaboration avec le SCHAPI[5], la CNR et EDF-DTG, afin de développer et valider des méthodes de quantification des incertitudes sur les jaugeages (Le Coz *et al.*, 2012; Cohn *et al.*, 2013; Le Coz *et al.*, 2013a) et les hydrogrammes issus de courbes de tarage (Petersen-Overleir, 2004; Le Coz *et al.*, 2013b).

L'erreur aléatoire $u_{calc}(Q_i)$ est entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne de débit Q_i sur l'intervalle de temps T_i. Etant donnée la haute fréquence d'échantillonnage, on supposera que la procédure d'intégration temporelle des débits n'entraîne pas d'incertitude significative. Lorsque Q_i est obtenu par intégration ou moyenne de mesures instantanées, on peut considérer que $u_{calc}(Q_i) = e(Q_i)/(2\sqrt{3})$ avec $e(Q_i)$ l'erreur maximale possible sur Q_i, qui peut être prise égale à l'amplitude de variation des débits instantanés sur la période T_i, par exemple. Cette façon d'estimer

5. Service central d'hydrométéorologie et d'appui à la prévision des inondations

l'incertitude-type est fondée sur l'hypothèse d'une distribution rectangulaire bornée par des valeurs extrêmes (Cf. GUM, JCGM (2008)).

1.5.3 Incertitudes associées à la mesure de la concentration en MES

1.5.3.1 Effets systématiques

L'erreur systématique associée à la mesure de la concentration en MES est due au tracé de la courbe turbidité/MES, aux échantillons filtrés utilisés pour la construire et à l'enregistrement de turbidité. L'erreur sur les échantillons filtrés est estimée à 1 à 2 % par Mano (2008), et peut donc être considérée comme négligeable sauf dans le cas de problème de prélèvement. Quant à l'erreur systématique sur l'enregistrement de turbidité, elle est négligeable une fois les données validées. L'effet systématique dû au tracé de la courbe turbidité/MES est d'autant plus important que le jeu de données de calage est peu fourni, et qu'on cumule le flux sur une période courte (événement). Clifford *et al.* (1995) ont montré que le signal de sortie d'un turbidimètre peut varier d'un facteur 10 entre deux échantillons de même concentration, mais constitués de particules sableuses pour l'un et argileuses pour l'autre. D'autre part, Mano (2008) indique que pour l'Isère, la pente de la relation linéaire entre la turbidité et la concentration en MES peut varier de 10 % entre les événements de crue, alors que les particules transportées présentent la même granulométrie. L'incertitude sur le tracé de la courbe turbidité/MES, potentiellement importante, peut être évaluée en considérant des bilans de flux MES réalisés avec différents scénarios de courbes d'étalonnage, événementielles ou bien moyennes inter-événementielles (Saguintaah, 2012; Thollet *et al.*, 2013).

L'erreur systématique liée à l'hétérogénéité des concentrations de MES sur la section de cours d'eau est potentiellement importante. Horowitz (2008) indique que dans le cas de MES constituées d'un mélange de particules sableuses (> 63 μm) et de particules argileuses (< 63 μm), la concentration et les caractéristiques des MES varient verticalement et horizontalement au sein d'une section, sous l'effet de la distribution des vitesses d'écoulement. Les concentrations en MES peuvent varier horizontalement d'un facteur 2 entre le centre de l'écoulement, où les concentrations les plus fortes sont mesurées, et la zone proche des berges. Verticalement, les concentrations en MES peuvent varier d'un facteur 1,5 entre la surface et le fond, où les concentrations les plus fortes sont mesurées. Toutefois, pour les cas présentés dans Horowitz (2008), les variations de concentrations sont principalement dues à des variations de la concentration en particules > 63 μm. Nous rappelons que dans ce travail, nous nous intéressons exclusivement aux particules fines qui composent le washload et dont le diamètre est en général inférieur à 63 μm.

Horowitz (2008) note pourtant que des variations de concentration en MES au sein de la section ont été constatées pour certains cas où les MES sont composées uniquement de particules < 63 μm,

cependant ces variations semblent de moindre importance. Il recommande de ne pas se contenter d'un point unique de prélèvement dans la section pour déterminer la concentration en MES, mais de favoriser des échantillons composés de prélèvements effectués en plusieurs points sur la largeur et la profondeur de la section. Mano (2008) indique que dans le cas de l'Isère, la concentration en MES présente des variations de l'ordre de 10 % au sein de la section, mais que ces variations ne sont pas significatives en comparaison des erreurs associées au prélèvement et à son analyse en laboratoire.

Dans le cas des particules fines en suspension, il apparaît donc qu'une erreur peut être faite en considérant que la mesure des concentrations en MES effectuée en un point est représentative de la section, mais que cette erreur peut être négligée dans le cas des particules les plus fines, qui sont étudiées dans cette thèse. La distribution des concentrations en MES au sein d'une section peut être déterminée en menant des campagnes de prélèvement distribué. En pratique, l'homogénéité des concentrations en MES sera considérée comme atteinte lorsque les variations de concentration dans la section seront inférieures ou équivalentes aux incertitudes de mesure, ou à une tolérance définie (typiquement 5 à 10 % selon les applications). La mesure de concentration en MES effectuée en un point unique de la section sera alors considérée comme représentative de la section.

L'erreur systématique liée à l'hétérogénéité des concentrations de MES sur la section de cours d'eau et doit être évaluée pour chaque site de mesure, et selon les événements hydrologiques, idéalement à partir des résultats de campagnes de prélèvements distribués dans la section. Les résultats des campagnes de prélèvements distribués menées dans cette thèse au niveau de la station de Jons sur le Rhône sont ainsi présentés dans le §3.3.3.

Une erreur systématique est entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne de concentration en MES $C_{s,i}$ sur l'intervalle de temps T_i. On supposera généralement que la procédure d'intégration temporelle des concentrations n'entraîne pas de biais significatif.

1.5.3.2 Effets aléatoires

L'erreur aléatoire de mesure de concentration instantanée $u_{obs}(C_{s,i})$ est due principalement aux écarts temporaires de la relation turbidité-concentration en MES à la courbe d'étalonnage, et aux incertitudes sur l'enregistrement de turbidité. Cette incertitude non négligeable est à évaluer en considérant les détarages observés entre différents événements bien documentés par des prélèvements (Cf. Gippel (1995), Brasington et Richards (2000), Clifford *et al.* (1995), Vongvixay (2012) et Saguintaah (2012)). L'incertitude sur les concentrations mesurées par un turbidimètre bien étalonné est est estimée à 20 % par Navratil *et al.* (2011) et à 30 % par Poirel (communication personnelle), mais peut varier de moins de 10 % à 75 %. Même si on peut considérer une valeur relative constante, cette incertitude dépend en général fortement du niveau de turbidité (incertitudes plus fortes à basse

turbidité, et en gamme extrapolée non échantillonnée).

L'erreur aléatoire $u_{calc}(C_{s,i})$ est entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne de concentration en MES $C_{s,i}$ sur l'intervalle de temps T_i. Lorsque $C_{s,i}$ est obtenue par intégration ou moyenne de mesures instantanées rapprochées (turbidité ou modèle hydrologique), elle peut être considérée comme : $u_{calc}(C_{s,i}) = e(C_{s,i})/(2\sqrt{3})$ avec $e(C_{s,i})$ l'erreur maximale possible sur $C_{s,i}$, qui peut être prise égale à l'amplitude de variation des concentrations instantanées sur la période T_i, par exemple. En pratique, elle est négligeable.

En revanche, lorsque l'échantillonnage temporel est très lâche, et que $C_{s,i}$ ne peut pas être établie par simple interpolation ou moyenne, une évaluation adéquate de l'incertitude d'intégration temporelle, alors beaucoup plus forte, doit être menée par exemple en comparant les résultats obtenus par différentes méthodes (Cf.§1.3.5 et 4.3)

1.5.4 Incertitudes associées à la mesure de teneur en contaminants particulaires

1.5.4.1 Effets systématiques

L'erreur systématique de mesure liée aux différentes étapes de la chaîne analytique est à évaluer en fonction de la substance analysée et des méthodes de traitement de l'échantillon et d'analyse au laboratoire.

Dans le cas des contaminants étudiés dans cette thèse, la justesse des méthodes analytiques est déterminée en participant à des essais d'intercomparaison et en analysant des matériaux de référence certifiés (Cf. §2.3.5 et 2.3.6). Pour la somme des PCBi, elle est de l'ordre de 3 à 10 % selon les congénères et pour le mercure, elle est de 7 %.

L'erreur systématique liée à la représentativité spatiale de l'échantillonnage des MES dépend de la molécule étudiée, du dispositif de prélèvement utilisé et de l'hétérogénéité des teneurs et granulométries des MES sur la section de cours d'eau. Cette incertitude est potentiellement importante et doit être évaluée pour chaque molécule, pour chaque technique de prélèvement, chaque site de mesure, et selon les événements hydrologiques, idéalement à partir des résultats de campagnes de comparaison pour déterminer le biais selon le dispositif de prélèvement, et de prélèvements distribués dans la section pour quantifier l'hétérogénéité de la composition des particules.

En fonction des techniques de prélèvement mises en œuvre, les particules échantillonnées peuvent présenter des caractéristiques différentes de celles des particules dans le cours d'eau, notamment en termes de granulométrie. Schäfer et Blanc (2002) signalent par exemple que les MES collectées à l'aide de pièges à sédiment présentent une granulométrie plus grossière que celle des particules collectées par centrifugation lorsque la vitesse d'écoulement est supérieure à 0,5 m/s. La comparaison

des systèmes de prélèvement mise en œuvre dans cette thèse en vue des analyses de contaminants est présentée dans le §2.4.2.

Des variations de granulométrie au sein de la section ont également été mises en évidence par Horowitz (2008), qui les associent principalement à l'effet de la distribution des vitesses dans la section. Ainsi, la proportion de particules grossières (> 63 μm) au sein d'un échantillon de MES a tendance à augmenter horizontalement au centre de l'écoulement et verticalement, au fond de la section. Pour les cas présentés par Horowitz (2008), la proportion de particules < 63 μm peut varier de 25 à 67 % des échantillons de MES en fonction de la position dans la section. Cette hétérogénéité est constatée à la fois en période de régime de base et en périodes de crue.

Plusieurs études ont montré que les particules les plus fines sont les particules porteuses de contamination (Abarnou *et al.*, 1987; Pignatello et Xing, 1996; Horowitz, 2008; Jambon et Thomas, 2009; Lick, 2009). Une moindre proportion de particules fines (< 63 μm) dans les échantillons est donc susceptible de se traduire par une diminution de la teneur en contaminants particulaires, sous l'effet d'une dilution par les particules grossières moins contaminées. Ainsi pour les cas présentés par Horowitz (2008), les teneurs en contaminants particulaires varient d'un facteur 1,5 à 2, selon les contaminants, au sein de la section sous l'effet des variations granulométriques.

L'erreur systématique entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne de teneur $C_{c,i}$ sur l'intervalle de temps T_i peut être significative dans les cas où l'échantillonnage temporel est lacunaire (par exemple, certains événements sont systématiquement sous-représentés). Elle doit être estimée au cas par cas.

1.5.4.2 Effets aléatoires

L'erreur aléatoire de mesure de la teneur en contaminant $u_{obs}(C_{c,i})$ liée aux différentes étapes de la chaîne analytique est à évaluer en fonction de la substance analysée et des méthodes de traitement de l'échantillon et d'analyse au laboratoire.

Dans le cas des méthodes d'analyse des contaminants déployées dans cette thèse, les incertitudes analytiques sont déterminées en établissant des cartes de contrôles (Cf. §2.3.5 et 2.3.6). Pour la somme des PCBi, l'incertitude est de l'ordre de 5 à 15 % selon les congénères et pour le mercure, elle est de 5 %.

L'erreur aléatoire $u_{calc}(C_{c,i})$ entraînée par la procédure de calcul pour établir la valeur moyenne de $C_{c,i}$ sur l'intervalle de temps T_i dépend de la fréquence de l'échantillonnage. Lorsque $C_{c,i}$ est mesurée par analyse d'un échantillon obtenu par un dispositif de prélèvement intégrateur (piège à sédiment, échantillon fractionné à prélèvement fréquent), on peut évidemment négliger $u_{calc}(C_{c,i})$. En

revanche, lorsque l'échantillonnage temporel est très lâche, des hypothèses sur la variation possible de $C_{c,i}$ doivent être posées (exemple : teneur constante, ou dilution selon C_s ou Q). Une analyse des incertitudes engendrées par ces hypothèses de calcul doit alors être menée. Une option est d'évaluer simplement $u_{calc}(C_{c,i}) = e(C_{c,i})/(2\sqrt{3})$ avec $e(C_{c,i})$ l'erreur maximale possible sur $C_{c,i}$, qui peut être prise égale à l'amplitude de variation des teneurs échantillonnées ou estimées possibles sur l'ensemble de la période de cumul du flux de contaminant.

1.5.5 Conclusion sur les incertitudes

Nous avons vu que trois types de sources d'incertitude apparaissent dans le calcul du flux de contaminants particulaires, 1) les incertitudes liées à la mesure des trois paramètres (débit, concentration en MES et teneur en contaminants), 2) les incertitudes associées à la représentativité spatiale de la mesure des trois paramètres et 3) les incertitudes associées à la représentativité temporelle de la mesure des trois paramètres. Les erreurs entraînées peuvent être classées en effets systématiques ou en effets aléatoires et sont prises en compte dans le modèle d'incertitude présenté dans l'Eq. 1.14.

Les éléments issus de la bibliographie et d'une première analyse a priori des incertitudes motivent les stratégies de mesure et de recherche mises en œuvre dans la thèse, dont les résultats permettront d'en tester la validité.

Ainsi, nous avons vu que les variations temporelles de la concentration en MES et du débit sont considérables devant les variations temporelles de la teneur en contaminants. Le débit est en général mesuré en continu avec un pas de temps qui dans la plupart des cas permet d'enregistrer ses variations temporelles. En revanche, les données de concentration en MES sont en général issues de suivis discrets et les variations de la concentration en MES ne sont pas enregistrées en continu, sauf dans le cas de la mise en place d'un turbidimètre calibré. Il semble donc que la principale source d'incertitude sur le calcul de flux est associée à la représentativité temporelle de la concentration en MES.

Définir le flux de MES avec une incertitude la plus réduite possible, semble donc être le principal verrou de la détermination du flux de contaminant particulaire. La diminution de l'incertitude sur la mesure de la concentration en MES passe principalement par la question de la représentation temporelle de la mesure, et il apparaît qu'une mesure en continu, à pas de temps horaire est le seul moyen d'enregistrer les variations de ce paramètre. Dans le cas où la concentration en MES n'est connue que de manière discrète, l'enjeu sera donc de trouver la méthode de calcul du flux de MES permettant de réduire au maximum l'incertitude, par exemple en modélisant au mieux la dynamique temporelle des concentrations en MES.

A priori, les erreurs sur la représentativité spatiale et temporelle des teneurs en contaminants arrivent en seconde position dans l'incertitude sur le flux. Elles sont très liées aux variations des caractéristiques des MES, et notamment de la granulométrie. L'enjeu est donc de mieux documenter les variations des teneurs en contaminants et d'identifier les processus et les paramètres intervenant dans ces variations. Il apparaît indispensable de déterminer les relations entre les teneurs en contaminants et les caractéristiques des MES (concentration, granulométrie, composition des particules) pour mieux appréhender la dynamique des teneurs en contaminants.

D'autres part, les différents dispositifs de prélèvement sont susceptibles de modifier les caractéristiques des MES collectées. L'identification des relations entre les caractéristiques des MES et les teneurs en contaminant est essentielle pour pouvoir corriger le biais induit par les différentes techniques de prélèvement.

Il est important de signaler que dans le cas où la concentration en MES est obtenue à partir d'une relation établie avec le débit, le modèle d'incertitude de l'Eq. 1.14 ne s'applique pas, puisqu'alors les sources d'erreur ne peuvent pas être considérées comme indépendantes. La quantification des incertitudes sur la relation $C_s(Q)$ est alors délicate, et il relève du même type d'analyse d'incertitude que dans le cas des courbes de tarage hauteur-débit. Cette incertitude peut toutefois être approchée en effectuant des bilans interannuels de flux de MES et en calculant l'écart-type entre les années.

2 Méthodes pour l'observation et l'interprétation des flux particulaires

2.1 Introduction

Nous présentons dans ce chapitre les différentes techniques utilisées dans cette thèse sur le Rhône et ses affluents pour mesurer la concentration en MES et la teneur en contaminants. La stratégie d'observation choisie privilégie un échantillonnage quasi-continu des concentrations en MES (par turbidimétrie) et teneurs en contaminants (par piège intégratif), associé à des prélèvements de référence (manuels, ou par centrifugation) et à une caractérisation détaillée des particules en termes de granulométrie et de taux de carbone organique. Les techniques de mesure en continu telles que la turbidimétrie et l'utilisation de pièges à sédiment font l'objet de développement et de validation spécifiques présentés dans ce chapitre. Les incertitudes associées à chaque technique de mesure sont quantifiées ou estimées.

Nous proposons une méthode innovante d'interprétation des distributions granulométriques, adaptée au caractère multimodal de nos échantillons. Cette méthode offre une nouvelle vision de la granulométrie basée sur l'identification et la caractérisation des sous-populations granulométriques présentes. Elle nous permet une interprétation nouvelle de la composition des échantillons et d'approcher la notion de phases porteuses de contamination. Nous montrons que les dispositifs de prélèvements, lorsqu'ils sont mis en place dans des conditions défavorables, peuvent entrainer un biais d'échantillonnage des particules qui se traduit par la présence de particules grossières, non porteuses de contamination. Nous proposons une méthode pour corriger ce biais. Une technique de normalisation est également adoptée pour permettre de comparer les niveaux de contamination des différents échantillons en s'affranchissant de l'affinité variable des contaminants pour des particules aux caractéristiques différentes.

2.2 Mesure des concentrations en MES

Comme précisé dans la section 1.2.1, nous nous intéressons aux particules fines transportées de façon homogène en suspension dans la colonne d'eau (washload). Il existe plusieurs méthodes à l'heure actuelle pour mesurer cette partie du transport solide ; Wren *et al.* (2000) et Mano (2008) en ont fait un inventaire détaillé. Ils distinguent les mesures par prélèvement (avec une bouteille ou par pompage) des autres techniques acoustique, laser, nucléaire et optique ; et ils comparent leurs limites, avantages et domaine d'application (Cf. Chap. 1. Dans cette section, seules les méthodes employées dans cette thèse et par les partenaires OSR sont présentées.

La technique de mesure de la concentration en MES sur le Rhône varie en fonction des différents producteurs de données. Irstea, les services suisses de l'OFEV et Véolia appliquent la méthode par prélèvement puis filtration-pesée et la CNR utilise une variante de cette méthode dite méthode de la "crêpe" et des pycnomètres. Ces méthodes fournissent directement une valeur de concentration en MES, mais elles restent ponctuelles dans le temps et dans l'espace. Pour effectuer une mesure en continu, Irstea et EDF ont recours à la turbidimétrie qui, après calibration, permet d'estimer indirectement la concentration en MES.

2.2.1 Prélèvement puis Filtration-Pesée

Un échantillon d'eau est prélevé directement dans le cours d'eau soit manuellement, soit à l'aide d'un préleveur automatique. Le prélèvement manuel peut être réalisé avec un seau et une corde depuis la berge ou depuis un pont. Il peut être réalisé directement dans le flacon dans le cas de plus petits cours d'eau ou en période de basses eaux. Cette technique a l'avantage d'être peu coûteuse mais ne permet, dans la plupart des cas, qu'une mesure de la concentration des MES de surface, en un point de la section et à un pas de temps large. Seuls certains suivis particuliers tels que celui des chasses de juin 2012 (Cf. §3.4.2), mené sur une courte période et nécessitant une importante logistique, permettent de suivre en quasi-continu les concentrations en MES par cette méthode.

Nous avons réalisé ce type de prélèvement à chaque fois que nous avons effectué un prélèvement de MES pour analyse chimique, afin de connaître la concentration en MES au moment du prélèvement. Ces prélèvements ont également été utilisés pour établir la relation de calibration entre la turbidité et la concentration en MES (Cf. Chap.3).

FIGURE 2.1 – Bouteille de prélèvement Niskin

Les prélèvements peuvent également être réalisés à l'aide d'une bouteille de prélèvement de type Niskin (Cf. Fig. 2.1). Ce système est constitué d'un tube en plastique muni d'un clapet à chaque extrémité. Il est descendu clapets ouverts dans l'eau à l'aide d'un câble jusqu'à la profondeur voulue. L'envoi d'un messager (masse) le long du câble provoque la fermeture des clapets et le piégeage de l'eau dans la bouteille. L'utilisation d'une bouteille Niskin permet de faire des prélèvements à différentes profondeurs dans une section et de connaître la répartition des concentrations dans la section. Toutefois, les bouteilles sont difficiles à manipuler en conditions de crue. Lorsque les vitesses d'écoulement sont fortes, il est difficile d'amener la bouteille à la profondeur voulue et de la conserver à la verticale, ce qui empêche le déclenchement de la fermeture des clapets. Nous avons utilisé cette méthode de prélèvement pour effectuer deux campagnes de prélèvement distribué dans la section située à l'amont de la station de Jons, l'une en période de crue en janvier 2012, l'autre au cours des chasses de barrage de juin 2012 (Cf. §3.3.3).

Enfin, les prélèvements peuvent être réalisés à l'aide d'un préleveur automatique branché sur le secteur ou sur batterie. Un tuyau muni d'une crépine est placé dans l'écoulement sous la surface. Le préleveur peut être asservi au temps, assurant ainsi des prélèvements à pas de temps régulier, ou à la turbidité si un turbidimètre est installé à proximité. Dans ce deuxième cas, un programme de prélèvements se déclenche lorsqu'un seuil prédéfini de turbidité est dépassé dans le cours d'eau. Les préleveurs automatiques de terrain comportent 24 flacons. Cette technique a donc l'avantage d'être autonome, de permettre de réduire le pas de temps de prélèvement et de prélever chaque événement. Dans le cas d'un asservissement à la turbidité, ce système permet d'obtenir des mesures à pas de temps fin pour les évènements chargés.

(a) (b)

FIGURE 2.2 – Préleveur automatique ISCO (a) et sa couronne de 24 flacons de prélèvement (b).

Les préleveurs automatiques de terrain que nous utilisons sont de type ISCO ou SIGMA (Cf. Fig 2.2). Nous les avons utilisé principalement pour établir la relation de calibration entre la turbidité et la concentration en MES. En effet, nous les avons installés à proximité des turbidimètres des différentes stations, notamment à Jons (Cf. §3.3.3). Ils sont programmés pour effectuer un prélèvement par jour en régime de base et un prélèvement toutes les 2, 4 ou 8 heures en crue, en fonction de la durée moyenne des crues sur le cours d'eau étudié et de la stratégie d'échantillonnage définie.

Le suivi de la concentration en MES au niveau de la station d'Arles (Cf. §3.3.7) est effectué à l'aide d'un préleveur automatique, asservi au temps, qui réalise un prélèvement toutes les heures. En régime de base, les prélèvements effectués au cours d'une journée sont rassemblés pour former un échantillon composite et fournir une concentration moyenne journalière. En période de crue (débit > 3000 m^3/s à Arles), l'échantillon composite est réalisé toutes les 4 h. Le préleveur automatique est branché sur le circuit d'eau de la station qui est alimenté par une pompe. Le point de pompage se fait en rive droite du Rhône à une profondeur de 50 cm sous la surface.

Les préleveurs automatiques ont également permis d'effectuer un suivi fin des chasses du Rhône de juin 2012, en programmant un prélèvement toutes les quatre heures pendant les deux semaines des opérations (Cf. §3.4.2). Pour cet événement particulier, nous avons installé 5 préleveurs automatiques sur les sites de Creys, Bugey, Vieux-Rhône de Miribel amont et aval et Perrache (Cf. §3.3.2).

Une fois l'échantillon prélevé, il est rapporté au laboratoire, filtré sur filtre en fibres de verre (GFF Whatman, diamètre des pores de 0,7 μm), puis séché à l'étuve (105 $^\circ$ C) selon la norme NF EN ISO 872 (AFNOR, 2005). La concentration massique en MES est déterminée par l'équation :

$$C_s = \frac{M_1 - M_0}{V} \tag{2.1}$$

où M_0 est la masse initiale du filtre avant filtration, M_1 la masse du filtre après filtration et séchage et V le volume d'échantillon filtré. La norme indique que 2 mg de matière sèche au minimum doivent être pesés sur le filtre pour se trouver dans le domaine d'application. Pour un volume filtré d'1 L, on estime donc la limite de quantification (LQ) à 2 mg/L. Cette méthode, longue à mettre en œuvre (au minimum 2h30 pour une série d'échantillons) ne permet pas un suivi en temps réel des concentrations en MES.

La présence de sables dans les échantillons peut entraîner un biais lors de la mesure si l'échantillon n'est pas correctement mélangé avant d'être filtré, dans le cas où l'échantillon n'est pas filtré dans sa totalité. L'incertitude de mesure sur cette méthode est estimée à de 1 à 2 % et peut atteindre 10 % si des sables sont présents dans les échantillons (Cf. §1.5.3.1).

2.2.2 Méthode de la "crêpe"

Cette méthode a été mise au point par le Cemagref (Irstea) en 1981 (Niel *et al.*, 1985). C'est une adaptation de la méthode par filtration-pesée (Cf. §2.2.1) pour réaliser quasiment en temps réel des mesures sur le terrain. L'échantillon prélevé est filtré sur site, séché sur une plaque chauffante et pesé sur le terrain, le tout en une quinzaine de minutes. Les auteurs estiment que les résultats sont fiables à ±10 % et précisent que la méthode n'est pas applicable pour des concentrations supérieures à 15 g/L. Cette méthode n'est pas utilisée en régime de base, lorsque les concentrations sont de l'ordre de quelques mg/L, l'incertitude entraînée sur la mesure étant alors jugée trop importante. Bien que relativement simple à mettre en oeuvre, cette méthode requiert un important matériel de terrain (matériel de filtration, dessiccateur, plaque chauffante, balance et alimentation électrique).

La CNR utilise cette méthode pour le suivi ponctuel d'affluents en crue. En période de chasse, la méthode du pycnomètre (Cf. §2.2.3), plus rapide, est préférée pour les sites amont, où les concentrations en MES varient rapidement et peuvent atteindre 40 g/L. La méthode de la crêpe est alors réservée au suivi des sites aval, où les concentrations varient plus lentement, avec des valeurs souvent inférieures à 0,4 g/L, dans une gamme où le pycnomètre est jugé imprécis (Niel *et al.*, 1985).

2.2.3 Mesure au pycnomètre (densimétrie)

Cette méthode a été développée par la CNR pour répondre au besoin de connaître instantanément la concentration en MES circulant dans le cours d'eau au cours des opérations de chasse de barrages (Niel *et al.*, 1985). Elle s'inspire d'une méthode proposée par le Cemagref en 1980. Le pycnomètre, un contenant de volume connu, est rempli d'eau claire (type eau potable) et pesé ; puis ce même récipient est rempli d'eau de la rivière contenant des MES et pesé de nouveau. La concentration peut alors être déduite de la différence de masse, si la masse volumique des MES est connue. Niel *et al.* (1985) précisent que dans le cas du suivi de chasse de barrages, la masse volumique des MES

peut être estimée à partir de prélèvements réalisés dans la retenue du barrage vidangé. Ils utilisent une valeur de densité de 2,62 pour les MES qui transitent dans le Haut-Rhône en période de chasse des barrages. Cette valeur de densité est différente de celle des sédiments en place dans le dépôt derrière les retenues (Cf. le cas du barrage de Verbois au §5.3.2.3).

La mesure par cette méthode est instantanée, il faut environ 30 secondes pour la réaliser, et est estimée suffisamment précise pour des concentrations supérieures à 0,4 g/L (erreur relative moyenne de ±2,4 %).

La CNR a appliqué cette méthode dans le cas du suivi des chasses de barrage de juin 2012, sur les sites de Seyssel et Pougny, alors que les concentrations en MES étaient de l'ordre de 1 à 15 g/L et jusqu'à 40 g/L (Cf. §3.4.2).

2.2.4 Turbidimétrie

Les méthodes de mesure de la concentration en MES présentées dans les §2.2.1 à 2.2.3 comportent une étape de mesure ex situ, interdisant une mesure en continu de la concentration en MES sur le long terme. Si, lors d'opérations ponctuelles comme le suivi des chasses barrages, d'importants moyens humains et matériel peuvent être déployés pour assurer un suivi à très haute fréquence, ce fonctionnement serait trop coûteux sur du long terme. La recherche de paramètres mesurables directement dans le cours d'eau et qui peuvent être corrélés à la concentration en MES est donc une alternative intéressante pour développer une mesure en continu. Des capteurs *in situ* de mesure indirecte de la concentration en MES ont ainsi été développés dans les années 60. Ces capteurs émettent un rayonnement d'intensité connue dans un volume de contrôle de l'écoulement et mesurent l'intensité du rayonnement transmis ou diffusé. Le principe est que la masse de MES présente dans un volume d'eau est proportionnelle au degré d'atténuation ou de diffusion du rayonnement incident (Gippel, 1995; Clifford *et al.*, 1995). En fonction des types de capteurs, les rayonnements émis peuvent être acoustiques, optiques, sonores, nucléaires ou laser (Gippel, 1989; Wren *et al.*, 2000; Mano, 2008). Les turbidimètres optiques sont les plus utilisés en raison de leur faible coût et de leur sensibilité à une large gamme de concentration, jusqu'à 150 g/L (Foster *et al.*, 1992; Mano, 2008).

Il existe trois types de turbidimètres, en fonction de l'angle de réception de la lumière. Les turbidimètres par atténuation mesurent la lumière transmise, les néphélomètres mesurent la lumière diffusée (à 90 ° ou sous d'autres angles) et les systèmes OBS (Optical Backscatter Sensor) mesurent la lumière rétro-diffusée (Mano, 2008; Gippel, 1995). La lumière émise peut être soit de la lumière blanche, soit du proche infrarouge, i.e. de longueur d'onde entre 860 et 890 nm (Sadar, 2002).

Les turbidimètres sont calibrés en laboratoire pour répondre linéairement à une gamme de concentration croissante de formazine (polymère blanc) (Clifford *et al.*, 1995). Cependant, la turbidité

ne dépend pas uniquement de la concentration en particules mais aussi de la taille et de la composition des particules, ainsi que de la couleur de l'eau (Foster *et al.*, 1992; Gippel, 1995). Plusieurs études (Foster *et al.*, 1992; Gippel, 1995; Clifford *et al.*, 1995; Brasington et Richards, 2000) ont ainsi montré que la relation entre la concentration en MES et la turbidité a la forme d'une sigmoïde plutôt que d'une droite.

Pour les stations de turbidimétrie de notre réseau de mesure, l'utilisation d'une relation linéaire classique entraîne une surestimation uniquement pour les faibles concentrations (< 200 mg/L). Pour toutes les stations sauf pour la Saône à Lyon, ce problème est de moindre importance dans le cas où l'objectif est le calcul de flux de MES, puisque ces faibles concentrations en MES correspondent au régime de base qui contribue à moins de 20 % du flux de MES. En revanche, dans le cas de la Saône, les concentrations en MES les plus importantes sont de l'ordre de 200 mg/L, hors périodes exceptionnelles. L'utilisation d'une relation linéaire au lieu d'une relation sigmoïde entraîne donc une surestimation des concentrations en MES également pour les périodes de crue. Cette question est abordée plus précisément dans le §3.5.2.2.

Foster *et al.* (1992), Gippel (1995), Clifford *et al.* (1995), Brasington et Richards (2000) et Landers et Sturm (2013) ont également montré que la pente de la relation turbidité-concentration en MES dépend du diamètre des particules présentes. La réponse du capteur est en effet proportionnelle à la surface de réflexion des particules. Or, pour une même concentration en particules, la surface de réflexion d'une suspension de particules fines est plus importante que pour une suspension de particules grossières. A partir d'expériences en laboratoire avec des suspensions homogènes de particules de diamètres différents, Foster *et al.* (1992), Vongvixay (2012) et Thollet *et al.* (2013) ont obtenu des relations linéaires entre la concentration en MES et la turbidité, dont la pente augmente quand le diamètre diminue (Cf. Fig. 2.3). En période de crue, si des particules plus grossières sont mises en suspension et mesurées par le capteur, on peut donc observer un détarage de la relation. Il est donc nécessaire de vérifier la relation turbidité-concentration en MES pour les événements de crue.

La granulométrie des particules varie d'un bassin versant à l'autre et au sein d'un même bassin versant, entre les périodes de régime de base et les crues. La granulométrie peut également varier d'une crue à l'autre, au niveau d'une même station de mesure, en fonction de l'origine des particules sur le bassin versant. L'étalonnage d'un turbidimètre doit donc être fait à chaque changement de site d'installation du capteur, et si possible à chaque événement de crue (Gippel, 1995; Brasington et Richards, 2000). En résumé, les meilleures relations de calibration sont obtenues pour des sites où la granulométrie est plutôt constante et lorsque la plus grande gamme de concentrations en MES

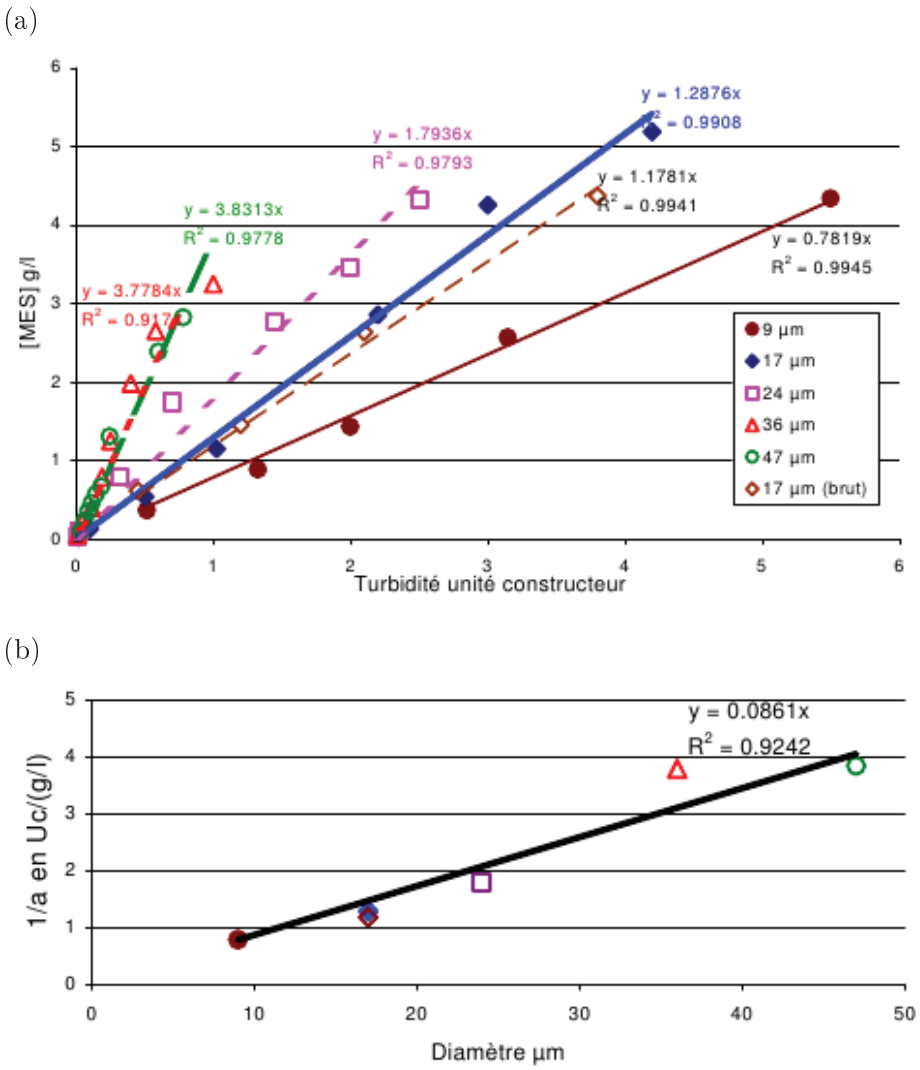


FIGURE 2.3 – (a) Relations entre la concentration en MES et la turbidité obtenues à partir de suspensions homogènes de diamètres différents et (b) relation entre l'inverse de la sensibilité (a) de la sonde turbidimétrique et le diamètre médian (Thollet *et al.*, 2013)

est échantillonnée (Gippel, 1995).

Pour s'affranchir de l'effet de la granulométrie sur la relation turbidité-concentration en MES, Thollet *et al.* (2013) suggèrent de convertir la concentration massique en MES C_{mass} [M/L^3] en concentration surfacique C_{surf} [L^2/L^3] en utilisant l'équation suivante, sous hypothèse de particules sphériques :

$$C_{surf} = \frac{3C_{mass}}{2d\rho_s} \tag{2.2}$$

avec ρ_s la masse volumique des particules [M/L^3] et d leur diamètre [L]. Thollet *et al.* (2013) montre que la relation obtenue est alors valable quelque soit l'hydrologie. Cependant, pour l'établir, la concentration massique en MES doit être ramenée au diamètre des particules pour chaque échantil-

lon, ce qui nécessite une mesure systématique de la granulométrie. Clifford *et al.* (1995) suggèrent également d'appliquer une pondération de la mesure par la surface spécifique des particules dans le cas où l'on souhaite comparer des mesures effectuées à différents moments ou en différents sites. Toutefois, dans le cas d'échantillons composés d'un mélange de particules, la question du diamètre à utiliser pour établir la concentration surfacique demeure. Cette technique d'étalonnage semble donc prometteuse pour s'affranchir des problèmes de détarage dus aux variations de la granulométrie, mais elle reste difficile à mettre en œuvre.

Malgré ces problèmes d'étalonnage, de nombreuses études ont montré le potentiel de la mesure de la turbidité pour estimer les concentrations en MES (Gippel, 1995; Riley, 1998; Lenzi et Marchi, 2000; Brasington et Richards, 2000; Sadar, 2002; Eads et Lewis, 2002; Mano, 2008; Horowitz, 2008).

Foster *et al.* (1992) et Mano (2008) établissent une relation linéaire dont l'ordonnée à l'origine est forcée à 0 pour 4 cours d'eau en Angleterre ($<$2 km^2) et pour l'Isère à Grenoble (5 720 km^2). Gippel (1995) et Brasington et Richards (2000) fixent des relations linéaires sans les forcer à 0 pour deux cours d'eau australiens (5 000 km^2) et quatre petits bassins versants au Népal (0,83 à 4,14 km^2). Enfin, Riley (1998) préfère une relation puissance pour le site de Ranger Uranium Mine en Australie.

Ainsi, la relation la plus couramment utilisée est une relation linéaire, avec ordonnée à l'origine forcée à 0. Elle est établie en effectuant des prélèvements ponctuels à proximité du turbidimètre, pour la plus large gamme de concentrations possible. La relation doit être fréquemment vérifiée en raison de la sensibilité du capteur au vieillissement et de la dépendance du capteur et du signal reçu à la granulométrie des MES présentes dans la colonne d'eau. Pour éviter l'encrassement du capteur des opérations de nettoyage régulières de l'appareil sont à mettre en place (Mano, 2008).

Les sondes turbidimétriques utilisées par Irstea sur le Rhône et ses affluents (Cf. Chap. 3) sont des turbidimètres Hach lange SC200 (sonde Solitax HSLine 0-150 g/L et nettoyage par essuie-glace). La sonde utilisée peut mesurer soit la lumière diffusée à 90 ° selon la norme EN ISO 7027 (AFNOR, 2000a) pour une gamme de mesure de 0 à 4000 NTU, soit la lumière rétrodiffusée à 140 °. Dans le deuxième cas, de plus fortes turbidités peuvent être mesurées, mais la mesure n'est plus normalisée et le résultat est exprimé en unité constructeur. Le signal de turbidité est en général collecté sur une centrale d'acquisition Ott Duosens avec un pas de temps de 5 minutes. Les données sont rapatriées à distance via une liaison téléphonique GSM vers Lyon.

2.3 Analyses physico-chimiques des MES

2.3.1 Techniques de prélèvement des MES pour les analyses physico-chimiques

2.3.1.1 Usage et intérêt des techniques

Les données utilisées dans la suite de ce travail de thèse sont issues d'une part, du réseau de mesure déployé par Irstea dans le cadre de l'OSR et de cette thèse, et d'autre part, de réseaux et campagnes de mesure menées par l'Agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse (AERMC), l'ENTPE [1] et la société TREDI (groupe Séché, Saint-Vulbas).

Les différents dispositifs de prélèvement utilisés sur le Rhône et ses affluents pour collecter des MES ou des sédiments superficiels en vue d'analyser leur teneur en contaminants sont :

- par Irstea de 2010 à 2013 : le prélèvement manuel, la centrifugation en continu et l'utilisation de pièges à sédiments (§2.3.1.3 à 2.3.1.5) ;
- par l'AERMC dans le cadre de son réseau de suivi Eau et MES de 1991 à 2009 (AERMC, 2009) : la centrifugation en continu (§2.3.1.4) et le prélèvement de sédiments de fond au moyen d'une benne (Annexe D) ;
- par la société TREDI dans le cadre du contrôle de ses rejets de PCB, de dioxines et de furannes en 2008 et 2009 (Fruget *et al.*, 2010) : la centrifugation en continu (§2.3.1.4) ;
- et par l'ENTPE entre 2008 et 2009 (Desmet *et al.*, 2012) : des carottes de sédiments stratigraphiques (Annexe D).

Les avantages et inconvénients de ces différentes techniques sont résumés dans le Tab. 2.1 puis discutés dans les §2.3.1.3 à 2.3.1.5 et en Annexe D.

Nous avons testé trois autres techniques de prélèvement au cours de cette thèse, qui se sont révélées inadaptées pour l'objectif de suivi des teneurs en contaminant et d'établissement des flux de contaminants particulaires. Il s'agit de l'utilisation d'un préleveur automatique réfrigéré asservi à la turbidité pour prélever pendant les crues, d'un système de filtration *in situ* d'un grand volume d'eau brute et du prélèvement de dépôts de crue. Les avantages et inconvénients de ces trois techniques sont également présentés dans le Tab. 2.1, pour permettre la comparaison avec les autres techniques. Pour plus d'informations relatives à ces techniques on se reportera à l'Annexe D.

Dans le cas de notre étude, portant sur les MES, le choix de la technique de prélèvement à des fins d'analyses physico-chimiques doit répondre à des contraintes spécifiques :

– une quantité de MES prélevées suffisante ;

1. école nationale des travaux publics de l'état, http ://www.entpe.fr/

- un échantillon de MES représentatif de la phase porteuse des contaminants et de la contamination ;
- un coût acceptable et des conditions de réalisation de l'échantillonnage applicables ;
- pas de contamination de l'échantillon par le matériel utilisé.

La quantité de MES prélevée conditionne le nombre et la nature des analyses possibles au laboratoire. La masse nécessaire est en effet très variable selon le type d'analyse. L'analyse du mercure particulaire ne requiert que 30 à 50 mg secs (Cf. §2.3.5), tandis que celle des PCB nécessite 1 g de matière sèche (Cf. §2.3.6). Cela peut donc représenter un grand volume d'eau brute selon la concentration en MES dans le cours d'eau.

La représentativité de l'échantillon se décline en trois aspects. Tout d'abord la **représentativité qualitative** de l'échantillon traduit la concordance entre les particules prélevées et celles circulant dans le milieu. La représentativité dépend de la capacité à échantillonner les différents types (taille et composition) de particules présentes en suspension et à ne pas modifier ces particules par rapport à leur état dans le milieu. Ainsi, certains systèmes peuvent suréchantillonner ou sous-échantillonner certaines fractions granulométriques (Horowitz, 1986; Schäfer et Blanc, 2002; Horowitz, 2008). Il faut alors tenir compte de ces modifications, en corrigeant le biais engendré sur les teneurs mesurées (Cf. §2.4.2).

Selon la famille de contaminants recherchée, les matériaux employés pour prélever et stocker les échantillons et le nettoyage de ces matériaux doivent également être choisis afin d'éviter de contaminer ou modifier l'échantillon. Les contaminants hydrophobes et adsorbables, tels que les organiques, les métaux et le mercure sont en général présents à de très faibles concentrations dans les eaux et des précautions importantes doivent être prises dès lors que l'on souhaite les mesurer dans le dissous. Ces contaminants sont en revanche présents à de plus fortes teneurs dans les particules et les sédiments. Les précautions à prendre pour éviter de contaminer les échantillons particulaires sont donc moins drastiques que pour les échantillons dissous. Pour les contaminants organiques, l'inox et le verre sont les matériaux de choix ; et on évite d'utiliser du matériel de prélèvement et de stockage en plastique sur lequel les molécules risquent de s'adsorber, ou qui risque d'apporter à l'échantillon des molécules interférant avec l'analyse. Les flacons peuvent être nettoyés avec le solvant ou chauffés à $+500\,^{\circ}$C pour volatiliser les molécules organiques présentes.

Pour l'analyse des métaux à l'exception du mercure, on évite d'utiliser du matériel en métal (inox) ou en verre pour ne pas interférer avec l'analyse. Le matériau de référence est le plastique (polyéthylene ou polypropylene) et le nettoyage est réalisé à l'acide (HNO_3).

Le mercure ne se comporte pas comme les autres métaux, mais plutôt comme les contaminants organiques au niveau des interactions avec les matériau. Pour l'analyser, on évite le plastique, le verre et le métal, et on préfère le Téflon. Pour nettoyer, on rince à l'acide (HNO_3 et HCl).

Ces précautions d'échantillonnage sont notamment recensées par RNO (1988), Quémerais *et al.* (1999), Cossa *et al.* (2002) et Schiavone et Coquery (2011). Les précautions spécifiques à l'analyse du mercure et des PCB dans les MES que nous avons suivies dans le cadre de cette étude sont détaillées au §2.3.1.2.

Vient ensuite la question de la **représentativité spatiale** de l'échantillon. La plupart des prélèvements sont effectués en un point au sein d'une section de rivière. Les concentrations en MES et les caractéristiques des particules, notamment leur granulométrie, sont susceptibles de varier au sein de la section (Cf. §1.5.3.1). Il est donc primordial de choisir la section de prélèvement pour que la concentration en MES soit la plus homogène possible au sein de la section (Cf. §1.2.3), et de positionner le point de prélèvement dans cette section de façon à échantillonner les particules ciblées par l'étude ; dans notre cas le washload, i.e. les particules fines qui circulent plutôt à proximité de la surface (Cf. §1.2.1).

Enfin, la **représentativité temporelle** dépend de la technique de prélèvement. Les prélèvements instantanés ou ponctuels permettent une mesure de la teneur en contaminant à un instant donné ou sur une période courte, tandis que les prélèvements intégratifs, constitués de particules collectées en continu au cours de la période d'exposition, permettent une mesure de la teneur moyenne en contaminants sur la période d'exposition.

Les coûts d'investissement et de fonctionnement de la technique de prélèvement conditionnent souvent le nombre de prélèvements réalisables et doivent donc être pris en compte. La technicité requise pour mettre en œuvre une méthode de prélèvement prend en compte la nécessité d'une formation à l'emploi du matériel. Enfin, le travail restant à effectuer au laboratoire pour conditionner l'échantillon et le préparer à l'analyse varie en fonction de la méthode de prélèvement. Le §2.3.2 rappelle les opérations de prétraitement des échantillons avant les analyses chimiques. D'une façon générale, plus un échantillon contient d'eau, plus le prétraitement, contenant une phase de séparation des MES de l'eau, est long. Ces différents éléments sont synthétisés dans le Tab. 2.1.

Nota : La centrifugation en continu permet aussi une estimation de la concentration en MES. Ce n'est toutefois pas l'objectif principal de ce dispositif. Il n'est en revanche pas possible de revenir facilement à une concentration en MES à partir des pièges à sédiments, puisque la quantité d'eau

Tableau 2.1 – Comparaison des systèmes de prélèvement de MES ou de sédiments pour les analyses physico-chimiques. Le nombre d'étoiles indique qualitativement la performance ou l'importance relative de chaque critère d'évaluation, du moins satisfaisant (*) au plus efficace (***)

Technique de prélèvement	Quantité prélevée	Taille des particules échantillonnées (μm)			Position dans la section	Représentativité temporelle	Coûts		Technicité	Conditionnement au laboratoire
		1-10	10-27	27-80			achat	usage		
Manuel	*	***	***	***	suspension	instant à qqs jours	*	*	*	***
Centrifugation en continu	**	***	***	*	suspension	1-5 h	***	***	***	*
Piège à sédiments	***	*	**	***	suspension et fond	1 à 15 j	**	*	*	**
Prélèvement automatique	*	**	**	**	suspension	instant à qqs jours	***	**	**	***
Filtration grand volume	*	**	**	*	suspension	instant	***	**	***	***
Sédiments superficiels	***	*	**	***	fond	mois à année	**	**	**	*
Dépôts de crue	***	*	**	***	suspension et fond	décrue	*	*	*	*
Carottage	**	*	*	***	fond	années	***	***	***	***

circulant à l'intérieur ne peut pas être connue avec précision, sauf lorsque le piège est branché sur un système de pompage avec débitmètre ou à débit constant, comme à Arles (Cf. §3.3.7).

2.3.1.2 Précautions à prendre lors de l'échantillonnage

Les prélèvements décrits dans cette partie ont été analysés pour déterminer les teneurs en PCB et en mercure particulaires. Nous avons donc suivis des précautions lors de l'échantillonnage pour permettre l'analyse de ces deux types de molécules à partir des mêmes échantillons. Ainsi, nous avons choisi des dispositifs de prélèvements en verre (flacons) et en inox (piège à sédiments et seau) et nous avons teflonné les dispositif comportant des parties métalliques (centrifugeuse). Les ustensibles utilisés pour transférer les échantillons des dispositifs de prélèvements vers les flacons de stockage étaient en Téflon et le mortier utilisé pour broyer les échantillons était en agate. Nous avons choisi de stocker dans du verre nettoyé à la machine à laver et rincer à l'acide acétique et au solvant.

Le matériel de prélèvement et de flaconnage a été nettoyé scrupuleusement entre chaque prélèvement. Il est lavé en machine (détergent puis acide acétique et rinçage à l'eau déminée) puis rincé à l'acétone. Lors du transport, le matériel est emballé dans du papier aluminium pour éviter tout contact avec des surfaces polluées.

Une fois les échantillons collectés sur le terrain, ils ont été conservés dans une glacière à l'abri de la lumière et rapidement transportés au laboratoire. Dès le retour au laboratoire, ils ont été congelés en attendant d'être conditionnés pour l'analyse (Cf. §2.3.2.

2.3.1.3 Prélèvement manuel

Le prélèvement manuel consiste à échantillonner directement l'eau chargée en MES dans le cours d'eau, en général en surface. Les MES collectées de cette façon ne sont pas modifiées par rapport à leur état dans le cours d'eau au niveau du point de prélèvement.

Le prélèvement est effectué en un point unique de la section et peut être instantané ou intégré sur la période de mesure. On collecte alors plusieurs échantillons sur la période voulue, on les rassemble et on les mélange dans un même récipient. On constitue ainsi un échantillon composite moyen, représentatif de la période de mesure (même principe que pour la mesure des concentrations en MES à Arles, Cf. §2.2.1). Cette technique ne peut être mise en œuvre que lorsque la concentration en MES est suffisamment importante pour que le volume nécessaire de l'échantillon ne soit pas trop important. Avec des concentrations en MES de 1 mg/L à 100 mg/L, il faudrait prélever de 10 000 à 100 L d'eau brute pour obtenir la dizaine de grammes de matière sèche nécessaire aux analyses. Cette technique de prélèvement ne peut donc pas être mise en œuvre pendant les périodes de régime de base sur le Rhône. En période de crues et de chasse, les concentrations en MES du Rhône peuvent être de 1 g/L à 10 g/L et ponctuellement en période de chasse, 40 g/L ont été mesurés à l'aval des barrages vidangés. L'échantillonnage manuel est alors possible.

Cette technique est simple à mettre en œuvre et peu coûteuse. Les prélèvements ne requièrent pas une qualification particulière, ils nécessitent cependant la présence régulière d'une personne sur le terrain dans le cas de la réalisation d'un échantillon composite. Le conditionnement des échantillons collectés avant l'analyse passe par l'élimination de la grande quantité d'eau qu'ils contiennent. La séparation des phases liquide et solide se fait soit par filtration, soit par décantation puis centrifugation.

Nous avons effectué des prélèvements manuels composites lors des opérations de chasse du Haut-Rhône, pour suivre les concentrations en contaminants des sites amont (Pougny et Seyssel). Un échantillon composite était réalisé chaque jour sur une période de 24 h par les équipes de la CNR qui étaient sur place. Chaque échantillon était composé de 6 prélèvements d'eau, effectués à 4 h d'intervalle. Les prélèvements étaient réalisés en surface à l'aide d'un seau en inox d'environ 4 L et mélangés dans une bonbonne en verre de 34 L. Les MES ont été récupérées sous 24 h après décantation et siphonage de l'eau surnageante.

2.3.1.4 Centrifugation en continu

La centrifugation en continu permet de séparer les phases solide et liquide d'un mélange en leur appliquant une force centrifuge. Dans le cas d'une application en rivière, un système de pompage et des tuyaux sont nécessaires pour amener l'eau depuis le cours d'eau jusqu'à la centrifugeuse. La centrifugeuse peut être soit installée dans une station de mesure et reliée au réseau électrique, soit mobile sur une remorque ; dans ce cas elle peut être alimentée par un groupe électrogène. Les centrifugeuses sont généralement composées d'éléments métalliques. Le téflonnage des parties métalliques permet de limiter les risques de contamination de l'échantillon. Le prélèvement s'effectue en un point unique de la section et la centrifugation permet de récupérer en quelques heures plusieurs dizaines de grammes de MES, ce qui est suffisant pour effectuer la plupart des analyses chimiques. Cette technique est la plus efficace pour effectuer des prélèvements de type quasi-instantané (au maximum quelques heures). Ce type de prélèvement est néanmoins coûteux. A l'achat, une centrifugeuse coûte environ 75 ke . En prestation, il faut compter de l'ordre de 2 000 € par prélèvement. Le coût de fonctionnement est également important puisque pour effectuer un prélèvement sur le terrain, du personnel spécialisé, un groupe électrogène et une pompe sont nécessaires. Le déplacement d'un tel appareillage est lourd et sa mise en œuvre requiert une formation technique importante. En revanche, le conditionnement des échantillons au laboratoire est simplifié. Les échantillons de MES prélevés sont directement congelés.

Trois centrifugeuses ont été utilisées sur le réseau de mesure du Rhône. Irstea a utilisé la centrifugeuse mobile de T. Meunier de la société Trédi depuis septembre 2011. Les prélèvements de l'AERMC entre 1990 et 2009 ont été réalisés avec la centrifugeuse de la société AMP [2]. La troisième centrifugeuse est fixe et a été installée à Arles par le COM [3] et l'IRSN en 2008 (Antonelli, 2010). Nous avons cependant eu recours en juin 2012 aux services de la société AMP pour remplacer notre centrifugeuse tombée en panne quelques jours avant la fin des opérations de chasse des barrages du Haut-Rhône. Notons que depuis juillet 2013, une quatrième centrifugeuse du même modèle qu'à Arles a été installée de façon permanente à la station de Jons sur le Rhône dans le cadre de l'OSR, mais les données collectées récemment n'ont pas été utilisées dans cette thèse.

La centrifugeuse mobile utilisée par Irstea est une centrifugeuse Westfalia KA 2-86-075 (1978, cf. Fig. 2.4). Le protocole de prélèvement détaillé que nous avons établi est disponible en Annexe B et sur le site de l'OSR. Elle est montée sur une remorque et un groupe électrogène Honda EM30 de 3800 W assure l'alimentation électrique du système sur le terrain. L'eau est pompée directement dans le cours d'eau à l'aide d'une pompe volumétrique Honda (modèle x10). Pour protéger la pompe,

2. Analyses Mesures Pollution, www.a-m-p.fr
3. Centre d'océanologie de Marseille, http ://www.com.univ-mrs.fr/

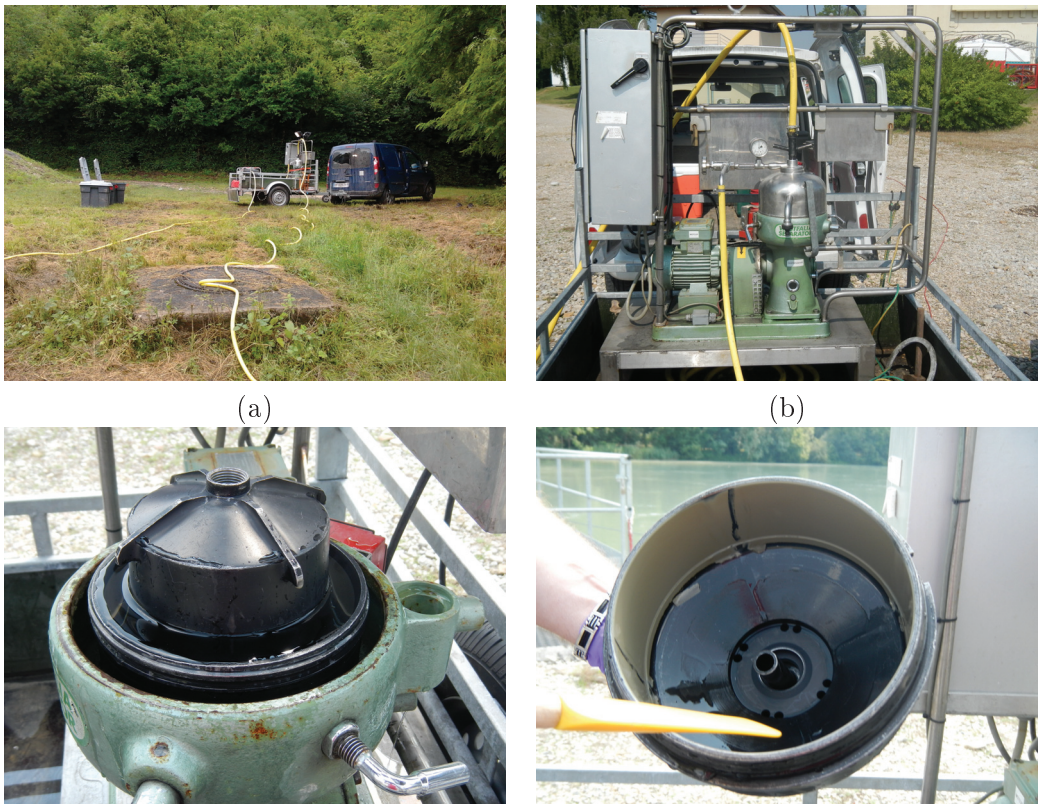
une crépine en inox constituée de losanges assemblés de 1,5 mm de coté a été installée à l'extrémité du tuyau ; cette crépine est protégée et maintenue sous l'eau à l'aide d'une cage métallique. Les prélèvements ont été effectués entre 30 et 50 cm sous la surface de l'eau. L'eau est amenée à la centrifugeuse via des tuyaux d'arrosage classiques, qui ont été régulièrement changés. L'eau en sortie de centrifugeuse est rejetée au milieu en aval du point de prélèvement. Les parties métalliques de la centrifugeuse et de la pompe ont été téflonnées. Les MES séparées de l'eau sont récupérées dans le bol de la centrifugeuse à l'aide d'une spatule en silicone téflonnée et stockées dans des flacons en verre ambré.

La vitesse de rotation de la centrifugeuse est de 9700 tr/min ; elle permet de centrifuger de 780 à 850 L/h. Elle permet de collecter rapidement, en 1 à 5 h pour des concentrations en MES allant de 1 g/L à 1 mg/L, une masse suffisante de MES pour effectuer les analyses chimiques. Un compteur installé sur le circuit après la pompe mesure le volume d'eau centrifugé. Le rendement de centrifugation a été évalué par Burrus *et al.* (1989) pour une centrifugeuse similaire à 97 % et des analyses de l'eau en sortie de centrifugeuse ont montré que la concentration en MES était inférieure à 2 mg/L, ce qui correspond à la LQ par filtration-pesée (norme NF EN 872, AFNOR (2005)).

La comparaison des distributions granulométriques d'échantillons prélevés avec la centrifugeuse mobile Westfalia et manuellement au même moment dans le Rhône à Jons a montré que les fractions fines et plus grossières sont échantillonnées dans les mêmes proportions avec les deux techniques (Cf. Annexe C). On peut en conclure que le prélèvement à la centrifugeuse en continu n'entraîne pas de différences significatives de la granulométrie des MES par rapport aux prélèvements manuels. Les échantillons issus de centrifugation peuvent donc être considérés comme représentatifs des MES qui circulent dans le cours d'eau au moment du prélèvement.

La centrifugeuse de la société AMP utilisée dans le cadre du réseau Eau et MES de l'AERMC est une centrifugeuse mobile CEPA (modèle Z-61), montée sur une remorque (Cf. Fig. 2.5a). C'est le même modèle que celui installé de façon permanente à la station d'Arles. La vitesse de rotation de ces centrifugeuses est de 17 000 tr/min et elles permettent de centrifuger jusqu'à 1 500 L/h. Elles sont composées d'un cylindre vertical recouvert d'une feuille de Téflon sur laquelle les particules se déposent et qui permet une récupération facilitée des MES en fin de prélèvement (Cf. Fig. 2.5b).

L'utilisation de la centrifugeuse mobile Westfalia s'est avérée très efficace et a permis d'assurer le suivi bimensuel des contaminants à Jons, le suivi des crues sur les affluents et le suivi de la chasse du Rhône de juin 2012. Une fois le protocole de mise en place établi et la mise aux normes de sécurité électrique et mécanique réalisée, ce matériel s'est révélé très robuste sur le terrain.



(a) (b)

(c) (d)

FIGURE 2.4 – Centrifugeuse mobile Westfalia : (a) vue d'ensemble du déploiement *in situ*, (b) et (c) détail du bloc centrifugeuse, et (d) collecte des MES avec une spatule dans le bol de la centrifugeuse en fin de prélèvement.

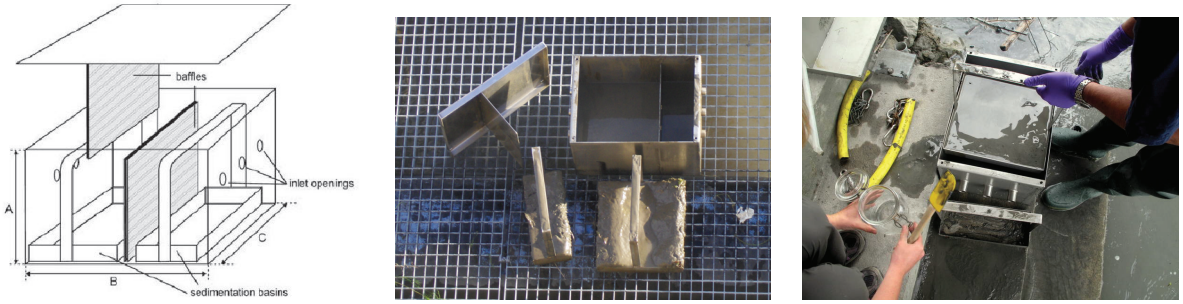
(a) (b)

FIGURE 2.5 – (a) Centrifugeuse CEPA de la société AMP et (b) feuille de Téflon extraite du cylindre vertical pour collecter les MES et constituer l'échantillon.

2.3.1.5 Piège à sédiments

Les pièges à sédiments sont des collecteurs, boîtes ou paniers, placés dans un écoulement et qui capturent les MES en continu par décantation. L'eau passe à l'intérieur du piège et les particules sont retenues soit au moyen d'une grille, soit parce que le design du piège entraîne une diminution de la vitesse de l'eau lors de son passage dans le piège, ce qui permet une décantation des particules. Ces pièges peuvent être déposés sur le fond de la section ou maintenus dans la colonne d'eau, en fonction des particules recherchées. Ils permettent de collecter une grande quantité de MES, représentative de la période au cours de laquelle ils restent dans le cours d'eau. On parle de prélèvement intégré dans le temps (même si le débit d'entrée peut varier avec la vitesse d'approche). Le coût de fabrication est de l'ordre de 1 000 € pour les pièges utilisés dans cette thèse et la mise en œuvre ne nécessite pas d'autre coût que le temps de personnel nécessaire pour installer les pièges et récupérer les échantillons. La technicité requise est faible puisqu'il s'agit seulement de relever le piège et de le vider en veillant à ne pas contaminer les échantillons. Le placement et la récupération du piège peuvent parfois s'avérer compliqués, par exemple en crue si le niveau de l'eau est haut et le courant fort. En revanche, les échantillons ainsi collectés contiennent encore une importante part d'eau qu'il faut éliminer au laboratoire par décantation.

Les pièges que nous avons utilisés ont été reproduits à partir de la description faite dans Schulze *et al.* (2007). Ils se présentent sous la forme de boîtes avec un couvercle de dimension 400×300×250 mm (Cf. Fig. 2.6), et sont constitués d'inox marin, plus robuste que l'inox classique, pour réduire le risque de contamination des échantillons. L'entrée et la sortie d'eau se font par trois ouvertures de 20 mm de diamètre à l'avant et à l'arrière de la boîte. A l'intérieur, deux parois sigmoïdes ralentissent la vitesse de l'eau et permettent la décantation des MES dans deux paniers. Le protocole de prélèvement que nous avons établi est présenté en Annexe B.



(a) (b) (c)

FIGURE 2.6 – Piège à sédiments utilisés copié du modèle du German Environmental Speciment Bank (ESB) (Schulze *et al.*, 2007) : (a) schéma du piège (Schulze *et al.*, 2007), (b) à Arles (Jacquet *et al.*, 2010), et (c) à Pougny, durant la chasse du barrage de Verbois, juin 2012.

Les particules qui nous intéressent sont celles qui se déplacent dans la partie supérieure de la colonne d'eau. Nous avons donc déposé les pièges sur les marches des quais ou des stations limnimétriques pour les maintenir à une vingtaine de centimètres sous la surface de l'eau. Dans certains cas, nous les avons suspendus à l'aide de câbles depuis un quai. Il faut alors prendre garde à leur fixation dans le cours d'eau et notamment à ce qu'ils ne puissent pas se retourner. Lorsque la hauteur d'eau était faible, ce qui était le cas pour certains affluents l'été, nous les avons posés au fond de la section. Il est préférable de ne pas les fixer à un support mobile de type ponton, dont le mouvement risque de remettre en suspension les particules sédimentées dans le piège. Les zones de resuspension en berge sont également à éviter pour que l'échantillon soit représentatif des MES qui transitent dans la section. En régime de base, ils ont été placés dans le cours d'eau pendant de longues périodes de deux à quatre semaines pour récupérer assez de MES. En période de crue ou lors d'opérations de chasse, les pièges ont été relevés jusqu'à une fois par jour en fonction de la concentration en MES. Les MES collectées sont transférées depuis les paniers vers des bocaux en verre à l'aide de spatules en silicone téflonnées.

Les pièges à sédiments se sont révélés très intéressants pour le suivi continu des teneurs en contaminants, puisqu'ils permettent d'intégrer toutes les crues, sont peu chers et requièrent un faible niveau de technicité. Dans certains cas exceptionnels, une mauvaise position dans la section, trop près du fond, les amènent à être exposés à un flux de particules grossières qui n'entrent pas dans la définition des MES telles que nous les étudions. Leur présence dans les échantillons entraîne alors un biais granulométrique que nous corrigeons selon la méthode détaillée au §2.4.2 et Annexe D).

2.3.2 Prétraitement des échantillons

Les échantillons de MES prélevés en vue des analyses de contaminants ont été stockés congelés. Il ont ensuite été lyophilisés puis passés à travers un tamis de 2 mm en acier inoxydable et broyés à l'aide d'un mortier en agate. Les échantillons ont été stockés dans des flacons en verre ambré à l'abri de la lumière et à température ambiante, avant analyse.

2.3.3 Granulométrie

Avant 1970, la granulométrie était surtout déterminée par tamisage (particules de diamètre supérieur à 30 μm), sédimentométrie (1 à 100 μm), centrifugation (0,1 à 20 μm) ou encore par comptage électrique avec un appareil de type compteur Coulter (2 à 2000 μm) (Chamley, 1987; Rivière, 1977; Syvitski, 2007). Depuis les années 1970, l'apparition des appareils de mesure par diffraction laser a permis d'obtenir des informations détaillées sur la granulométrie des particules. Cette technique repose sur le principe de diffraction de la lumière. Le granulomètre envoie un rayon

laser à travers une cellule de mesure contenant l'échantillon. Les particules en suspension diffractent et atténuent la lumière émise. Un ensemble de capteurs situés autour de la cellule de mesure enregistrent l'intensité du rayonnement diffracté. Le granulomètre mesure donc la distribution angulaire de l'intensité lumineuse diffractée par la surface des particules de l'échantillon (McCave et Syvitski, dans Syvitski, 2007). La transformation de la distribution angulaire d'intensité en distribution de fréquence de taille des particules (dite inversion de la distribution d'intensité lumineuse) se fait à l'aide d'un modèle optique. Les deux modèles les plus utilisés sont les modèles de Fraunhofer et de Mie. La théorie de Fraunhofer repose sur l'hypothèse que les particules de l'échantillon sont sphériques et opaques et qu'elles diffractent la lumière avec la même efficacité quelle que soit leur taille (Syvitski, 2007). L'angle de diffraction de la lumière est alors inversement proportionnel au diamètre de la particule. D'après la norme ISO-13320 (ISO, 2009), la théorie de Fraunhofer peut être utilisée lorsque le diamètre des particules est au moins 40 fois supérieur à la longueur d'onde incidente (Moore, 2011). Pour des particules de taille inférieure à 100 μm, la théorie de Mie est appliquée. Elle prend en compte la diffusion et l'absorption qui ne sont pas considérées dans la théorie de Fraunhofer. La diffraction laser permet la mesure des particules ayant un diamètre compris entre 0,02 μm et 2 mm (McCave et Syvitski Syvitski, 2007, chap. 1).

La distribution de fréquence des diamètres de particules mesurés par granulométrie laser peut être exprimée en pourcentage du nombre de particules de l'échantillon [-], de leur volume [L^3], de leur surface [L^2] ou de leur masse [M]. Le granulomètre effectue une mesure surfacique car la diffraction dépend de la section efficace vue par le rayon laser ; la distribution de fréquence surfacique est donc obtenue directement. La transformation en distribution volumique se fait ensuite sous hypothèse de particules sphériques. Dans le cas d'une sphère, le rapport surface/volume est inversement proportionnel au diamètre. Une particule sphérique de diamètre $D = 10$ μm a un volume 1000 fois plus grand qu'une particule de diamètre $D = 1$ μm, mais une surface seulement 100 fois plus importante. La distribution volumique fait donc apparaître les particules grossières avec plus de poids que la distribution surfacique. La distribution massique est assimilée à la distribution volumique en faisant l'hypothèse que la densité des particules est constante.

La distribution volumique est la plus couramment utilisée, notamment parce qu'elle est paramétrée par défaut sur les appareils. Cependant, il peut être intéressant d'utiliser une distribution exprimée en surfacique pour tenir compte du processus d'adsorption des contaminants sur la surface des particules.

Les distributions de fréquence de taille des particules peuvent être représentées soit sous la forme d'un histogramme avec en abscisse les limites de classes granulométriques, soit par la courbe des fréquences en fonction de la taille moyenne de chaque classe considérée, soit par la courbe des

fréquences cumulées (Cf. Fig. 2.7). Par convention, les distributions de fréquence sont représentées en fonction d'une échelle logarithmique plus représentative des échelles de diamètre qui s'étendent souvent sur plusieurs ordres de grandeur.

La distribution de fréquence n'étant pas très maniable, il est fréquent de la résumer par des valeurs numériques représentatives (Syvitski, 2007). Le diamètre moyen d_m correspond à la moyenne arithmétique des diamètres d'un échantillon. Pour un échantillon fractionné en n classes de diamètres représentatifs d_i et de fréquences f_i, il s'exprime par :

$$d_m = \sum_{i=1}^{n} f_i d_i \tag{2.3}$$

Le mode d_{max} de la distribution correspond au diamètre du maximum de la courbe des fréquences relatives, et au diamètre du point d'inflexion de la courbe des fréquences cumulées. Si la courbe des fréquences relatives possède plusieurs maxima, la distribution est dite multi-modale, comme c'est le cas sur l'exemple de la Fig. 2.7.

On note d_p le diamètre pour lequel on obtient p % du volume ou de la masse cumulée de particules. Le d_{50} correspond à la médiane, i.e. au diamètre qui divise la distribution en deux parties d'aires égales. Les distributions granulométriques sont fréquemment résumées aux quantiles d_{10}, d_{50} et d_{90}. Les d_{16} et d_{84}, sont également couramment employés. En effet, 68 % de la population de particules a un diamètre compris entre ces deux valeurs, ce qui correspond dans le cas d'une distribution gaussienne de moyenne μ et d'écart-type σ à l'intervalle [μ-σ ; μ+σ].

Ces représentations ne permettent toutefois pas de tenir compte du caractère multimodal des distributions granulométriques obtenues pour des échantillons naturels. Le d_{50} peut par exemple varier faiblement alors qu'un mode apparaît ou disparaît.

Différents granulomètres laser sont disponibles sur le marché. Ils diffèrent par la nature du détecteur utilisé et par la méthode d'inversion de la distribution d'intensité lumineuse (McCave et Syvitski, 2007). Dans le cadre de l'OSR, nous avons réalisé une intercomparaison de plusieurs granulomètres de marques différentes (Cilas, Malvern, Coulter, Lisst) à l'aide de poudres étalons de distributions granulométriques connues (Sabatier *et al.*, 2013, en préparation). Ce travail a permis de montrer des variations dans la mesure fournie par les différents appareils. Ces variations peuvent provenir des différences de méthode d'inversion, mais comme ces méthodes ne sont généralement pas détaillées par les constructeurs, il n'est pas possible de vérifier cette hypothèse.

A Irstea, la distribution granulométrique des échantillons a été mesurée au laboratoire par diffraction laser avec un CILAS 1190. Pour les échantillons solides obtenus avec la centrifugeuse ou le piège à sédiments, l'analyse est effectuée sur un aliquot prélevé avant la congélation et la lyophilisation,

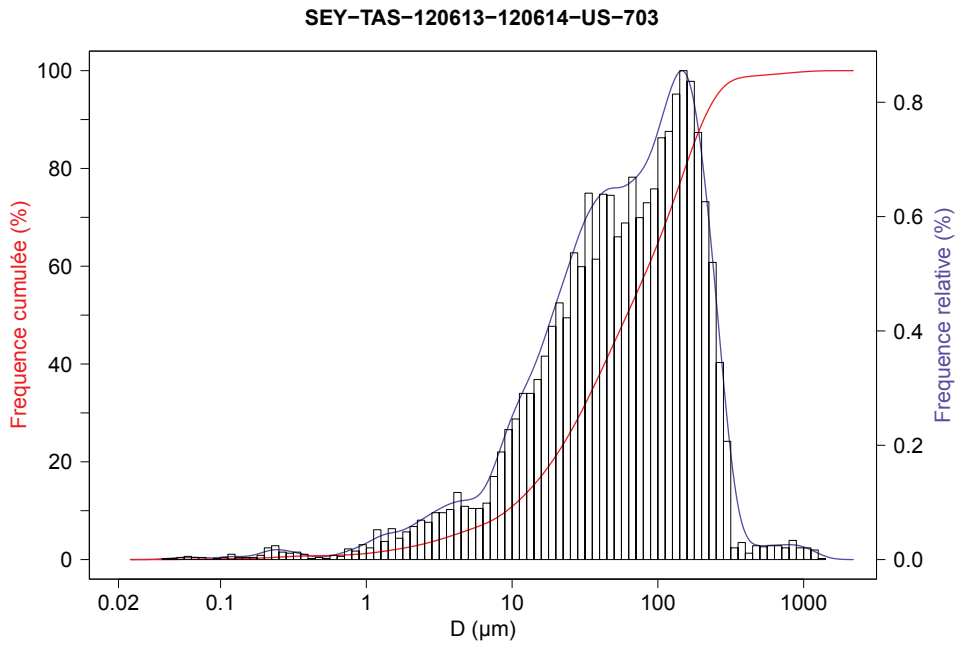


FIGURE 2.7 – Distribution de fréquence des diamètres D représentée sous la forme d'un histogramme (noir), d'une courbe des fréquences relatives (bleue) et d'une courbe des fréquences cumulées (rouge).

et remis en suspension dans de l'eau du robinet. Les échantillons liquides obtenus par prélèvements manuels sont versés directement dans la cuve d'analyse du granulomètre. Le temps entre le prélèvement et l'analyse granulométrique doit être le plus court possible ; afin de limiter le développement de matière organique, les échantillons sont réfrigérés ($+4\,^{\circ}$C) et conservés à l'abri de la lumière. Préalablement à l'analyse, tous les échantillons sont passés aux ultrasons pour détruire les agrégats qui se sont formés par décantation entre le prélèvement et l'analyse. Les éventuels flocs présents dans le milieu sont également détruits par les ultrasons ; nous considérons qu'il est impossible de faire la distinction entre les rares flocs naturels et ceux formés lors du séjour dans la centrifugeuse ou le piège à sédiment, ou dans le flacon de conservation. L'utilisation des ultrasons permet de s'affranchir du problème de la formation des flocs et de revenir aux particules élémentaires qui circulent dans le cours d'eau et qui sont les plus représentatives pour la chimie.

A partir des mesures réalisées, nous avons extrait les distributions granulométriques exprimées en volumique et en surfacique, ainsi que les diamètres caractéristiques d_{10}, d_{50} et d_{90} de ces deux types de distributions.

2.3.4 Carbone organique particulaire

Les analyses de carbone organique particulaire (COP) ont été réalisées par le laboratoire d'analyse des sols de l'INRA à Arras. La teneur en carbone organique de l'échantillon est déterminée selon

la norme ISO 10694 (ISO, 1995) après combustion sèche.

La détermination du carbone total est réalisée sur une micro-pesée (de l'ordre de 25 mg) de l'échantillon. Celle-ci est portée à 1000 ° C en présence d'oxygène pour transformer tout le carbone de l'échantillon en dioxyde de carbone (CO_2). Les oxydes d'azote formés lors de cette opération sont alors réduits et l'oxygène en excès est éliminé par fixation. Les gaz alors présents dans l'échantillon, azote moléculaire et CO_2, sont séparés par chromatographie et quantifiés à l'aide d'un catharomètre.

Le carbone minéral est déterminé à partir du taux de carbonates dans les sols à l'aide de la méthode normalisée NF ISO 10693 de calcimétrie. Cette dernière consiste à placer un échantillon de sol en milieu acide afin de décomposer les carbonates et dégager le carbone minéral sous forme de dioxyde de carbone (CO_2).

Le carbone organique est ensuite déterminé par calcul de la différence entre le carbone total et le carbone minéral. La LQ de cette méthode d'analyse est de 0,05 g/kg.

2.3.5 Mercure total

Le mercure total particulaire a été déterminé selon la norme EPA 7473 (USEPA, 2007) par décomposition thermique, amalgamation sur piège de sable doré et spectrophotométrie d'absorption atomique. La quantification du mercure se fait par application de la loi de Beer-Lambert. L'appareil utilisé est un analyseur direct de mercure DMA 80 (marque Milestone) avec portoir automatique. La LQ de la méthode, déterminée selon la norme NF T 90-210 (AFNOR, 2009), est de 0,010 mg/kg de matière sèche.

La séquence d'analyse commence par un essai à vide, nacelles vides, pour conditionner l'appareil. Viennent ensuite l'analyse d'un matériau de référence certifié (MRC) proche de la nature des échantillons, et enfin celle des échantillons, en répétant toutes les 10 nacelles un essai à blanc et l'analyse du MRC. En fonction de la nature de l'échantillon, la prise d'essai nécessaire à l'analyse varie de 30 mg à 100 mg. Les résultats sont exprimés en masse de mercure par masse sèche de MES. Tous les échantillons analysés ont des teneurs en mercure supérieures à la LQ.

Le MRC utilisé est le sédiment marin IAEA 433, certifié à 0,168 ± 0,034 mg/kg de mercure. La teneur obtenue lors de chaque analyse du MRC est reportée sur une carte de contrôle pour contrôler la justesse et la fidélité de la méthode selon la norme NF T 90-220 (AFNOR, 2003). L'incertitude analytique correspond à deux fois le coefficient de variation (écart-type / moyenne) des valeurs

obtenues pour le MRC. Elle est arrondie à la valeur supérieure, de 0,5 en 0,5. L'incertitude analytique élargie à 95 % établie à partir de 30 mesures du MRC avec cette méthode est de 10,5 % (k=2).

La justesse de la méthode est contrôlée par un test de justesse sur les résultats d'analyse du MRC. Ce test consiste à déterminer l'écart normalisé EN suivant :

$$EN = \frac{|m_{mes} - m_{cert}|}{2\sqrt{\frac{s_{mes}^2}{n} + s_{cert}^2}} \tag{2.4}$$

avec m_{mes} et s_{mes} la moyenne et l'écart-type des teneurs mesurées, m_{cert} et s_{cert} la teneur et l'écart-type certifiés, et n le nombre d'analyses du MRC. On considère qu'il n'y a pas d'erreur de justesse significative si $EN < 1$. Le test de justesse réalisé à partir de 30 mesures du MRC donne un EN de 0,36.

Par ailleurs, des tests interlaboratoires sont réalisés au sein de l'AGLAE (Association générale des laboratoires d'analyse de l'environnement [4]). Les résultats d'analyse d'un laboratoire sont déterminées par le calcul du z-score, tel que $z = (x - X)/\sigma$, avec x la teneur moyenne obtenue par le laboratoire, X la teneur moyenne de référence utilisée pour l'évaluation et σ l'écart-type des résultats obtenus par les participants. Si $|z| \leq 2,0$, le résultat du laboratoire est jugé "satisfaisant", si $2,0 \leq |z| \leq 3,0$, le résultat est "douteux" et si $|z| \geq 3,0$, le résultat est "insatisfaisant". Les résultats obtenus par le laboratoire dans le cadre de ces tests ont été jugés très satisfaisants ($|z| < 1$).

2.3.6 Polychlorobiphényles

Les congénères analysés sont les 7 polychlorobiphényles indicateurs (PCBi), c'est-à-dire les PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153 et 180. Leurs formules chimiques exactes sont données en Annexe A. Ces congénères ont été les plus utilisés dans les mélanges commerciaux et sont donc les plus retrouvés dans l'environnement (Cf. §3.1). L'analyse repose sur une extraction solide/liquide des PCB contenus dans les MES dans un solvant organique. L'extrait ainsi obtenu est purifié sur cartouche de Fluorisil et analysé par chromatographie en phase gazeuse couplée à un détecteur par capture d'électrons 63Ni (GC-ECD) selon la norme XP X33-012 (AFNOR, 2000b). La prise d'essai nécessaire à l'analyse est de 1 g de matière sèche.

L'extraction est réalisée selon une méthode d'extraction accélérée par solvant (ASE) au moyen d'un extracteur automatique Dionex ASE350 (Dionex, USA). Les PCB contenus dans la matrice solide sont extraits par un mélange cyclohexane/acétone (90/10 en volume), porté à haute tem-

4. http ://association-aglae.fr/

pérature et haute pression (80 °C, 100 bars). Le contrôle de l'extraction est réalisé en ajoutant 4 traceurs de méthode (PCB 119, 141, 198 et 209) à des concentrations connues dans les échantillons. Ces traceurs sont des molécules ayant les mêmes caractéristiques que les molécules recherchées et qui sont initialement absentes de l'échantillon analysé. La concentration de ces traceurs dans le solvant à l'issue de l'extraction est comparée à leur concentration initiale pour établir le rendement d'extraction. Ce rendement est utilisé en fin d'analyse pour corriger les concentrations mesurées pour les composés recherchés. L'extrait est ensuite concentré par évaporation avant d'être purifié pour éliminer les substances susceptibles d'interférer avec les composés recherchés. La purification est réalisée par élutions successives sur des cartouches de Florisil (1 g, 6 mL), puis de la poudre de cuivre est ajoutée pour éliminer le soufre présent dans l'échantillon.

Le dosage des PCB dans les extraits de MES est réalisé par GC-ECD, avec un chromatographe Varian 3800 équipé d'un passeur d'échantillon Varian 8200. L'analyse est réalisée sur deux colonnes chromatographiques de polarité différente (Restek RTX-PCB et Restek RTX-5) pour permettre une meilleure séparation des composés. La Fig. 2.8 montre un exemple de chromatogramme obtenu avec chacune des deux colonnes utilisées. Les composés sont identifiés selon leurs temps de rétention, définis préalablement par analyse des congénères séparément. Les concentrations des composés analysés sont proportionnelles aux aires des pics apparaissant sur le chromatogramme. Un étalon interne (PCB 34 ou octachloronaphtalène OCN) de concentration connue est ajouté à chaque extrait avant l'analyse pour connaître le rapport entre l'aire du pic et la concentration. La limite de quantification (LQ) de cette méthode est de 0,50 μg/kg pour chaque PCB, excepté pour les PCB 52 et 118 pour lesquels elle est de 0,75 μg/kg. Les résultats des analyses sont exprimés en μg de PCB par kg de MES sèches pour chaque congénère analysé et sous la forme de la somme des 7 PCBi. Lorsqu'un des congénères n'est pas quantifié, la valeur qui lui est attribuée pour effectuer la somme des PCBi correspond à sa LQ divisée par 2.

La propreté du système chromatographique est contrôlée en injectant de l'isooctane en début de séquence d'analyse. La linéarité de la réponse d'analyse est vérifiée en établissant une courbe d'étalonnage à l'aide de solutions étalons. Les solutions étalons sont composées d'un mélange de concentration connue des congénères recherchés. Les concentrations des solutions étalons vont de 0,5 à 250 μg/L. La justesse de la réponse de chaque composé par rapport à la droite d'étalonnage initiale est vérifiée en analysant régulièrement (tous les 10 à 15 échantillons) deux contrôles qualités (CQ), l'un en bas de gamme (2 μg/L), l'autre en haut de gamme (80 μg/L). L'écart entre la valeur attendue et celle mesurée doit être inférieure à 30 % en bas de gamme et 20 % en haut de gamme pour que la méthode soit validée. Les CQ sont préparés à partir des mêmes solutions mères que les étalons, mais à partir d'autres solutions intermédiaires et filles afin de vérifier d'éventuelles erreurs

de dilution lors de la préparation de la gamme d'étalonnage. L'analyse de solutions commerciales de concentrations connues permet de s'assurer de la justesse de la réponse.

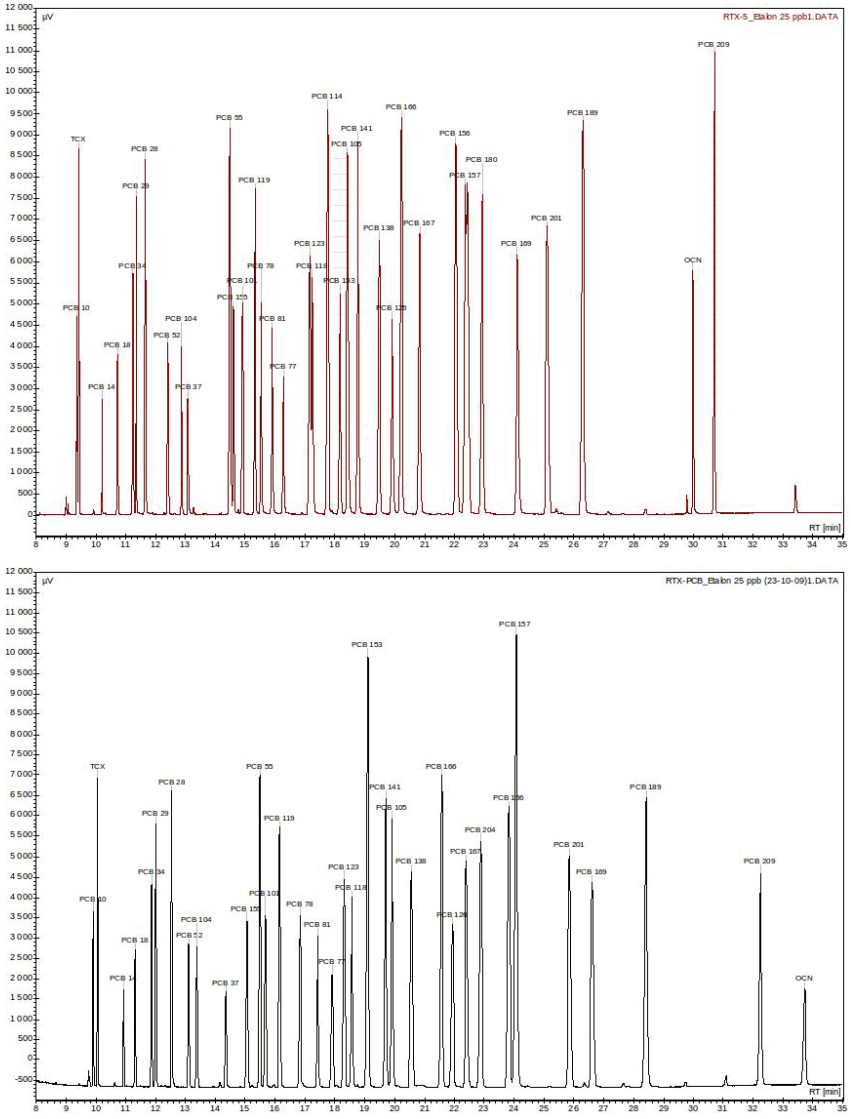


FIGURE 2.8 – Exemples de chromatogrammes obtenus sur les colonnes Restek RTX-5 et RTX-PCB

La chaîne d'analyse, de l'extraction à la quantification sur le chromatogramme, est réalisée par séries de 10 échantillons de terrain, complétés d'un échantillon dit "blanc MES" et d'un échantillon de référence. L'échantillon "blanc MES" est constitué de sable d'Ottawa préalablement calciné pendant 4 heures à 450 °C et dopé uniquement en traceurs de méthode. Il suit tout le protocole analytique pour vérifier la pureté des solvants et des réactifs et la propreté du matériel et de toute la verrerie utilisés. L'échantillon de référence utilisé est constitué de MES prélevées dans la Bourbre, un affluent du Rhône contaminé aux PCB. Sa matrice est donc proche de celle des échantillons analysés et ses teneurs sont du même ordre de grandeur que les teneurs analysées. Une carte de contrôle des

résultats est établie pour chacun des composés quantifiés dans cet échantillon de référence et permet la définition de l'incertitude analytique (norme NF T 90-220, AFNOR (2003)). L'incertitude analytique correspond à deux fois le coefficient de variation (moyenne / écart-type) des valeurs obtenues pour l'échantillon de référence. Elle est arrondie à la valeur supérieure, de 0,5 en 0,5. L'incertitude analytique élargie établie à partir de 19 mesures de l'échantillon de référence varie de 10 à 27,5 % selon les congénères analysés.

Le laboratoire d'analyse d'Irstea a vérifié la justesse de l'ensemble du protocole d'analyse des PCB dans les MES en participant à un essai interlaboratoire international organisé par Quality Consult Srl[5], auquel ont participé 13 laboratoires en 2013. Dans le cas des 7 congénères de PCB indicateurs, les résultats d'Irstea ont été jugés satisfaisants ($|z| \leq 2,0$, cf. §2.3.5 pour le détail de l'expression des résultats d'essais interlaboratoires).

2.4 Traitement des résultats d'analyse physico-chimique

2.4.1 Description de la distribution granulométrique d'échantillons multimodaux

Les distributions granulométriques de la plupart des échantillons que nous avons collectés présentent un caractère multimodal. Nous avons vu au §2.3.3 que les valeurs caractéristiques usuellement utilisées pour décrire les descriptions granulométriques, telles que les d_{10}, d_{50} et d_{90}, sont inadaptées pour tenir compte du caractère multimodal des échantillons. Nous avons donc développé un outil pour décrire plus précisément les distributions granulométriques observés dans nos échantillons.

La distribution granulométrique d'une population de sédiments de granulométrie homogène est généralement considérée comme une loi lognormale, du fait des processus de tri subis par les particules au cours de leur transport dans le milieu (Krumbein, 1934; Visher, 1969; Middleton, 1976; Chamley, 1987; Blott et Pye, 2001). Par définition, si le diamètre D suit une loi lognormale, le $\log_{10} D$ suit une loi normale d'équation :

$$f(X) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \mathrm{e}^{-\frac{1}{2}\left(\frac{X-\mu}{\sigma}\right)^2} \tag{2.5}$$

$$f(D) = \frac{1}{D\ \ln 10\ \sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\log_{10} D - \mu)^2}{2\sigma^2}\right) \tag{2.6}$$

avec $X = \log_{10} D$, μ l'espérance et σ l'écart-type des deux lois. Le diamètre médian de la population granulométrique est donc $d_{50} = 10^{\mu}$.

5. http ://www.aqc.it

Dans le cas de nos échantillons, il semble que les particules qui les composent appartiennent à plusieurs sous-populations homogènes de particules mélangées et suivant chacune une loi log-normale. Le caractère multimodal de la distribution granulométrique de l'échantillon serait par conséquent dû au mélange des différentes lois lognormales.

Exprimée en $\log D$, la distribution granulométrique devient un mélange de lois normales, caractéristiques des sous-populations en présence. La fonction normalmixEM du package Mixtools de R (Benaglia *et al.*, 2009) a été conçue pour identifier les paramètres des distributions normales dans un échantillon composé d'un mélange de populations normalement distribuées. Le calcul se fait de façon itérative par la méthode du maximum de vraisemblance avec l'algorithme EM (pour Espérance-Maximisation) proposé par Dempster *et al.* (1977).

Nous avons utilisé cette fonction pour identifier les lois normales dans les distributions granulométriques volumiques des échantillons de MES collectées sur le Haut-Rhône et exprimées en $\log D$. L'utilisateur formule une supposition sur le nombre de lois normales à trouver dans le mélange ; nous avons fait plusieurs tests en recherchant 2 à 6 lois normales au sein des distributions. A l'issue du calcul, l'outil donne les paramètres μ et σ des lois normales et un paramètre λ en pourcentage représentant la proportion de la sous-population dans l'échantillon de départ. Le nombre d'itérations nécessaires pour atteindre ce résultat est également fourni.

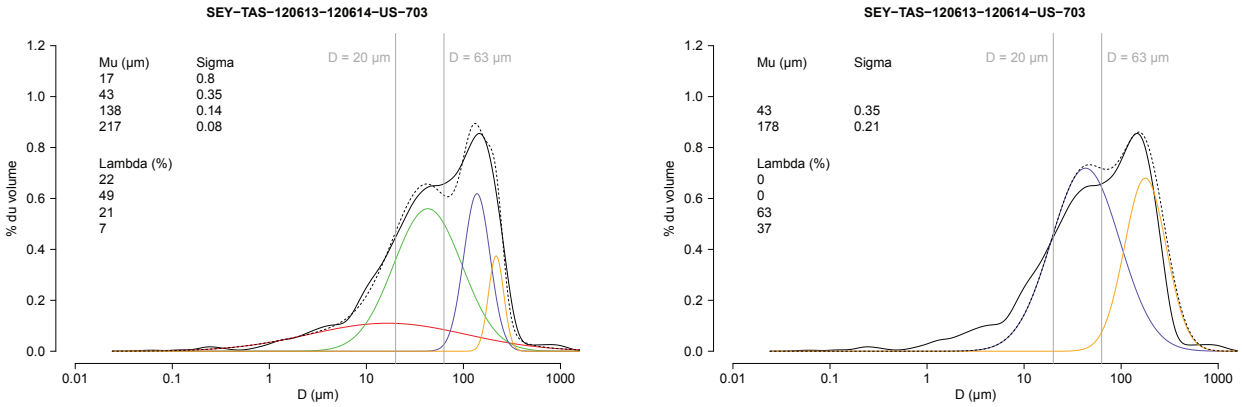
L'observation des distributions granulométriques volumiques a permis d'identifier 4 gammes de diamètre dans lesquels les modes granulométriques apparaissent pour la plupart de nos échantillons. Les classes ont été centrées sur les valeurs de mode qui reviennent le plus souvent (Cf. Tab.2.2). Les classes définies permettent aussi un lien avec les classes sédimentologiques usuelles.

Tableau 2.2 – Définition des 4 sous-populations granulométriques identifiées dans nos échantillons.

Mode moyen (coefficient de variation %)	Gamme de diamètres	Classes sédimentologiques correspondantes
4 μm (29 %)	1 - 10 μm	argiles et limons très fins
14 μm (16 %)	10 - 27 μm	limons fins
39 μm (10 %)	27 - 80 μm	limons grossiers
136 μm (48 %)	80 - 2 500 μm	sable fin à grossier

L'automatisation de la séparation en 4 sous-populations granulométriques conduit dans certains cas à devoir "nettoyer" les résultats, c'est-à-dire à regrouper les lois contenues dans la même sous-population et à éliminer les sous-populations irréalistes. C'est le cas par exemple sur la Fig. 2.9a des courbes bleue et jaune, qui représentent deux sous-populations de particules de sable fin. Pour certains échantillons, la séparation en 4 sous-populations fait apparaître une loi avec un écart-type σ grand, i.e. supérieur à 0,5, comme pour la courbe rouge sur la Fig. 2.9a. Par définition de la loi normale, 95 % de la population représentée par la loi se situe dans l'intervalle $[\mu\text{-}2\sigma\,;\mu\text{+}2\sigma]$. Un σ de 0,5 représente donc une loi normale qui s'étale sur deux ordres de grandeur de D. Une

telle sous-population ne paraît donc pas réaliste. Enfin, une sous-population avec une proportion λ inférieure à 1 % et un mode à 0,41 μm apparaît dans presque tous les échantillons analysés. Sur la Fig. 2.9a, elle n'a pas été identifiée par Mixtools, mais on observe un petit mode dans cette gamme de diamètre dans la distribution initiale. Ce mode se situe dans la partie basse de la gamme de mesure du granulomètre laser, qui varie de 0,02 à 2500 μm d'après le constructeur. Syvitski (2007) indique toutefois qu'en-dessous de 2 μm l'analyse effectuée au granulomètre laser en appliquant le modèle de Fraunhofer n'est plus fiable et que le modèle de Mie doit être appliqué. L'intercomparaison de plusieurs appareils OSR en utilisant des échantillons standard menée par Sabatier et al, 2013 (en préparation) indique que pour des diamètres inférieurs à 1 μm, l'analyse laser devient douteuse et que le mode mesuré régulièrement à 0,41 μm est vraisemblablement un artefact de mesure.



(a) (b)

FIGURE 2.9 – Distribution volumique (trait noir continu) exprimée en $\log_{10} D$ d'un échantillon de piège à sédiments prélevé à Seyssel entre le 13 et le 14/06/2013 : lois normales identifiées avec l'outil Mixtools de R (a) avant et (b) après nettoyage des résultats. Pointillés : somme pondérée des lois normales. Barres verticales grises : seuils de coupure classiques de normalisation à 20 et 63μm.

Les sous-populations sont identifiées comme irréalistes et éliminées lorsqu'une des trois conditions suivantes est remplie :

- $\sigma > 0{,}5$
- $\mu < 1$ μm
- $\lambda < 1$ %

Une fois les lois aberrantes éliminées, les λ restants sont normés pour que leur somme atteigne de nouveau 100 %. Puis, les lois normales restantes sont regroupées au sein des 4 classes de diamètres médians identifiées précédemment pour les échantillons du Haut-Rhône (1-10 μm, 10-27 μm, 27-80 μm et 80-2500 μm). Lorsque plusieurs lois normales se trouvent dans la même classe de particules, elles sont recombinées pour ne former qu'une seule loi normale :

- μ est alors égale à la moyenne des μ_i des lois normales séparées ;

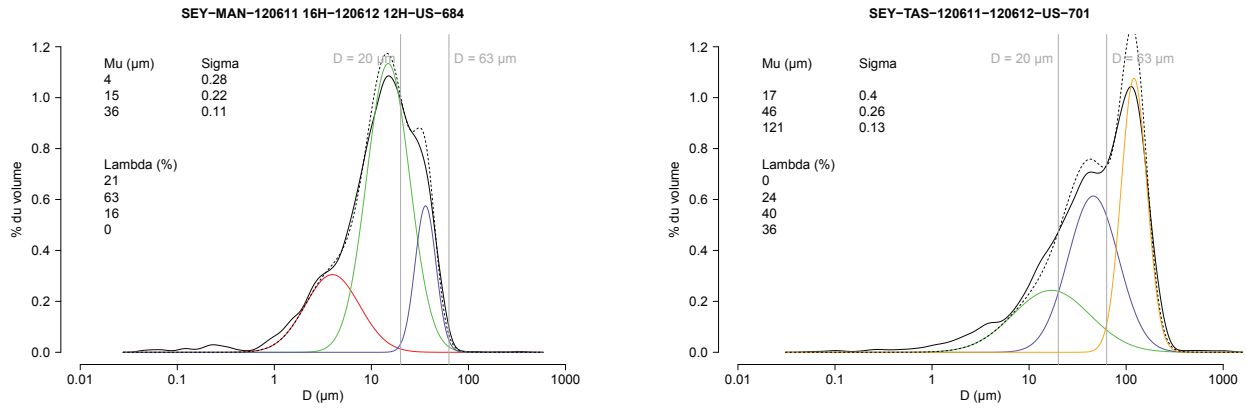
- $\sigma = \sum_i \frac{\lambda_i}{\sum_i \lambda_i} \sigma_i$

La Fig. 2.9b présente les lois normales obtenues après avoir trié les lois normales de la Fig. 2.9a fournies par l'outil Mixtools. La combinaison linéaire des lois normales identifiées dans ces deux échantillons est très proche de la distribution granulométrique mesurée. Cette méthode permet donc de caractériser les lois normales des sous-populations granulométriques en présence et ainsi de décrire la distribution granulométrique en tenant compte de son caractère multimodal. Une telle description se révèle très intéressante pour prendre en compte des comportements différents des sous-populations en présence. Elle trouve son application dans l'interprétation des données particulaires telles que les vitesses de chute de particules, les constantes acoustiques d'atténuation ou les teneurs en contaminant (Cf. Launay et al, 2014, en préparation).

2.4.2 Correction par suppression de la fraction non porteuse

Les données de teneurs en contaminants dans les MES dont nous disposons sur le Rhône ont été obtenues à partir de prélèvements effectués avec trois dispositifs différents, par centrifugation, manuellement ou à l'aide de pièges à sédiments (Cf. §2.3.1). Lorsque les pièges à sédiments étaient vidés, nous avons effectué systématiquement un prélèvement manuel ou la centrifugeuse, ce qui nous fournit des échantillons concomitants, prélevés avec des systèmes différents. Lors des périodes de régime de base, les pièges à sédiments étaient relevés tous les 15 jours et lors d'événements particuliers (crues ou chasses de barrage), les pièges ont été relevés tous les jours. Pour pouvoir comparer les échantillons de piège avec les échantillons ponctuels réalisés manuellement et à la centrifugeuse, il faut vérifier que le débit et la concentration en MES étaient relativement stables au court de la période d'exposition du piège. Nous disposons ainsi d'un jeu de 38 paires d'échantillons collectés par piège à sédiment et manuellement ou à la centrifugeuse.

A partir de ces données, nous avons constaté que les teneurs en mercure et PCB pouvaient varier d'un facteur deux entre les échantillons collectés simultanément avec deux systèmes différents. Les différences de teneur en contaminants entre les échantillons prélevés par différentes techniques pourraient être liées à une différence de caractéristiques des particules échantillonnées. En effet, l'affinité des contaminants pour les particules est en général gouvernée par la taille des particules et par la composition des particules, notamment leur teneur en carbone organique (Cf. §1.2.1). L'analyse granulométrique des particules des échantillons constitue un bon moyen de contrôler que les différents dispositifs ne modifient pas les caractéristiques des particules par rapport au milieu, et que l'échantillon obtenu est représentatif des MES.



(a) (b)

FIGURE 2.10 – Distributions granulométriques volumiques de deux échantillons prélevés à Seyssel entre le 11 et le 12/06/2013 : (a) manuellement (échantillon composite) et (b) avec un piège à sédiments. Lois normales identifiées avec Mixtools. Pointillés : somme pondérée des lois normales. Barres verticales grises : seuils de coupure classiques de normalisation à 20 et 63μm.

La caractérisation de la nature des particules collectées par les différents systèmes de prélèvement a permis de mettre en évidence qu'il n'y a pas de différence significatives entre les distributions granulométriques des échantillons collectés manuellement et avec la centrifugeuse (Cf. Annexe C). On peut donc considérer que le prélèvement avec la centrifugeuse fournit un échantillon dont les caractéristiques granulométriques ne diffèrent pas de celles des MES. Par ailleurs, les échantillons prélevés manuellement et avec la centrifugeuse ne contiennent jamais de particules grossières, i.e. appartenant à la sous-population 80-2500 μm définie au §2.4.1.

En revanche, les échantillons collectés avec les pièges à sédiments peuvent contenir dans certains cas une proportion variable de particules grossières (Cf. Fig. 2.10). Ces particules grossières sont principalement présentes dans les échantillons collectés en conditions extrêmes (chasses de barrage ou crues) lorsque les pièges sont placés trop près du fond. Les pièges sont alors exposés à des particules grossières qui ne sont pas collectées par les autres systèmes de prélèvement et qui ne font pas partie des MES telles que nous les avons définies au Chap. 1. Hormis ces particules grossières, les échantillons collectés dans les pièges à sédiments présentent les mêmes sous-populations fines que les échantillons de référence (manuels ou par centrifugation) ; les μ et σ des lois normales identifiées dans les différents échantillons sont en effet à peu près constants (Cf. Chap. 4). Seules les proportions des sous-populations sont modifiées par les pièges à sédiments par rapport au échantillons de référence.

La correction des teneurs en mercure et PCB des échantillons de pièges à sédiments en supprimant la fraction grossière non porteuse (80-2500 μm) donne des résultats prometteurs, bien que certains cas restent problématiques (chasses de juin 2012, Cf. Annexe E, en préparation). Cette méthode reste à améliorer pour corriger efficacement les échantillons affectés par une sous-population de particules grossière et utiliser les teneurs en contaminants collectées avec les pièges à sédiments lors quelques périodes au cours desquelles ils ont été exposés aux particules grossières.

Les teneurs de piège à sédiments de la station de Jons, utilisées dans la suite du travail, n'ont pas nécessité de correction puisque la fraction grossière en était absente.

2.4.3 Normalisation des teneurs en contaminants

Les teneurs en mercure et PCB de nos échantillons, une fois corrigées pour supprimer le biais engendré par la présence de particules grossières, varient au cours du temps pour une même station et d'une station à l'autre (Cf. Chap. 4). Pour déterminer si les variations de teneurs observées sont dues à des différences de niveaux de contamination ou à des variations des caractéristiques des particules porteuses, nous proposons d'étudier les teneurs en contaminants portées par les trois sous-populations granulométriques fines présentes dans nos échantillons.

Pour ce faire, nous disposons de 6 prélèvements réalisés avec la centrifugeuse CEPA (Cf. §2.3.1.4) à Creys et à Jons au cours des opérations de suivi de chasse en juin 2012 (Cf. §3.4.2). Dans cette centrifugeuse, le cylindre est recouvert d'une feuille de Téflon sur laquelle les MES sont récupérées en fin de prélèvement. La position verticale du cylindre lors du prélèvement entraîne un tri des particules selon la gravité et les plus grosses particules se trouvent plutôt dans la partie basse de la feuille de Téflon. Lors d'un prélèvement classique, l'ensemble des particules déposées sur la feuille de Téflon qui recouvre le cylindre est collecté et mélangé dans un flacon. Pour les 6 échantillons de juin 2012, 4 aliquots de MES ont été prélevés à différentes hauteurs de la feuille de Téflon, avant de constituer un échantillon composite contenant le reste des particules, comme indiqué sur la Fig. 2.11.

Pour chaque prélèvement, les teneurs en $\sum$PBCi et en mercure varient d'un facteur 2 entre les 5 sous-échantillons ainsi constitués (Cf. Fig. 2.12). Les teneurs les plus importantes en mercure et en $\sum$PBCi ont été mesurées dans le sous-échantillon D qui se trouve dans la partie inférieure de la feuille, et qui contient la plus importante proportion de particules fines (1-10 μm). Les sous-échantillons B et E contenant les plus importantes proportions des sous-populations 10-27 μm et 27-80 μm présentent les teneurs en contaminants les plus faibles.

A partir du jeu de données dont nous disposons (5 sous-échantillons pour 6 prélèvements), il est possible de déterminer la teneur en contaminant de chaque sous-population granulométrique. Pour

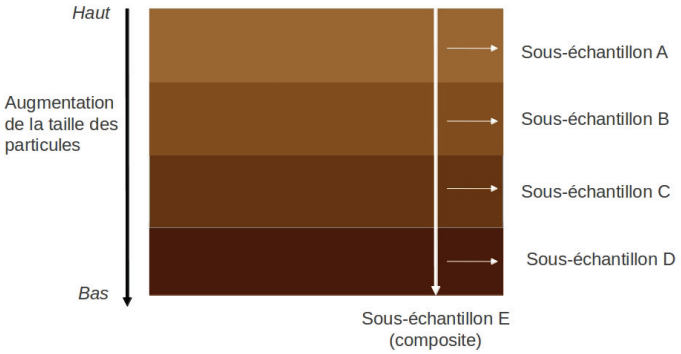


FIGURE 2.11 – Schéma de la feuille de Téflon (env. 1 m x 0,5 m) extraite du cylindre vertical de la centrifugeuse AMP et détail de la constitution des sous-échantillons : 4 fractionnements granulométriques et un sous-échantillon composite.

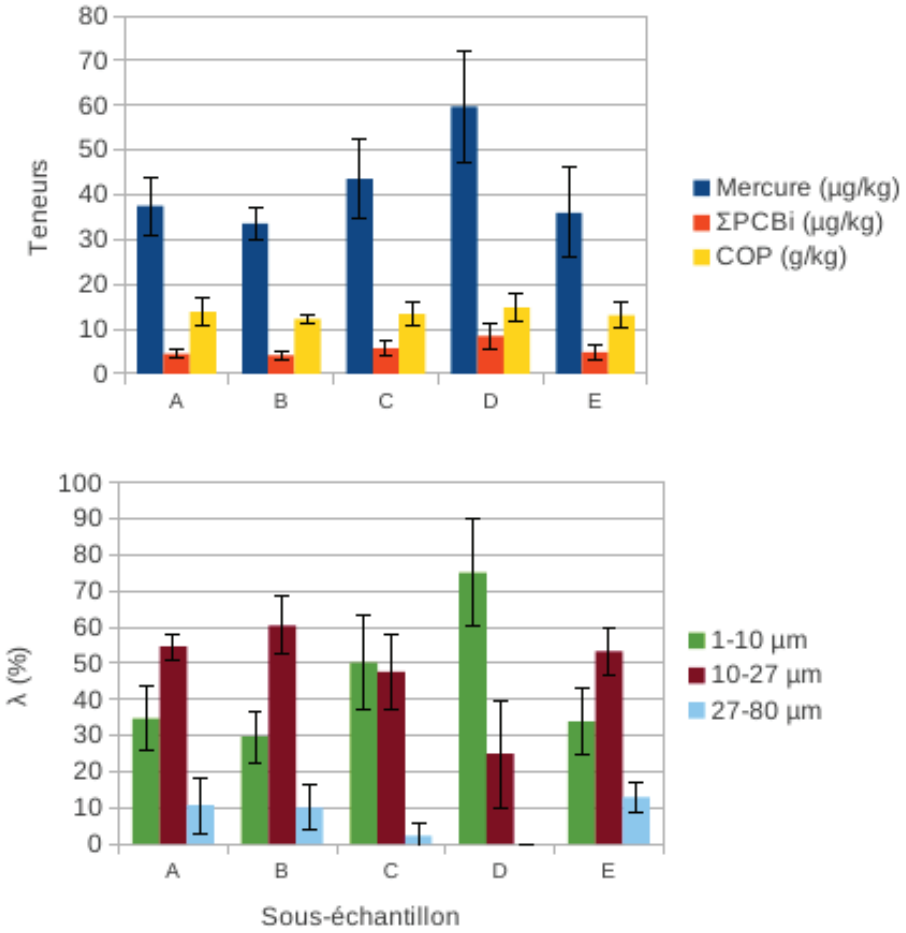


FIGURE 2.12 – Teneurs moyennes en mercure, en somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) et en carbone organique particulaire et proportions (λ) des sous-populations granulométriques des sous-échantillons A à E réalisés dans les 6 prélèvements à la centrifugeuse de juin 2012.

un échantillon donné, la conservation de la masse de contaminant s'écrit

$$\Gamma = \sum_i \gamma_i \tag{2.7}$$

avec Γ la masse de contaminant de l'échantillon total et γ_i la masse de contaminant associée à la sous-population i. En rapportant les masses de contaminant aux masses de l'échantillon total (M) et des sous-populations (m_i), on obtient :

$$\begin{aligned} C &= \Gamma/M = \textstyle\sum_i \gamma_i/M \\ &= (m_1\frac{\gamma_1}{m_1} + m_2\frac{\gamma_2}{m_2} + ...)/M \\ &= \textstyle\sum_i \frac{m_i}{M} C_i \end{aligned} \tag{2.8}$$

avec C la teneur en contaminant de l'échantillon analysé et C_i de la sous-population granulométrique. Sous hypothèse de masse volumique ρ constante pour toute taille de particule, les m_i/M sont assimilés aux $\lambda_i = v_i$/V obtenus à partir de l'analyse de la distribution granulométrique volumique :

$$C = \textstyle\sum_i \frac{m_i}{M} C_i = \sum_i \frac{\rho v_i}{\rho V} C_i = \sum_i \lambda_i C_i \tag{2.9}$$

Pour chaque prélèvement, on peut donc écrire le système d'équations suivant :

$$\begin{cases} C_A = \lambda_{A,1}C_1 + \lambda_{A,2}C_2 + \lambda_{A,3}C_3 \\ C_B = \lambda_{B,1}C_1 + \lambda_{B,2}C_2 + \lambda_{B,3}C_3 \\ C_C = \lambda_{C,1}C_1 + \lambda_{C,2}C_2 + \lambda_{C,3}C_3 \\ C_D = \lambda_{D,1}C_1 + \lambda_{D,2}C_2 + \lambda_{D,3}C_3 \\ C_E = \lambda_{E,1}C_1 + \lambda_{E,2}C_2 + \lambda_{E,3}C_3 \end{cases} \tag{2.10}$$

où C_{A-E} sont les teneurs en contaminants mesurées dans les 5 sous-échantillons, $\lambda_{A-E,1-3}$ les proportions des sous-populations et C_{1-3} les teneurs en contaminants des sous-populations qui sont à déterminer. Ce système est surdéterminé (plus d'équations que d'inconnues). Pour le résoudre, nous avons utilisé la fonction constrOptim du logiciel R (package stats), qui permet d'effectuer une optimisation de paramètres sous contrainte linéaire (Lange, 2010). La contrainte que nous avons imposée est que les teneurs C_i des sous-populations doivent être positives ou nulles.

Les teneurs en $\sum$PCB$_i$, mercure et COP des 3 sous-populations granulométriques volumiques 1-10 μm, 10-27 μm et 27-80 μm des 6 échantillons AMP sont représentées sur la Fig. 2.13.

L'analyse n'a pu être effectuée que sur 6 prélèvements, néanmoins, les écart-types des teneurs obtenues sont plutôt faibles (CV = 15 à 45 %). Les teneurs obtenues pour chaque sous-population sont donc relativement constantes.

Pour le mercure comme pour les PCB, la teneur en PCB la plus importante est obtenue dans la sous-population la plus fine et la teneur la plus faible est obtenue dans la sous-population intermédiaire. Dans la littérature, il est indiqué que la teneur en contaminants des particules augmente

lorsque la taille diminue (Cf. §1.2.1). Cet exemple montre que Le lien entre la teneur en contaminant et la granulométrie n'est pas aussi direct.

Les teneurs en COP sont également moins concentrées dans la fraction intermédiaire que dans les deux autres fractions. Le rapport des teneurs en $\sum PCB_i$ et des teneurs en COP est de 0,2 à 0,5 et celui des teneurs en $\sum PCB_i$ et des teneurs en COP est de 2 à 4 dans les différentes sous-poplations, la sous-population intermédidaire présentant dans les deux cas le rapport le plus faible. La teneur en PCB et en mercure semble donc étroitement liée à la teneur en COP des particules. Cette observation conforte les observations présentées dans Angot *et al.* (2013) et en Annexe E sur l'intérêt d'une normalisation des teneurs en PCB par le COP pour pouvoir les comparer en s'affranchissant des variations de caractéristiques des particules.

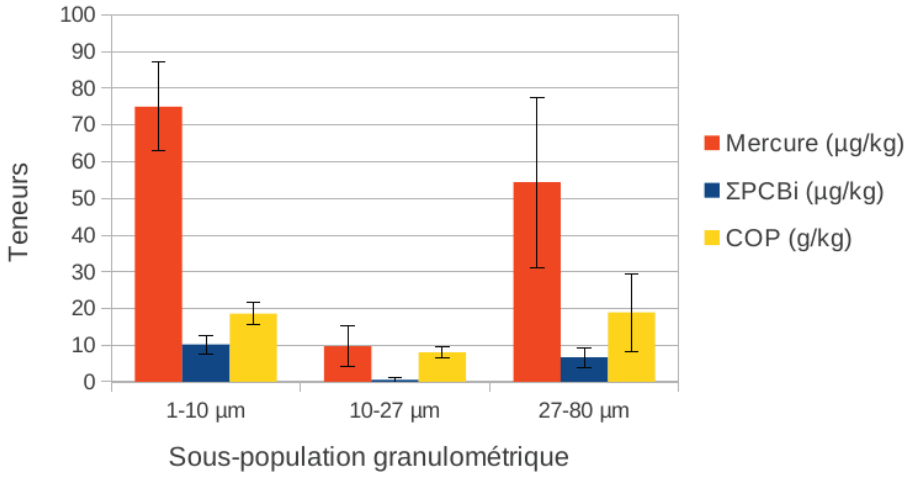


FIGURE 2.13 – Teneurs moyennes en mercure, en somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) et en carbone organique particulaire par sous-populations granulométriques des sous-échantillons A à E réalisés dans les 6 prélèvements à la centrifugeuse de juin 2012.

Une fois l'échantillon débarrassé de son éventuelle fraction non porteuse, une fois normalisée la teneur par le COP pour s'affranchir de l'affinité variable des contaminants pour les particules porteuses, les différences de teneur sont directement interprétables comme des niveaux de contamination variables ou non, dans le temps (suivi Jons, chasse) ou dans l'espace (affluents, chasse).

2.5 Outils statistiques d'interprétation des données

2.5.1 Les boîtes à moustaches

La représentation de données sous forme d'un boxplot permet de représenter la distribution de valeurs sous forme simplifiée avec la médiane (trait épais), la moyenne (symbole de couleur différente), une boîte s'étendant du quartile 0,25 au quartile 0,75, et des moustaches qui s'étendent par défaut jusqu'à la valeur distante d'au maximum 1,5 fois la distance interquartile. Les valeurs

extrêmes, se situant au delà des moustaches, sont représentés sous la forme de points noirs. Dans certains cas signalés dans la légende des graphiques, les moustaches sont étendues jusqu'aux valeurs minimale et maximale mesurées.

2.5.2 Le test de Wilcoxon Mann-Whitney

Le test de Wilcoxon Mann-Whitney est utilisé pour comparer les populations de deux échantillons indépendants. Ce test compare la moyenne de deux échantillons indépendants de petite taille, à partir de 4 à 8 individus. Il est dit non-paramétrique car aucun hypothèse n'est faite sur la distribution suivie par les deux échantillons. Les valeurs des deux distributions sont rassemblées en un même groupe, puis converties par numéros d'ordre en rang. Les deux échantillons sont alors reconstitués et la somme des rangs est calculée pour chacun. L'hypothèse testée est que la somme des rangs des deux échantillons est analogue, avec un seuil de significativité de 5 %. Le test fournit une valeur de p (p-value) qui signifie :

- p $>$ 0,05 : différence non significative (ns)
- 0,05 $>$ p $>$ 0,01 : différence peu significative (*)
- 0,01 $>$ p $>$ 0,001 : différence très significative (**)
- 0,001 $>$ p : différence hautement significative (***)

2.5.3 Le coefficient de Spearman

En statistique, la corrélation de Spearman est étudiée lorsque deux variables statistiques semblent corrélées sans que la relation entre les deux variables soit de type affine. Elle consiste à trouver un coefficient de corrélation, non pas entre les valeurs prises par les deux variables mais entre les rangs de ces valeurs. Elle permet de repérer des corrélations monotones. Il faut également souligner que la corrélation de Spearman utilise les rangs plutôt que les valeurs exactes. Cette corrélation est utilisée lorsque les distributions des variables sont asymétriques (skew en anglais). L'interprétation est identique à celle de la corrélation de Pearson.

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé et discuté les différentes techniques utilisées dans cette thèse sur le Rhône et ses affluents pour mesurer la concentration en MES et la teneur en contaminants.

La stratégie d'observation que nous avons choisi privilégie un échantillonnage quasi-continu des concentrations en MES (par turbidimétrie) et teneurs en contaminants (par piège intégratif), associé à des prélèvements de référence (manuels, ou par centrifugation) et à une caractérisation détaillée des particules en termes de granulométrie et de taux de carbone organique. Pour la mettre en œuvre,

les techniques de mesure en continu telles que la turbidimétrie et l'utilisation de pièges à sédiment ont fait l'objet d'un développement et de validation spécifiques.

La question de la granulométrie des particules a été au centre des discussions sur la représentativité des échantillons. Nous avons proposé une méthode innovante d'interprétation des distributions granulométriques, adaptée au caractère multimodal de nos échantillons. Cette méthode offre une nouvelle vision de la granulométrie basée sur l'identification et la caractérisation des sous-populations granulométriques présentes. Les résultats de cette analyse granulométrique mettent en évidence la présence d'une sous-population grossière de particules dans certains échantillons prélevés en conditions défavorables. Cette fr action grossière n'entre pas dans la définition des MES telles que nous les considérons dans cette thèse et nous montrons qu'elle ne porte pas de contamination. Sa présence dans quelques échantillons entraîne par conséquent un biais sur les teneurs en contaminants obtenues et nous proposons une technique pour les corriger basée sur l'élimination de la fraction grossière. Nos échantillons sont composés de trois sous-populations granulométriques fines dont nous étudions les affinités pour les contaminants. Nous avons identifié que les teneurs en mercure sont principalement influencées par la granulométrie des particules présentent dans l'échantillon tandis que les teneurs en PCB sont corrélées plus fortement à la teneur en carbone organique des particules. Nous en avons déduis une méthode de normalisation pour comparer les teneurs en contaminants en s'affranchissant de l'affinité variable des contaminants pour les particules porteuses.

3 Présentation du réseau de mesure et des jeux de données

3.1 Introduction

Le réseau de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires déployé sur le Rhône repose sur deux stations de mesure principales, la station de Jons pour les flux du Haut-Rhône en amont de Lyon et la station d'Arles pour les flux apportés par le Rhône à la Méditerranée. Les affluents du Rhône contribuant majoritairement au flux de MES sont, de l'amont vers l'aval, l'Arve, la Saône, l'Isère et la Durance. Ils ont fait l'objet d'un suivi particulier pour évaluer leur contribution au flux de contaminants particulaires. Les autres affluents du Haut-Rhône (la Vaserine, les Usses, le Fier, le Guiers, l'Ain et la Bourbre) ont également été suivis, principalement lors des crues.

Deux événements hydrosédimentaires importants touchant une grande part du réseau hydrographique sont étudiés dans la suite de ce manuscrit. Il s'agit de l'événement hydrosédimentaire de mai-juin 2008 sur l'Isère, la Durance et le Rhône aval, et des opérations de chasse des barrages du Haut-Rhône de juin 2012. Le suivi particulier de ces deux événements est documenté dans cette partie.

Les données de débit, de concentration en MES, de caractéristiques des MES et de teneurs en contaminants utilisées pour le calcul des flux sont également présentées dans ce chapitre pour évaluer la qualité du jeu de données disponible.

3.2 Les réseaux de suivi des flux particulaires du Rhône

3.2.1 Le réseau Eau et MES de l'Agence de l'Eau

Le réseau Eau et MES de l'Agence de l'Eau Rhône Méditerranée et Corse (AERMC) a permis d'effectuer des prélèvements de MES et de sédiments du fond à raison de 2 à 4 fois par an entre 1991 et 2009 sur 17 stations (Cf. Fig. 3.1, AERMC, 2009). Les données acquises avaient pour premier objectif d'acquérir une vision globale de l'état des cours d'eau à l'échelle du bassin versant.

Les données issues de ce réseau et utilisées dans cette thèse sont celles collectées aux stations du Rhône à Pougny, à Jons, à Ternay, à St Vallier et à Arles, de la Saône à Lyon, de l'Isère à Chateauneuf et à Grenoble et de la Durance aux Mées, pour les années 2000 à 2009. Ces données sont disponibles sur internet [1].

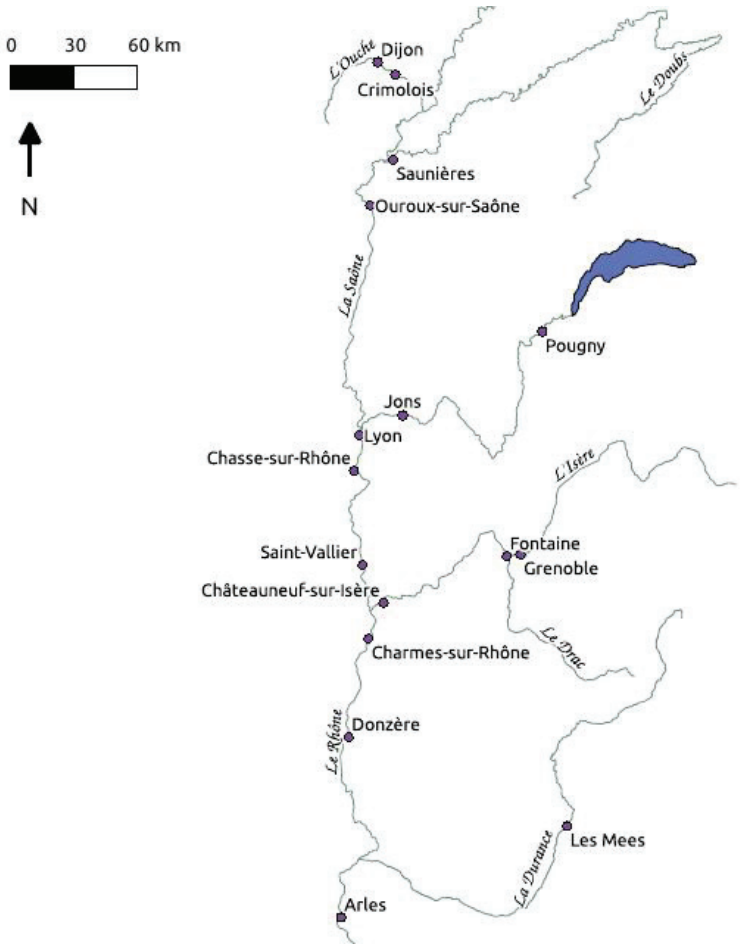


FIGURE 3.1 – Réseau hydrographique du Rhône et de ses principaux affluents contributeurs en MES ; localisation des stations des réseaux de suivi des flux de MES

3.2.2 Le réseau de suivi des flux de l'OSR

3.2.2.1 Deux stations principales sur le Rhône : Arles et Jons

Le réseau de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires déployé sur le Rhône repose sur deux stations de mesure principales, la station de Jons pour les flux du Rhône en amont de Lyon et la station d'Arles pour les flux apportés par le Rhône à la Méditerranée (Cf. Fig. 3.1).

1. http ://sierm.eaurmc.fr/telechargement/telechargement.php

Le Rhône à Arles

Le Rhône à Arles faisait partie des stations du réseau Eau et MES de l'AERMC entre 1990 et 2009. Depuis 2005, un effort d'échantillonnage particulier a été mené avec la mise en place de la Station Observatoire du Rhône à Arles (SORA) (Cf. Fig. 3.1). Exploitée par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), elle est équipée pour la mesure des concentrations dissoutes et particulaires en radioéléments, nutriments et contaminants chimiques ; depuis 2008, elle permet le calcul de bilans de flux de MES et de contaminants chimiques (Antonelli, 2010; Eyrolle *et al.*, 2012). La surface totale du bassin versant drainé à Arles est de 120 000 km^2, le bassin versant en aval du Léman étant de 96 000 km^2.

Le Rhône à Jons

La question de la mise en place d'une station de mesure des flux particulaires (MES et substances associées) sur le **Rhône au niveau de Lyon** s'inscrit dans le cadre de l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) et de cette thèse. La station de Ternay,se trouvant à l'aval de Lyon, a tout d'abord été envisagée pour implanter cette station pour permettre de mesurer les apports de la Saône et de l'agglomération lyonnaise. Ce site n'a pas été retenu en raison d'une forte suspicion d'hétérogénéité des concentrations en MES dans la section de mesure en crue. Il a donc été décidé de développer la mesure particulaire au site de Jons. La station turbidimétrique de la Saône à Lyon-St-Georges permettant de mesurer la contribution de la Saône, les flux de MES et de contaminants particulaires en aval de Lyon peuvent être estimés en sommant les flux du Haut-Rhône et de la Saône. La question de la station de Ternay est détaillée dans le rapport de Le Coz *et al.* (2011) et résumée en Annexe F.

Les motivations du choix de la station de Jons sont à la fois scientifiques, techniques et opérationnelles. Sa situation au sein du réseau hydrographique (Cf. Fig. 3.1) permet de mesurer le flux solide total en amont de Lyon et du système complexe de Miribel-Jonage. Dans le cadre de l'étude des flux de PCB, ce point de mesure est utilement situé entre d'une part, des apports amont connus comme la Bourbre et le rejet (contrôlé) du centre d'incinération des PCB de St-Vulbas, et d'autre part, l'agglomération lyonnaise et des secteurs où des sédiments et poissons contaminés ont été retrouvés (plan d'eau du Grand-Large). Cette station dispose d'un turbidimètre installé par Véolia pour le Grand Lyon et dont les données sont disponibles depuis 2005 pour la gamme basse (0-200 NTU) et depuis septembre 2010 pour la gamme étendue à 4000 NTU. Enfin, la station de Jons a fait partie des 17 stations du réseau Eau et MES de l'Agence de l'Eau RMC et a donc fait l'objet d'analyses de contaminants (dont les PCB et le mercure) dans les MES et l'eau entre 1991 et 2009, à raison de 4 prélèvements par an en moyenne (Roux, 2011). En complément, des teneurs en contaminants dans les sédiments de fond sont disponibles pour la station du Rhône à Jons. Ces données offrent un historique des teneurs en contaminants sur MES. Ce point de mesure offre donc

des conditions favorables pour l'interprétation des flux de MES et de contaminants particulaires, pour comprendre leurs origines en amont et leur propagation et devenir en aval.

3.2.2.2 Quatre affluents majeurs : l'Arve, la Saône, l'Isère et la Durance

Quatre affluents contribuent majoritairement au flux de MES du Rhône, il s'agit de l'Arve, de la Saône, de l'Isère et de la Durance. Le développement de stations de suivi des flux sur ces affluents est en cours dans le cadre de l'OSR. Les autres affluents font l'objet de mesures complémentaires des concentrations en MES et des teneurs en contaminants, principalement pendant les crues pour estimer leur contribution aux flux particulaires. Les objectifs sont d'identifier les affluents qui contribuent majoritairement aux flux de polluants particulaires transitant dans le Rhône, de constituer une base de données de MES pertinente pour évaluer les remobilisations de stocks dans le fleuve et les transferts amont-aval des flux solides (propagation des flux) et de mieux cerner les sources et la propagation en crue des PCB et du mercure.

L'Arve fait l'objet d'un suivi détaillé dans le cadre de l'OSR, ses apports sont les plus importants du Haut-Rhône. L'existence de données de concentration en MES mesurées par les partenaires suisses depuis 1964 fait de l'Arve un candidat idéal pour une étude plus approfondie des flux de MES. Nous avons également effectué un suivi régulier de la Saône au cours de la thèse. L'étude des flux particulaires de l'Isère et de la Durance est en revanche réalisée à partir de données produites par des partenaires.

L'Arve

Selon l'Etude Globale Rhône (Hydratec, 2003, EGR), l'Arve est le principal contributeur au flux de MES du Haut-Rhône. L'Arve est le premier affluent majeur du Rhône après la sortie du Léman (Cf. Fig. 3.2). Au niveau de Genève, à la station OFEV Bout du Monde, il a un bassin versant de 1976 km^2 (OFEV[1]). La moitié du bassin versant se situe au-dessus de 1360 m d'altitude et des glaciers recouvrent en permanence environ 5 % de la surface (Pardé, 1925).

Les enregistrements de débit moyen horaire sont disponibles pour l'Arve à Genève-Bout-du-Monde de 1974 à 2003 (OFEV), pour l'Arve à Arthaz de 1994 à 2011 (EDF), pour le Rhône au Seujet en sortie du Léman de 1997 à 2013 (OFEV) et sur le Rhône à Pougny de 1985 à 2013 (CNR) en aval des barrages de Verbois et Chancy-Pougny (Cf. Fig. 3.2). Nous disposons également de débits journaliers de l'Arve à Genève depuis 1904 (OFEV) qui ont probablement été établis sur la base d'une seule mesure par jour et des débits moyens mensuels de 1905 à 1911 à Etrembières (service des grandes forces hydrauliques, SGFH (1912)). La moyenne des débits horaires enregistrés entre

1974 et 2013 par l'OFEV[1] est de 79 m^3/s, la moyenne des données journalières (OFEV) entre 1904 et 2013 est aussi de 79 m^3/s et le module interannuel de l'Arve à Arthaz (EDF) est de 75,5 m^3/s. Le débit moyen interannuel est de 76 m^3/s, contre 79 m^3/s sur la période 1904-2013 en utilisant les données journalières pour les années 1904-1973. Le débit de l'Arve pouvant varier fortement au cours de la journée, il est donc probable que le débit moyen calculé sur la période 1904-1973 soit surestimé.

L'Arve contribue à hauteur de 7 % au flux d'eau dans le Rhône à l'aval de Lyon, et est donc le troisième contributeur en eau du Haut-Rhône après la Saône et l'Ain. Son débit spécifique est le plus fort des affluents du Haut-Rhône (37 $L/s/km^2$) et est caractéristique d'un bassin de montagne. Les débits instantanés maximaux pour les crues biennale, quinquennale et décennale sont respectivement de 487, 593 et 654 m^3/s (OFEV[2]).

Le régime hydrologique de l'Arve est de type nival et suit un cycle rythmé par l'accumulation et la fonte des neiges (Pardé, 1925; Bravard, 1987). La période de fonte s'étend de mars à août et est caractérisée par un débit moyen élevé (96 m^3/s sur la base des données horaires de l'OFEV de 1974 à 2013), avec un maximum de débit mensuel en juin-juillet. Pendant la période de fonte, le débit et la concentration peuvent varier d'un facteur deux à trois au cours de la journée, les variations journalières étant rythmées par le réchauffement des versants qui provoque la fonte en cours de journée. La période de septembre à février est caractérisée par un débit moyen plus faible (55 m^3/s entre 1974 et 2013) et est marquée par des épisodes de crue associés à des fortes pluies ou des orages. Les variations des concentrations et des débits ne suivent pas un rythme journalier pendant cette période qui n'est pas influencée par la fonte. En revanche, l'amplitude de variation des concentrations et des débits entre les crues et le régime de base est plus importante que pendant la période de fonte. Les crues durent généralement de quelques heures à quelques jours.

L'Arve transporte surtout des fines particules détritiques qui s'accumulent en grande partie dans la retenue du barrage de Verbois, premier barrage sur le Rhône à l'aval de la confluence avec l'Arve (Cf. Fig. 3.2). Les variations annuelles de stock sédimentaire volumique de la retenue du barrage de Verbois sont estimées depuis 2004 par SIG au moyen d'un modèle 3D construit sur des relevés bathymétriques réalisés une fois tous les trois ans.

La Saône

Le bassin versant de la Saône est 1,5 fois plus grand que celui du Haut-Rhône entre le Léman et Lyon et draine des territoires peu urbanisés mais avec une activité agricole et viticole importante. Son

2. http ://www.hydrodaten.admin.ch/fr/2170.html

débit moyen annuel à Couzon (CNR), quelques km en amont de Lyon (Cf. Fig. 3.11), est de 473 m^3/s. La Saône apporte donc en moyenne un flux d'eau annuel équivalent à celui du Rhône au niveau de leur confluence. La Saône a une pente moyenne très faible 0,02% et son faible débit spécifique de 15,8 $L/s/km^2$ est caractéristique d'un bassin de plaine (Pardé, 1925). Les crues arrivent fréquemment en hiver et au printemps et peuvent durer plusieurs semaines. Les débits instantanés maximaux pour les crues biennale, quinquennale et décennale sont respectivement de 1 700, 2 400 et 3 180 m^3/s. Les équipements de la Saône sont essentiellement destinés à la navigation et non à la production d'électricité. Ces aménagements représentent d'importants obstacles au transit sédimentaire.

L'Isère

L'Isère est un affluent alpestre qui rejoint le Rhône en rive gauche (Cf. Fig. 3.14) au nord de Valence à Pont-de-l'Isère. Elle arrose notamment la ville de Grenoble et son bassin versant de 11 800 km^2 est fortement industrialisé.

Le débit moyen de l'Isère à Beaumont-Monteux (Cf. Fig. 3.14) est de 333 m^3/s (1953-2013, CNR) et son débit spécifique fort (28 $L/s/km^2$) est caractéristique d'un cours d'eau de montagne. Le régime hydrologique de l'Isère est influencé par les périodes d'enneigement et de fonte et est donc soumis à de fortes variations saisonnières. Entre avril et juillet, le débit mensuel moyen est compris entre 385 et 500 m^3/s alors qu'il est de 250 à 290 m^3/s entre août et février. Les crues peuvent être rapides, avec des montées de crue en quelques heures, et violentes. Les débits de pointe pour les crues biennale, quinquennale et décennale sont respectivement de 1 200, 1 500 et 1 700 m^3/s. Le débit choisi comme critère pour différencier les périodes de crue des périodes de régime de base est de 600 m^3/s.

La Durance

La Durance est un affluent préalpin en rive gauche du Rhône (Cf. Fig. 3.16). Elle draine un bassin versant montagneux de 14 300 km^2 sous influence du climat méditerranéen. A sa confluence avec le Rhône au sud d'Avignon, son débit moyen est de 60 m^3/s, avec une forte variabilité, de 6 m^3/s à 3 200 m^3/s. Son débit spécifique est de 4,5 $L/s/km^2$.

Ce cours d'eau est très fortement anthropisé. L'aménagement de l'ensemble Durance-Verdon confié à EDF en 1955 a conduit à la construction de 23 barrages et prises d'eau et du canal EDF de la Durance, alimentant 33 centrales hydroélectriques.

Avant la construction des aménagements, la Durance avait un régime fluvial de type méditerranéen. Actuellement, seul un faible débit réservé de 2 à 5 m^3/s circule dans le lit naturel de la

Durance, le reste étant détourné dans le canal parallèle qui alimente les centrales électriques. Le canal usinier peut contenir jusqu'à 250 m^3/s et en cas de crue, le débit excédentaire est reversé dans le lit naturel.

3.2.2.3 La question de l'homogénéité des sections de mesure

Le mélange de l'eau et des MES des affluents avec celles du Rhône ne se fait pas instantanément au niveau de la confluence (Cf. §1.2.2.2). Le bon mélange peut mettre plusieurs dizaines de kilomètres à être effectif et cette distance dépend des conditions hydrologiques. Il peut également être compromis par la présence d'aménagements hydroélectriques qui séparent les eaux entre deux bras de Rhône, le canal de production et le Vieux-Rhône. La prise en compte de ces problèmes de mélange aux confluences est de première importance pour évaluer correctement les flux, pour identifier l'origine des particules qui transitent et se déposent dans les différents bras du réseau et pour connaître l'origine des contaminants retrouvés dans les dépôts sédimentaires.

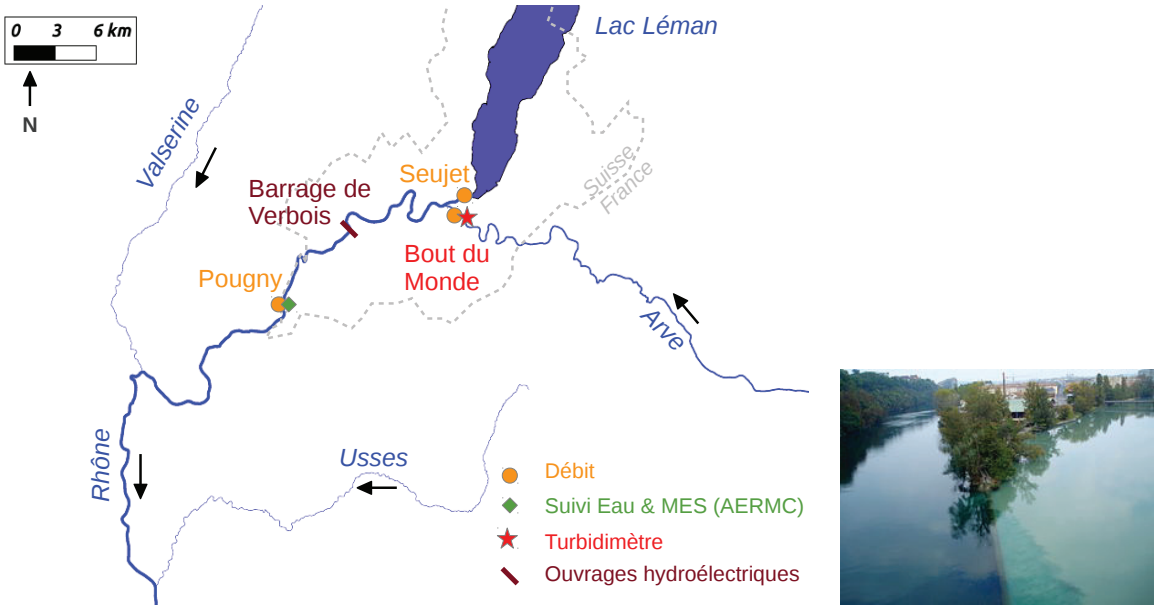
Un cas de mauvais mélange des concentrations en MES est illustré par la situation de la station de Ternay en aval de la confluence entre le Rhône et la Saône et détaillé en Annexe F. Pour les différentes stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires mises en place sur le Rhône et ses affluents, il est important de vérifier l'homogénéité des concentrations en MES au sein de la section de mesure. Cette vérification peut être réalisée en menant des campagnes de prélèvements distribués dans la section dans différentes conditions hydrologiques ; les prélèvements peuvent être réalisés à la bouteille Niskin (Cf. §2.2.1) depuis un bateau à moteur.

3.3 La mesure aux stations du suivi OSR

3.3.1 L'Arve à Genève Bout-du-Monde

La station débitmétrique de l'Arve à Genève Bout-du-Monde (OFEV) se situe à 4 km en amont du confluent de l'Arve avec le Rhône, à seulement 2 km en aval de l'embouchure du Lac Léman (Cf. Fig. 3.2).

Au niveau de cette station, les concentrations MES ont fait l'objet d'un prélèvement en moyenne tous les 5 jours par l'OFEV de 1965 à 2003. Pour la période 1993-2003, les heures de prélèvements sont comprises entre 7h et 9h (TU), avec une majorité des prélèvements réalisés à 7h (TU). Faute d'indication de l'heure de prélèvement pour la période 1965-1993, nous avons considéré que les prélèvements étaient effectués à 7h (TU). Depuis le 22/03/2012, l'OSR et les SIG ont installé une station de suivi des flux particulaires sur l'Arve dans le local de la station Genève Bout-du-



(a) (b)

FIGURE 3.2 – (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES sur l'Arve et le Rhône ; (b) Confluence de l'Arve et du Rhône (source Wikipédia)

Monde. La turbidité est mesurée avec un turbidimètre Hach lange SC200 en lumière rétrodiffusée à 140 ° pour permettre la mesure de fortes concentrations (> 4 g/L en crue). Un échantillonneur automatique Sigma 900 asservi au turbidimètre prélève régulièrement des échantillons d'eau et de MES pour effectuer la calibration du turbidimètre. La relation de calibration entre la concentration en MES et la turbidité de l'Arve à Bout-du-Monde est présentée sur la Fig. 3.3. Elle présente une allure sigmoïdale pour la gamme de mesure de 0,002 à 0,15 g/L pour laquelle les points de mesure sont très dispersés et globalement en-dessous de la relation linéaire établie pour l'ensemble de la gamme (jusqu'à 10 g/L). En revanche, on n'observe pas de problème de détarage de la relation pour les fortes valeurs de concentration en MES. Dans ce cas, le décalage de la relation MES-turbidité aura peu d'influence sur le calcul du flux de MES à l'échelle annuelle, puisqu'il concerne une gamme de concentrations en MES observées dans les périodes de régime de base qui ne représentent qu'une faible part du flux total.

Depuis la mise en service d'une station de mesure turbidimétrique à Bout-du-Monde le 22/03/2012, la concentration en MES moyenne horaire est enregistrée en continu (Cf. Fig. 3.4). Avec un débit moyen de 78,4 m^3/s, elle se situe dans la moyenne hydrologique des années mesurées sur le dernier siècle. Une dizaine d'événements de crue ont eu lieu en 2012-2013. Le plus fort débit a été atteint le 02/02/2013 et est de 416 m^3/s, ce qui correspond à un débit 10 % inférieur au débit de crue biennale. L'année hydrologique 2012-2013 est donc moyenne par rapport à la période 1965-2003 et ne présente aucune crue d'occurence rare. Une période de fonte a eu lieu de mars à août 2012 et une période

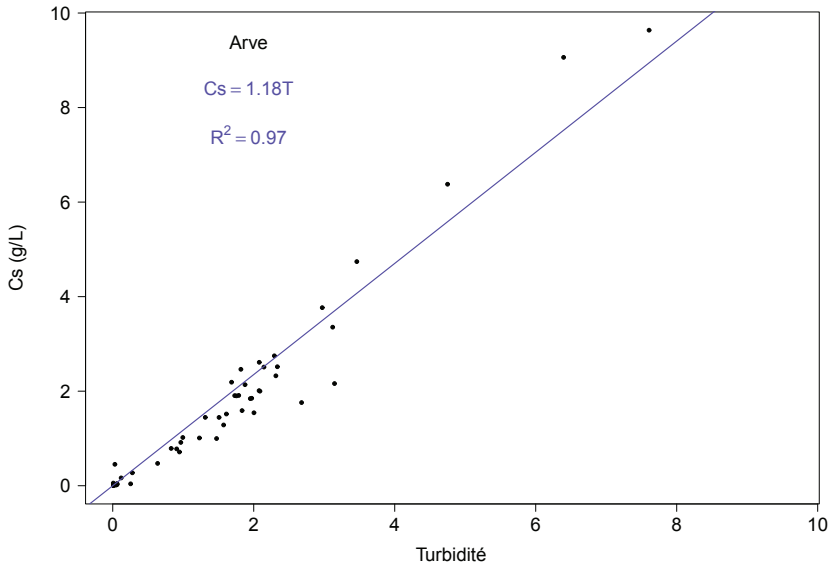


FIGURE 3.3 – Relation de calibration entre la turbidité (T en NTU ou unité constructeur) et la concentration en MES (C_s en g/L) de l'Arve à Bout-du-Monde

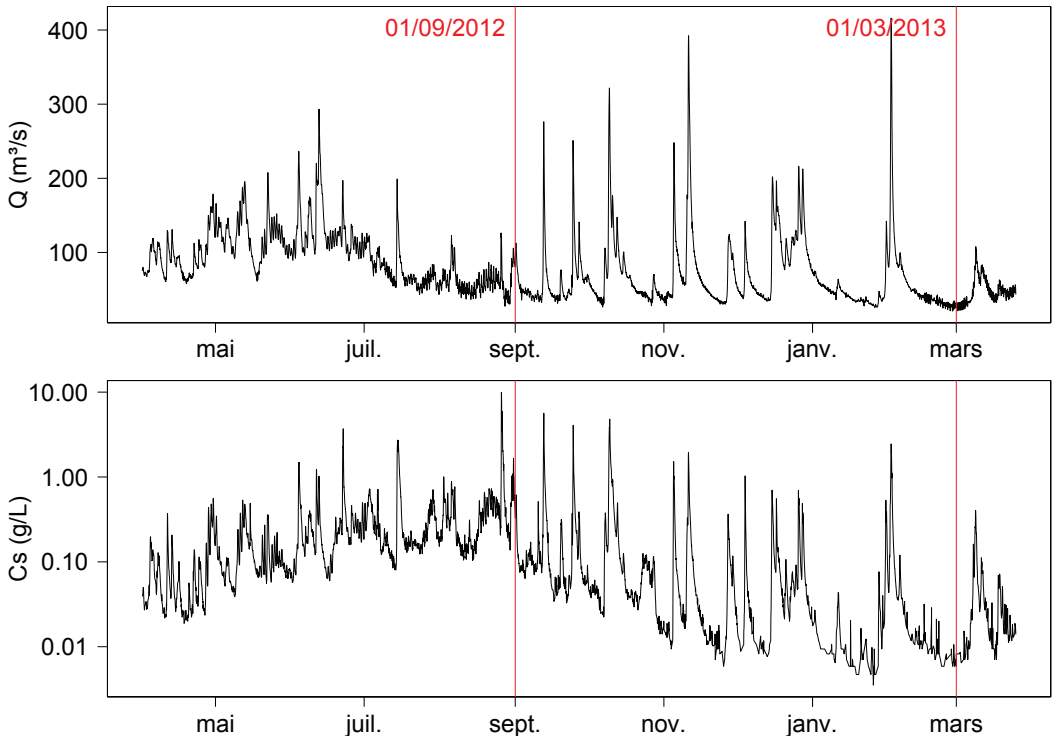


FIGURE 3.4 – Chroniques de débit (OFEV) et de concentration en MES (OSR/SIG) d'avril 2012 à mars 2013 à la station Bout-du-Monde sur l'Arve

de pluie de septembre 2012 à février 2013 (Cf. Fig. 3.4), ce qui illustre bien le régime hydrologique classique de l'Arve. Pour 2012-2013, le débit moyen de période de fonte est de 98 m^3/s et est donc

égal au débit moyen enregistré pour les périodes de fonte entre 1974 et 2013. Le débit moyen de période de pluie pour 2012-2013 est de 66 m^3/s, et est donc supérieur au débit moyen des périodes de pluie entre 1974 et 2013 de 55 m^3/s. La concentration en MES moyenne pendant la période de fonte est de 0,20 contre 0,12 g/L pour la période de pluie. Un fort pic de MES est enregistré fin août 2012 (Fig. 3.4), qui ne correspond pas à un pic de débit. Cet épisode correspond sans doute à un orage sur une zone érosive ou lave torrentielle, tel que ceux signalés par Pardé (1925) et qui peuvent être très productrices en matériaux solides, bien qu'il s'agisse de phénomènes très localisés.

Lorsque l'Arve est en crue, il n'est pas rare d'observer une zone de quatre à cinq kilomètres à l'aval de la confluence le long de laquelle les eaux turbides de l'Arve ne se sont pas encore mélangées aux eaux claires du Rhône provenant du Léman, comme montré sur la Fig. 3.2b. Le mélange est jugé effectif par les SIG au niveau de la passerelle de Loëx, soit 4,7 km en aval de la confluence. Or la longueur de bon mélange L_m est donc comprise entre 12,5 et 25 km (section de l'Arve à Bout du Monde : W=50 m et H=1 m selon l'OFEV), ce qui est bien supérieur. Le mélange est probablement atteint en aval de la passerelle de Loëx, et dans certains cas, n'est pas encore effectif au niveau du barrage de Verbois (Cf. Fig. 3.2).

Pour le suivi des teneurs en contaminants et de la granulométrie, un piège à sédiments est installé dans le cours d'eau et est relevé tous les 15 jours par les SIG.

3.3.2 Les affluents du Haut-Rhône

L'installation d'une station permanente de suivi des flux n'est pas possible pour tous les affluents du Rhône. Pour renforcer la connaissance de leur dynamique sédimentaire, une station de suivi temporaire est mise en place sur les affluents les uns après les autres. Elle est composée d'un turbidimètre, d'une centrale d'acquisition, d'un préleveur automatique et d'un piège à sédiment. Elle est installée pendant trois à quatre mois à proximité d'une station de mesure du débit sur un des affluents puis déménagée vers un autre affluent. Sur la période 2011-2013, ce sont les affluents Haut-Rhône qui ont accueilli la station mobile (Cf. Tab. 3.3.2). Le préleveur automatique effectue entre un et trois prélèvements par jour en régime de base ; en crue, un prélèvement est effectué toutes les 2 à 4 heures. Le piège à sédiment est relevé tous les quinze jours en régime de base et après chaque crue. De plus, tous les quinze jours, une centrifugation est réalisée à l'aide de la centrifugeuse mobile.

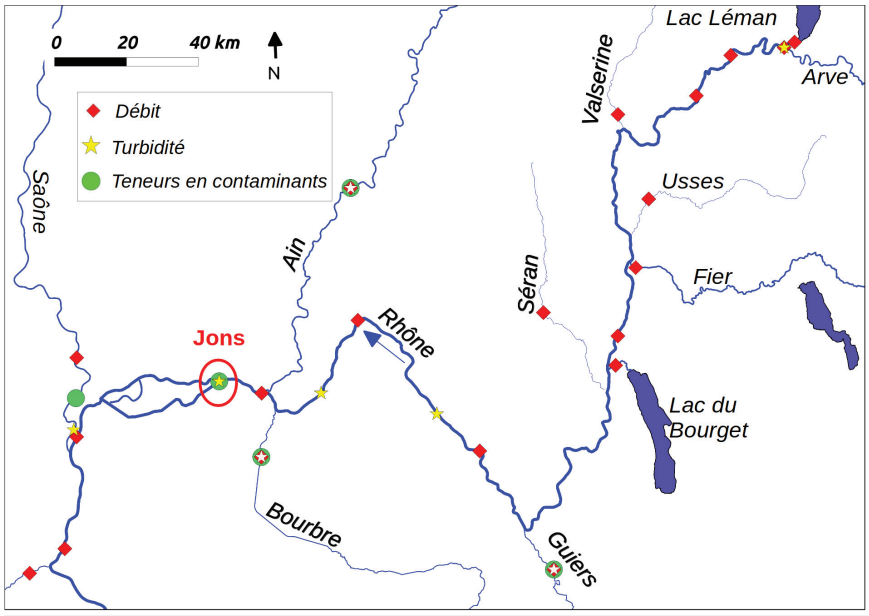


FIGURE 3.5 – Localisation des affluents et des stations de mesure sur le Haut-Rhône

La période au cours de laquelle chaque affluent a été équipé dépend de son régime hydrologique. Nous avons cherché à installer la station pendant une période où des crues étaient susceptibles d'avoir lieu, de manière à échantillonner la plus grande gamme de concentration possible et permettre un étalonnage robuste du turbidimètre. Les relations MES-turbidité établies pour les stations temporaires du Guiers à Belmont, de l'Ain à Port-Galland, de la Bourbre à Tignieu, du Rhône à Neyron, du Rhône à Vieux-Rhône amont, du Rhône à Vieux-Rhône aval et du Rhône à Perrache (Cf. Fig. 3.5) sont présentées en Annexe G. On n'observe pas de détarage de la calibration pour ces stations, même pour les plus fortes valeurs de concentrations en MES. Les pentes des relations linéaires varient de 0,64 sur l'Ain à 1,06 sur le Guiers et les coefficients de corrélation sont supérieurs à 0,90 pour toutes les stations sauf pour le Guiers ($R^2 = 0{,}81$).

Pour le Guiers, la gamme de concentration échantillonnée est comprise entre 0 et 1 g/L (un seul point au-dessus de cette valeur) et les valeurs sont très dispersées autour de la droite établie. Les particules collectées étaient très hétérogènes d'un échantillon à l'autre et du sable grossier était présent dans les échantillons ce qui peut biaiser la mesure de la concentration en MES par filtration-pesée. On ne peut donc pas avoir une grande confiance dans la relation MES-turbidité établie pour cet affluent. Il serait intéressant de refaire des mesures en tamisant les échantillons au préalable ou encore en mesurant systématiquement la granulométrie pour pouvoir établir une relation en surfacique plutôt qu'en volumique (en suivant l'exemple de Thollet *et al.* (2013)). Néanmoins, faute de mieux, cette relation sera tout de même utilisée pour établir la concentration en MES du Guiers sur la période de mesure turbidimétrique.

Tableau 3.1 – Affluents sur lesquels la station temporaire a été installée. Période et pourcentage d'enregistrement

Affluent	Début d'enregistrement	Fin d'enregistrement	% d'enregistrement
Bourbre	20/10/2011	30/03/2012	100%
Guiers	05/04/2012	18/07/2012	83%
Ain	20/07/2012	16/01/2013	100%
Bourbre	01/02/2013	31/12/2012 [3]	100%

Un intérêt particulier a été porté au suivi de la Bourbre, affluent en rive gauche du Rhône, dont la confluence se situe 10 km en amont de la station de Jons (Cf. Fig. 3.7a). Cet affluent a un débit moyen annuel faible de 7,7 m^3/s mais est connu pour ses niveaux élevés de contamination en PCB (Babut et Miège, 2007). Nos mesures ont confirmé des teneurs en somme des PCBi significativement supérieures à celles mesurées dans le Rhône.

Les relations entre la turbidité et la concentration en MES ainsi que les chroniques de débit et de concentration en MES obtenues pour les différents affluents sont présentées en Annexe G.

Pour compléter ces mesures en crue, une veille des débits sur les différents affluents du Rhône est effectuée par les partenaires de l'OSR. En cas de crue, une équipe d'intervention se déplace pour effectuer un prélèvement de MES (centrifugation ou manuel).

Deux stations de turbidimétrie permanentes opérées par EDF complètent le réseau de suivi des flux de MES du Haut-Rhône, au niveau des centrales nucléaires de Creys-Malville et de Bugey, en amont de Jons (Cf. Fig. 3.5). Les relations d'étalonnage de ces turbidimètres sont présentées en Annexe G.

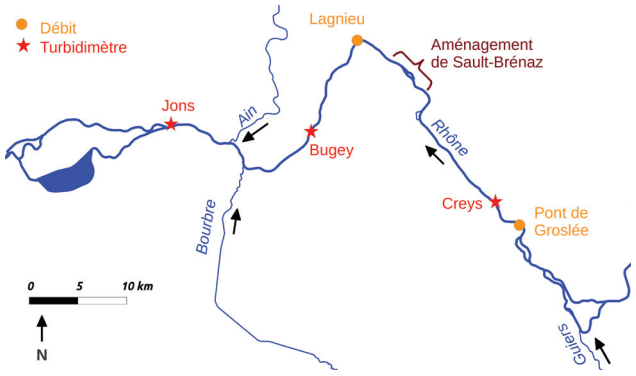


FIGURE 3.6 – Localisation des sites de Creys, Bugey et Jons et de l'aménagement de Sault-Brénaz, sur le Rhône

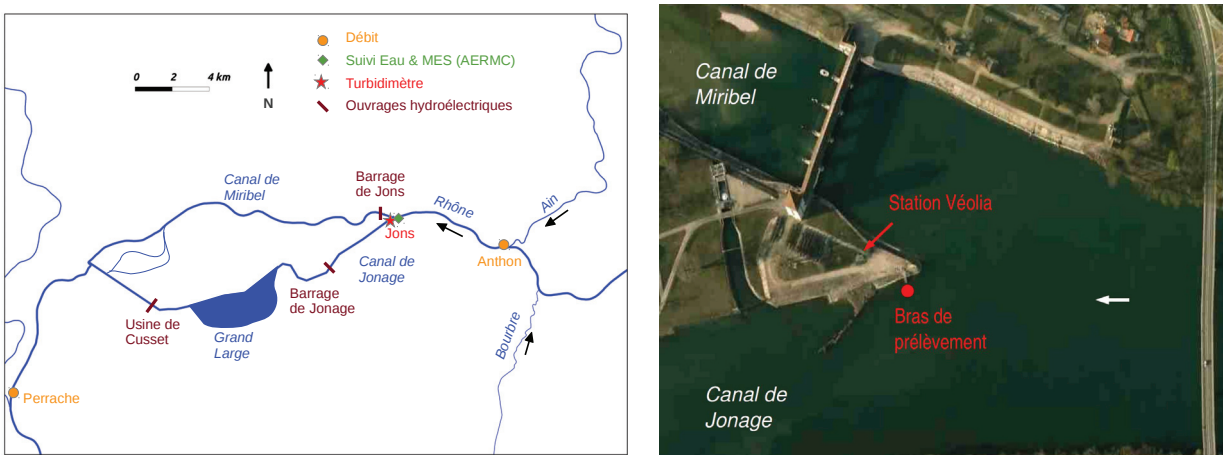
3.3.3 Le Rhône à Jons

La station se situe à Jons au niveau de la diffluence entre le canal de Miribel et le canal de Jonage (Cf. Fig. 3.7). Elle ne dispose pas d'un système de mesure des débits. Le débit à Jons est obtenu en transférant le débit mesuré à la station CNR de Perrache, située à 27 km à l'aval, avant la confluence avec la Saône (Cf. Fig. 3.7a). Aucun apport ou perte significatifs de débit n'a lieu entre Perrache et Jons. Le temps de transfert entre ces deux stations a été évalué à 8 h en moyenne en régime de base. Le modèle hydraulique 1D du Rhône amont (Cf. §6.2) a permis de recalculer le temps de propagation entre les deux stations pour la période de mesure des flux. La qualité (mesure ultra-sons) et la longueur (de 1993 à 2013 à pas de temps horaire) de l'enregistrement disponible à la station de Perrache ont été déterminantes dans le choix de cette station pour reconstituer le débit à Jons. La station de Villeurbanne, située 17 km à l'aval de Jons, présente également une chronique de bonne qualité (relation hauteur - débit établie à l'amont du seuil de Villeurbanne), mais l'enregistrement couvre une période moins longue. L'enregistrement à la station d'Anthon, située 7 km à l'amont de Jons, et donc la plus proche station, est estimé moins fiable par la CNR. Le module interannuel du Rhône à Perrache est de 600 m^3/s et la surface drainée est de 20 300 km^2 [4]. Les débits de crue de période de retour 1 an, 2 ans, 10 ans et 100 ans sont respectivement de 1 460, 2 100, 3 100, 4 250 et 5 300 m^3/s.

La répartition des débits entre le canal de Jonage et le canal de Miribel est assurée par le barrage de Jons. La consigne d'exploitation de l'usine de Cusset sur le canal de Jonage est de 640 m^3/s et le débit réservé du canal de Miribel est en général de 30 m^3/s (60 m^3/s si la cote du lac des eaux bleues est inférieure au seuil de saisonnalité). Cependant, le débit réservé dans le canal de Miribel a plusieurs fois été jaugé proche de 90 m^3/s au lieu de 60, tandis que le débit dans le canal de Jonage en situation de saturation (i.e. situation de déversement dans Miribel) était en général proche de 580 m^3/s, en raison des contraintes techniques d'exploitation de l'aménagement. Ainsi, on peut considérer en moyenne que lorsque le débit du Rhône total à l'amont de la diffluence est inférieur à 670 m^3/s, 90 m^3/s sont déversés dans le canal de Miribel et le reste transite dans le canal de Jonage. Lorsque le débit du Rhône total dépasse les 670 m^3/s, 580 m^3/s passent dans le canal de Jonage et le reste est déversé dans le canal de Miribel. On considérera cette situation comme "usuelle", mais elle peut varier en réalité selon les cas.

Dans le cadre de suivi OSR, nous avons considéré que le Rhône était en crue quand le débit à Jons dépassait 800 m^3/s, ce qui correspond à la moitié du débit de crue biennale. Depuis septembre 2010, trois périodes de crue ont ainsi eu lieu sur le Rhône (Cf. Fig. 3.8), de novembre 2010 à février

4. données CNR, statistiques : http ://www.hydro.eaufrance.fr, code station : V7200010



(a) (b)

FIGURE 3.7 – (a) Réseau hydrographique du Rhône en amont de Lyon et (b) positionnement du bras de prélèvement de la station de Jons (source de la photo aérienne : Géoportail)

2011, de décembre 2011 à mars 2012 et de novembre 2012 à janvier 2013, avec des débits de pointe atteignant 2 000 m^3/s à chaque épisode. Les chasses de barrage du Haut-Rhône de 2012 ont eu lieu au cours des deux premières semaines de juin (Cf. §3.4.2). Cette période a été marquée par des crues des affluents et un débit moyen du Rhône à Jons élevé, autour de 800 m^3/s.

La station de Jons est pourvue d'un turbidimètre (gamme 0-4000 NTU), installé depuis septembre 2010 par Véolia pour le Grand Lyon et fixé sur le bras de prélèvement en rive droite du canal de Jonage, à une vingtaine de mètres de la pointe de la diffluence (Cf. Fig 3.7b). Les valeurs de turbidité sont mesurées à pas de temps fin (une mesure toutes les 3 minutes, moyenne de 10 mesures toutes les 30 minutes). Entre 2005 et 2010, la turbidité était mesurée à l'aide d'un turbidimètre gamme basse (0-200 NTU). Ces données ne sont utilisables que pour les périodes de régime de base, lorsque la turbidité est inférieure à 200 NTU. Pour la période du 15/09/2010 au 31/12/2012, la chronique de turbidité est complète à 97 %. Elle ne comporte que deux périodes de lacune, du 15 au 24/09/2012 et du 20 au 27/10/2012. Les données mesurées couvrent une gamme allant de 1 à 1400 NTU.

Un préleveur automatique de type SIGMA a été installé à Jons au niveau du bras de prélèvement de la station, en surface. Il est paramétré de manière à prélever quotidiennement un échantillon d'eau brute (eau + MES) d'environ 900 mL en régime de base. En cas de crue (débit $>$ 800 m^3/s), le pas de temps d'échantillonnage est abaissé à 3-4h. La concentration en MES de ces échantillons est déterminée par filtration-pesée (Cf. §2.2.1) et les résultats sont utilisés pour calibrer le turbidimètre installé dans la station. Tous les échantillons ne sont pas filtrés ; la sélection se fait en consultant la chronique de turbidité de façon à compléter la relation de calibration entre la turbidité et la

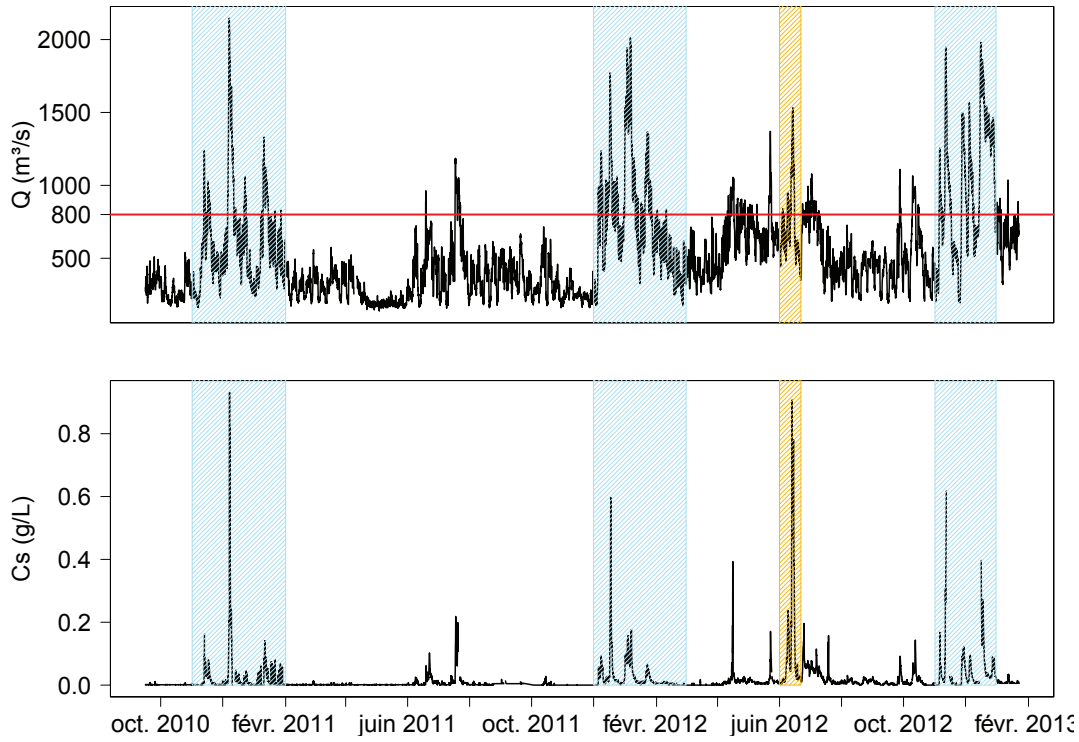


FIGURE 3.8 – Débit et concentration en MES horaires du Rhône à Jons, entre septembre 2010 et décembre 2012. Périodes de crue (Débit > 800 m^3/s) en bleu et période de chasse en orange.

concentration en MES. De plus, lors de chaque passage à la station de Jons pour prélèvements de MES pour analyses chimiques, un échantillon manuel est prélevé en surface pour détermination de la concentration en MES. Il s'agit d'un prélèvement de contrôle. Ce prélèvement est réalisé en berge, à proximité du bras de prélèvement de la station dans une zone où l'écoulement est le plus homogène possible.

La relation de calibration de Jons (Cf. Fig. 3.9) a ainsi été réalisée sur la base de 310 prélèvements entre le 21/06/2011 et le 23/12/2012 en période de crue, de régime de base ou lors des chasses. L'ensemble des mesures couvre une gamme allant de 0,002 à 1,030 g/L et la relation linéaire forcée à 0 établie présente un coefficient de corrélation R^2 élevé de 0,98.

Pour l'analyse des teneurs en contaminants, les prélèvements sont effectués par centrifugation tous les 15 jours en régime de base (Cf. §2.3.1.4) et à l'aide d'un piège à sédiments (Cf. §2.3.1.5) relevé lors des centrifugations. En cas de crue ($Q > 800$ m^3/s), une centrifugation par jour de crue est réalisée et le piège à sédiments est relevé en début et en fin d'événement. Le suivi des teneurs en contaminants est effectif depuis septembre 2011. La granulométrie et la teneur en carbone organique des MES prélevées ont été analysées pour tous les prélèvements effectués.

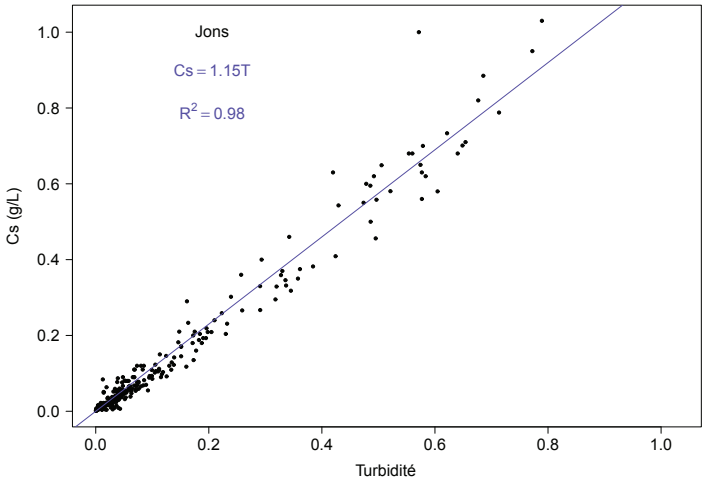


FIGURE 3.9 – Relation de calibration entre la turbidité (T en NTU ou unité constructeur) et la concentration en MES (C_s en g/L) du Rhône à Jons

Homogénéité des concentrations en MES et des caractéristiques des particules à Jons

La station de Jons se trouve 7 km en aval de la confluence Ain-Rhône et 10 km en aval de la confluence Bourbre-Rhône (Cf. Fig. 3.7a). Le Rhône entre la confluence Ain-Rhône et la station de Jons présente une largeur W de 120 à 180 m et une profondeur H de 4 à 8 m (Cf. Fig. 3.10), ce qui donne une longueur de bon mélange L_m (Cf. Eq. F.1, §1.2.2.2) comprise entre 10 km (K'=5) et 65 km (K'=10). Le mélange des eaux du Rhône, de l'Ain et de la Bourbre est donc susceptible, lorsque l'Ain ou la Bourbre sont en crue, de ne pas être complet au niveau de la station de Jons.

Deux campagnes de prélèvements distribués en crue ont été menées pour contrôler l'homogénéité des concentrations en MES dans la section située à l'amont de la diffluence de Jons. Les campagnes ont eu lieu le 6 janvier 2012, alors que le Rhône et l'Ain étaient en crue annuelle (débit de 1 900 m^3/s pour le Rhône et de 700 m^3/s pour l'Ain) et le 13 juin 2012, pendant les opérations de chasse du Rhône (débits du Rhône et de l'Ain respectivement de 1 300 et 500 m^3/s).

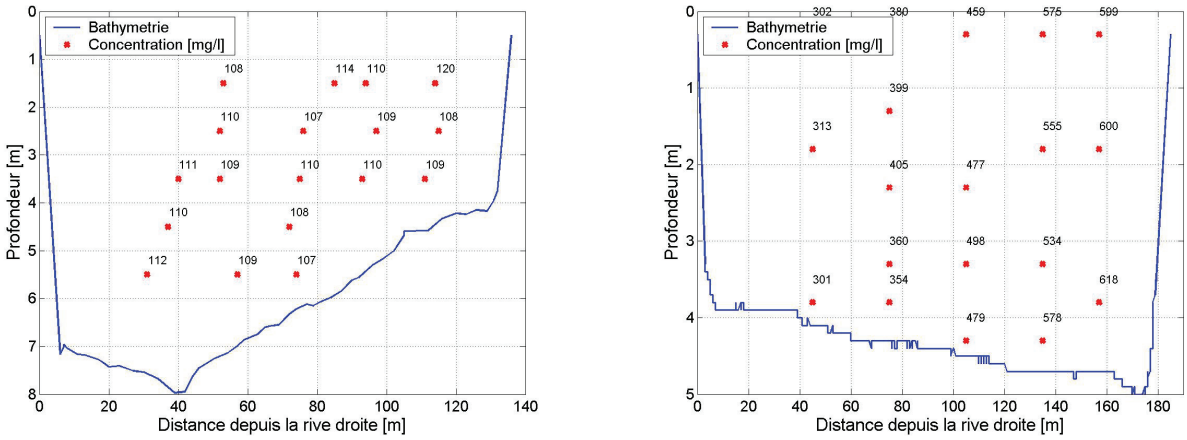
Le 6 janvier 2012, les concentrations mesurées varient peu au sein de la section, de 108 à 120 mg/L (Cf. Fig. 3.10a). La concentration en MES de l'Ain au moment de la campagne de mesure était de 79 mg/L et 120 mg/L ont été mesurés à la station de Jons en moyenne. Toutefois, la partie en rive droite de la section n'a pas été échantillonnée, ce qui signifie que les eaux de l'Ain ont potentiellement été manquées. Le manque d'information sur le côté droit de la section ne permet pas de conclure que dans cette configuration, la répartition des concentrations dans le tronçon à l'amont de la station de Jons est homogène.

Les concentrations en MES mesurées sur le Rhône 500 m en amont de la station de Jons le 13 juin 2012 varient de 300 à 600 mg/L au sein de la section, avec des concentrations dans la moitié gauche de la section deux fois supérieures aux concentrations dans la moitié droite (Cf. Fig. 3.10b). Les chasses des barrages du Haut-Rhône ont entrainé pendant cette période des concentrations en MES du Rhône très importantes, et environ 700 mg/L ont été enregistrés le 13/06/2012 au niveau de Bugey, en amont de la confluence Bourbre-Rhône. La concentration en MES de l'Ain le 13/06/2012 était de 60 mg/L et à Jons, elle était de 550 mg/L.

Cette campagne montre que lors de crues de l'Ain, le mélange entre les eaux de l'Ain et du Rhône est seulement partiel avant l'arrivée à la diffluence de Jons. Dans ces conditions particulières d'hétérogénéité des concentrations,les prélèvements effectués à la station de Jons ne sont pas représentatifs de Notons que lorsque le débit du Rhône dépasse la consigne d'exploitation de 640 m^3/s (théorique, souvent 580 m^3/s en pratique) de l'usine de Cusset située sur le canal de Jonage, le surplus de débit est déversé dans le canal de Miribel. Si l'Ain est également en crue, les eaux déversées dans le canal de Miribel proviennent donc essentiellement de l'Ain. La concentration en MES mesurée à la station de Jons dépend alors de la répartition des débits entre le canal de Jonage et le canal de Miribel. Si le débit de l'Ain est inférieur au débit déversé dans le canal de Miribel, toutes les eaux de l'Ain passent par le canal de Miribel et la station de Jons ne les mesure pas. En revanche, lorsque l'Ain est en crue et que son débit est supérieur au débit déversé dans le canal de Miribel, la station de Jons enregistre les concentrations de l'Ain. Ces conditions particulières sont généralement de courte durée mais doivent être prises en compte pour calculer les flux de MES circulant dans le système Miribel-Jonage.

L'exemple de Jons permet de mettre en évidence que les MES qui transitent dans le canal de Jonage et dans le canal de Miribel n'ont pas toujours la même origine. Sous certaines conditions hydrologiques particulières, le canal de Miribel reçoit les MES de l'Ain, tandis que le canal de Jonage voit passer les MES du Rhône amont. L'analyse de carottes sédimentaires prélevées par l'ENTPE dans la darse de Crépieux (dans le Vieux-Rhône de Miribel) révèle la présence d'un pic de kaolinite bien différencié à un niveau de la carotte correspondant à l'année 1991 (Desmet *et al.*, 2012). La kaolinite provient de bassins versants calcaires tels que ceux du Jura méridional, drainé par l'Ain. Or, en février de cette année, l'Ain a connu une crue centennale et l'Albarine (affluent de l'Ain) une crue millénale.

Des carottes prélevées dans le Grand Large ont révélé des particules plus fines et riches en illite. Cette argile provient de l'altération des molasses miocènes et de la farine glaciaire et est généralement transportée par le Rhône amont(Desmet *et al.*, 2012).



(a) (b)

FIGURE 3.10 – (a) Concentrations en MES (mg/L) mesurées dans la section du Rhône située à 500 m à l'amont de la diffluence de Jons le 06/11/2012 (Pont de Jons, PK 32,5) ; (b) Concentrations en MES (mg/L) mesurées dans la section du Rhône située à 3,5 km à l'amont de la diffluence de Jons le 13/06/2012 (Anthon, PK 35,5)

L'analyse de ces carottes sédimentaires semble donc confirmer la séparation des eaux de l'Ain et du Rhône amont en cas de crue de l'Ain.

Le même problème de mélange des eaux dans le Rhône à Jons se produit probablement en cas de crue de la Bourbre, dont les eaux resteraient en rive gauche et entreraient exclusivement dans le canal de Jonage (Cf. Fig. 3.7a). Le lac de Grand Large se trouve en rive gauche du canal de Jonage, mais il est séparé du canal par un rideau de palplanches qui empêche les transferts du canal vers le lac et qui limiteraient les entrées des MES de la Bourbre dans le Grand Large. Des carottes sédimentaires ont été prélevées par l'ENTPE en plusieurs points du Grand Large (Desmet *et al.*, 2012). Les cortèges argileux venant du Rhône amont et de la Bourbre ne présentent a priori pas de différence significatives car le substratum de leur bassin versant est molassique dans les deux cas. En revanche, il serait intéressant de comparer les signatures des PCB enregistrés dans les carottes du Grand Large et dans les MES de la Bourbre.

3.3.4 La Saône à Lyon

Le débit de la Saône est mesuré par la CNR à Couzon. Une station de mesure de la turbidité a été installée par Irstea et la CNR sur la Saône à Lyon en décembre 2009. Des prélèvements de MES ont été régulièrement effectués par Irstea pour calibrer ce turbidimètre et sont présentés dans Moore (2011).

La relation de calibration entre la turbidité et la concentration en MES de la Saône à Lyon (Cf. Fig. 3.12) a été établie pour une gamme de concentration de 0,002 à 0,15 g/L, ce qui est plutôt faible

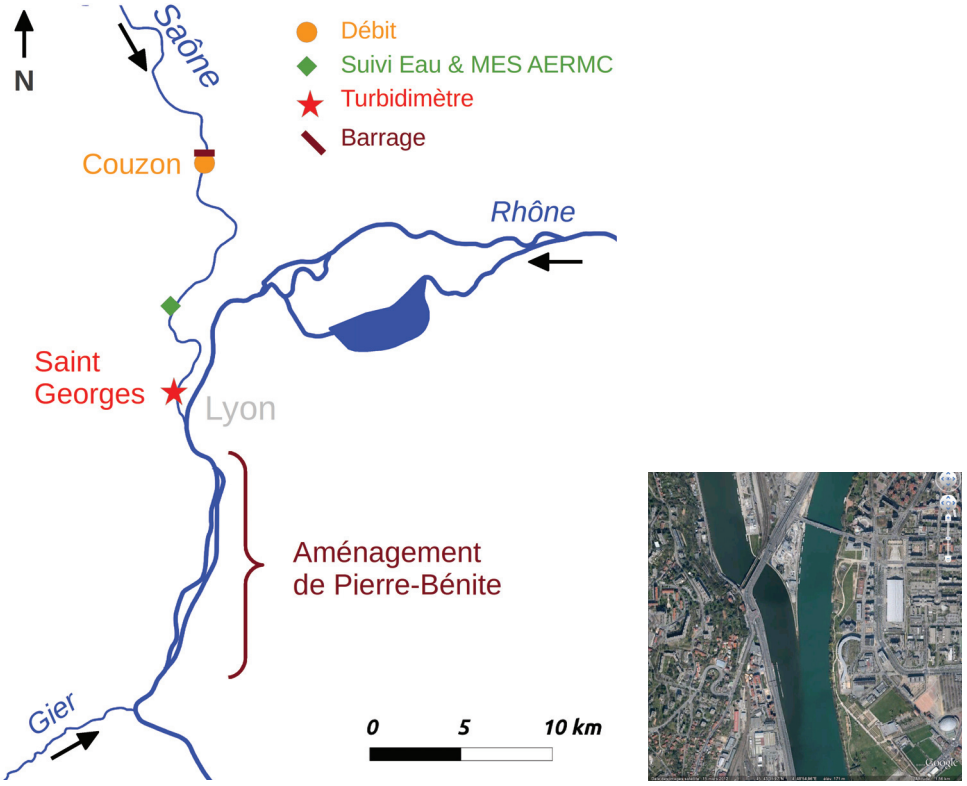


FIGURE 3.11 – (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires de la Saône à Lyon ; (b) Confluence de la Saône et du Rhône (source Google Earth)

par rapport aux autres stations (de 0,002 à 1,5 g/L pour le Rhône et jusqu'à 10 g/L pour l'Arve par exemple). Le coefficient de corrélation de 0,76 de la relation linéaire forcée à 0 établie est plus faible que pour le Rhône à Lyon. En effet, si pour des concentrations en MES inférieures à 0,05 g/L, une tendance linéaire semble se dégager, les valeurs supérieures à 0,05 g/L, peu nombreuses, sont en revanche très dispersées et entraînent une inflexion de la relation.

La forme sigmoïde de la relation turbidité couvre toute la gamme de concentration en MES observée et l'utilisation de la relation linéaire établie peut entraîner une erreur de ±30 % sur la concentration en MES. Le manque de données pour de plus fortes valeurs de concentration nous empêche toutefois de proposer une relation MES-turbidité plus satisfaisante. On se contentera donc de la relation MES-turbidité présentée ici, tout en sachant qu'elle dépend fortement de l'échantillonnage et qu'elle mérite d'être renforcée pour les fortes valeurs de concentration, supérieures à 100 mg/L.

Des campagnes de prélèvement en crue ont notamment confirmé l'homogénéité des concentrations en MES dans la section de la Saône à Lyon-St-Georges (Le Coz *et al.*, 2007).

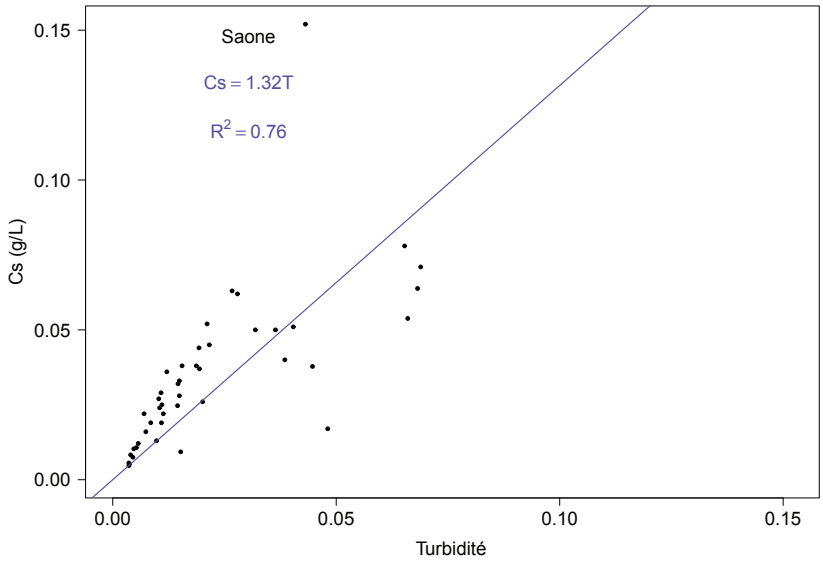


FIGURE 3.12 – Relation de calibration entre la turbidité (T en NTU ou unité constructeur) et la concentration en MES (C_s en g/L) de la Saône à Lyon

Les chroniques de débit et de concentrations en MES de la Saône à Lyon pour les années 2010 à 2013 sont présentées sur la Fig. 3.13. Un débit de 850 m^3/s, correspondant à la moitié du débit de crue biennale, a été choisi pour départager les périodes de crue des périodes de régime de base. Des périodes de lacune dans la mesure de concentration en MES ont eu lieu depuis décembre 2009 et la chronique horaire est complète à 67 %. Néanmoins, plusieurs périodes de crue ont été enregistrées, notamment début 2010, fin 2010, fin 2011 et fin 2012, avec des débits de pointes atteignant le débit de crue biennale de 1 700 m^3/s et des concentrations en MES jusqu'à 350 mg/L. Les concentrations en MES de la Saône en crue sont faibles par rapport à celles du Rhône, de l'Arve, de l'Isère et de la Durance en crue.

Pour le suivi des contaminants, un piège à sédiments a été installé dans la Saône à 6 km en amont de Lyon et est relevé tous les mois. La Saône à Lyon a également été échantillonnée dans le cadre du réseau Eau et MES de l'Agence de l'Eau RMC (1991-2009).

3.3.5 L'Isère à Beaumont-Monteux

Une station turbidimètrique est installée sur l'Isère à Beaumont-Monteux (CNR/Irstea) (Cf. Fig. 3.14). Sur la période de janvier 2011 à septembre 2012, les chroniques de débit et de concentrations en MES horaires (Cf. Fig. 3.15) montrent cinq événements de crue avec des débits atteignant 1 000 m^3/s et des concentrations en MES jusqu'à 3 g/L en juin 2012.

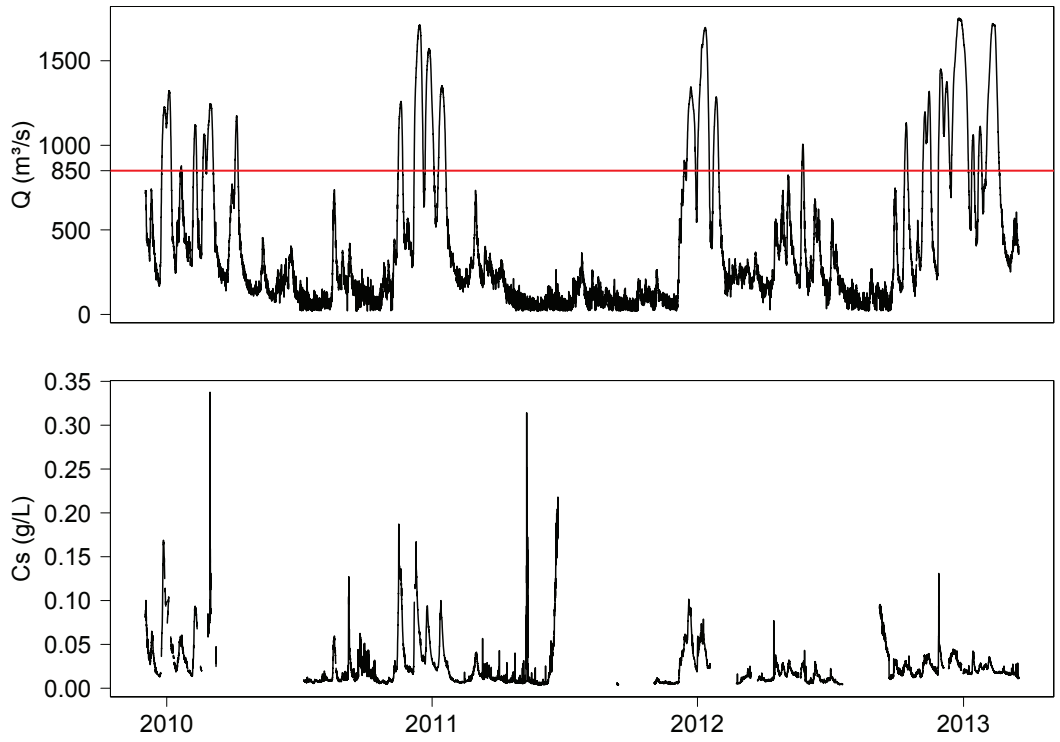
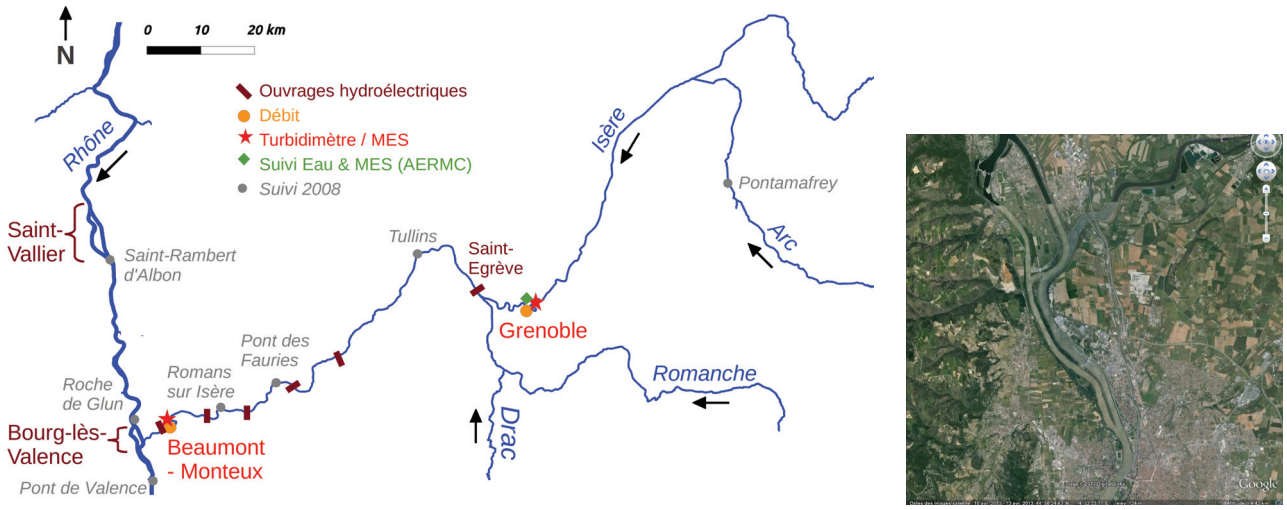


FIGURE 3.13 – Chroniques de débit (CNR) et de concentration en MES (CNR/Irstea) de décembre 2009 à mars 2013 de la Saône à Lyon

Une station turbidimétrique est également installée à Romans-sur-Isère (CNR/Irstea), mais la mesure à cette station est instable à basse concentration (Cs $<$ 200 mg/L) et il est préférable d'utiliser les données de Beaumont-Monteux.

La confluence entre l'Isère et le Rhône à Valence se fait dans le canal de l'usine de Bourg-lès-Valence (Cf. Fig. 3.14). Ces deux écoulements ne se sont vraisemblablement que très peu mélangés sur les 9 km de canal entre le confluent et le pont de Valence, même si le débit du Vieux-Rhône est négligeable et le barrage de l'Isère fermé. Ce phénomène est d'ailleurs signalé dans le rapport EDF (Rieux, 2008). L'utilisation de la mesure de concentration réalisée au Pont de Valence pour le calcul des flux de MES rencontre donc les mêmes interrogations qu'à la station de Jons.

Une station de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires, opérée par le LTHE, est également en place à Grenoble Campus. Un suivi journalier des concentrations en MES y est mené depuis 2006. Elle a permis le suivi fin des teneurs en contaminants particulaires d'événements de crue telles que la crue de mai 2008 (Dutordoir *et al.*, 2012). Cette station a également fait partie du réseau Eau et MES de l'AERMC de 1991 à 2009.



(a) (b)

FIGURE 3.14 – (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires de l'Isère ; (b) Confluence de l'Isère et du Rhône (source Google Earth)

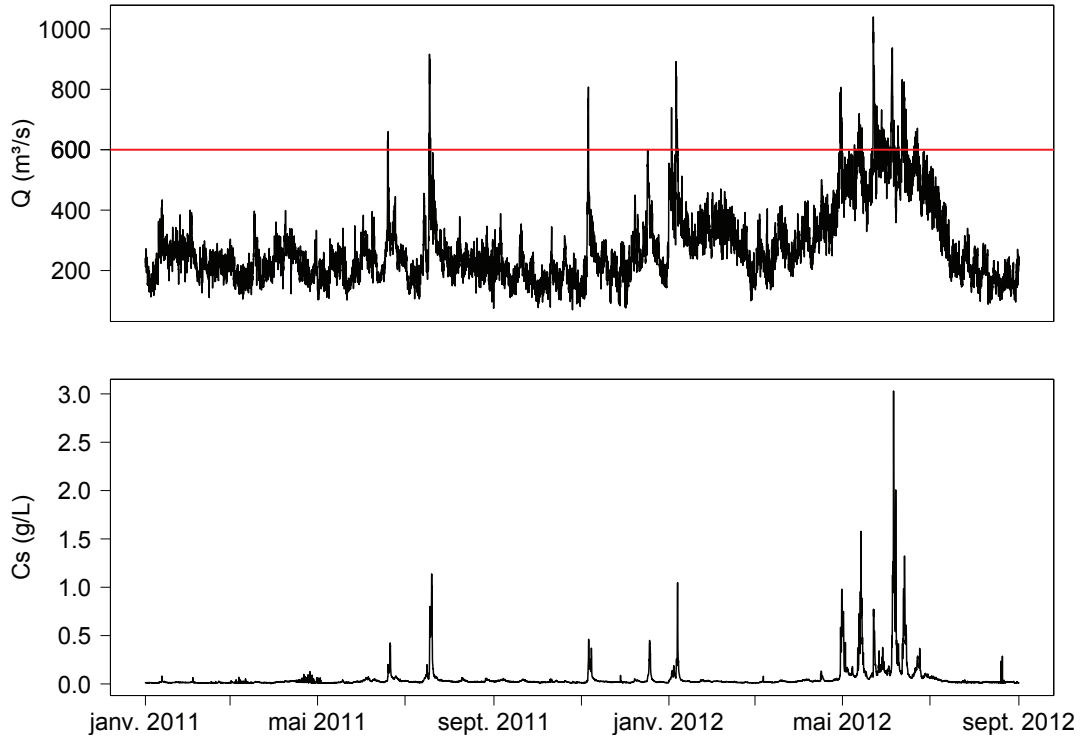
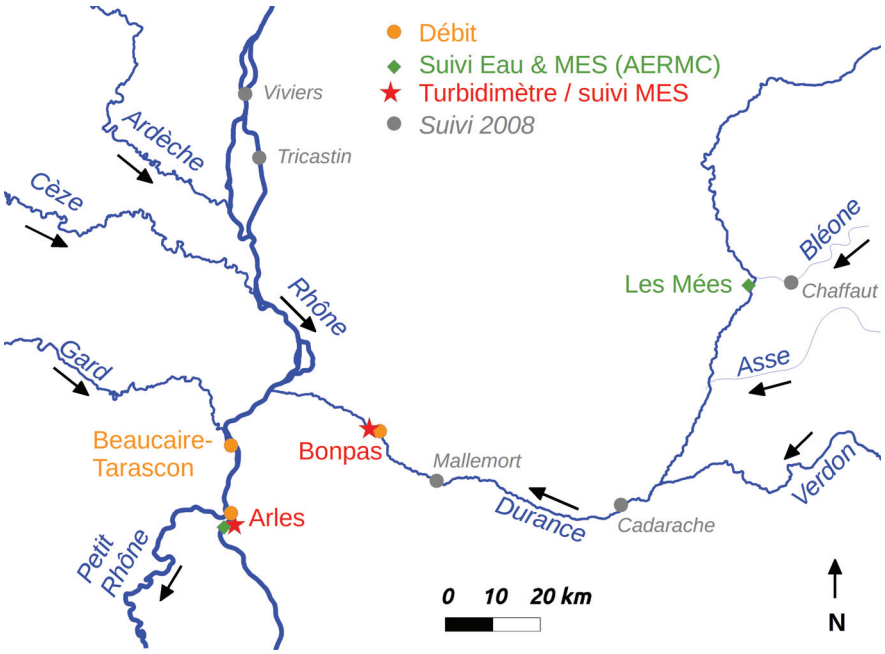


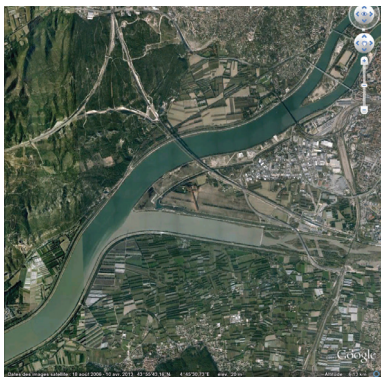
FIGURE 3.15 – Chroniques de débit (CNR) et de concentration en MES (CNR/Irstea) de janvier 2011 à septembre 2012 de l'Isère à Beaumont-Monteux

3.3.6 La Durance à Bonpas

Le débit de la Durance est enregistré au niveau de la station CNR de Bonpas (Cf. Fig. 3.16) et EDF dispose d'un turbidimètre à cette station. Nous ne disposons pas de données de concentrations en MES pour étalonner ce turbidimètre et nous assimilerons donc la turbidité à la concentration en MES pour le calcul des flux de MES. Les chroniques horaires de débit et de concentration en MES de janvier 2011 à septembre 2012 (Cf. Fig. 3.17) montrent un épisode de crue important en novembre 2011, avec un débit de pointe supérieur à 1 600 m^3/s et des concentrations en MES jusqu'à 20 g/L.



(a)



(b)

FIGURE 3.16 – (a) Réseau hydrographique et localisation des stations de suivi des flux de MES et de contaminants particulaires de la Durance ; (b) Confluence de la Durance et du Rhône (source Google Earth)

La station du réseau Eau et MES de l'AERMC sur la Durance se situe aux Mées, en amont de la confluence avec le Verdon. Il n'existe pas de station de suivi des teneurs en contaminants particulaires sur la Durance à l'heure actuelle. Cinq prélèvements manuels ont été effectué pendant la crue de novembre 2011 entre le 5 et le 11 novembre 2011.

3.3.7 Le Rhône à Arles

Le débit à Arles est mesuré par la CNR qui dispose d'un point de mesure au niveau de SORA et qui fournit les débits journaliers à l'OSR. Il existe également une station débitmétrique à Beaucaire-Tarascon (Cf. Fig. 3.16), en amont de la station d'Arles avant la diffluence du petit et du grand

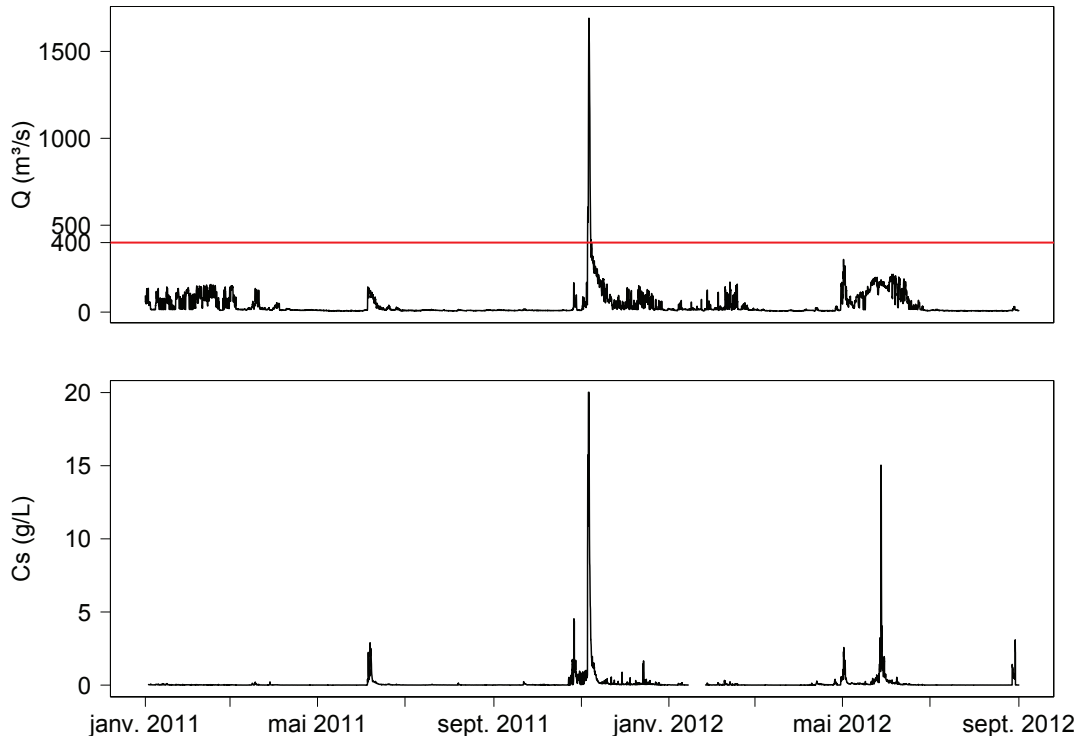


FIGURE 3.17 – Chroniques de débit (CNR) et de concentration en MES (EDF) de janvier 2011 à septembre 2012 de la Durance à Bonpas

Rhône. A Beaucaire-Tarascon, le débit interannuel du Rhône est de 1 690 m^3/s pour la période 1920-2011 [5] et les débits de période de retour 1 an, 2 ans, 10 ans, 50 ans et 100 ans sont respectivement de 4 000, 5 000, 8 400, 10 400 et 11 200 m^3/s.

Les débits journaliers de 2011 et 2012 à Arles sont présentés sur la Fig. 3.18. Au cours de ces deux années, le débit de crue de 3000 m^3/s, fixé par convention (Antonelli, 2010), a été dépassé à quatre reprises, en novembre 2011 ($Q > 5000$ m^3/s) au cours d'une crue provenant de la Durance, en janvier 2012 suite à des apports du Haut-Rhône, en novembre puis en décembre 2012 avec une forte contribution des affluents du Bas-Rhône. Le printemps de l'année 2012 est marqué par des débits 3 à 4 fois plus forts qu'en 2011. Le volume annuel d'eau passé à Arles en 2011 est de 34,6 km^3, ce qui est très inférieur à la moyenne de 42 km^3 sur les dix dernières années. Pour l'année 2012, le volume d'eau est de 50,3 km^3.

Pour les années 2011 et 2012, le suivi de la concentration en MES à SORA repose sur un échantillonnage moyen journalier ou moyen toutes les 4 heures en crue, quand le débit est supérieur à 3000 m^3/s. Les concentrations en MES journalières de 2011 et 2012 sont présentés sur la Fig. 3.19.

5. données CNR, statistiques : http ://www.hydro.eaufrance.fr, code station : V7200010

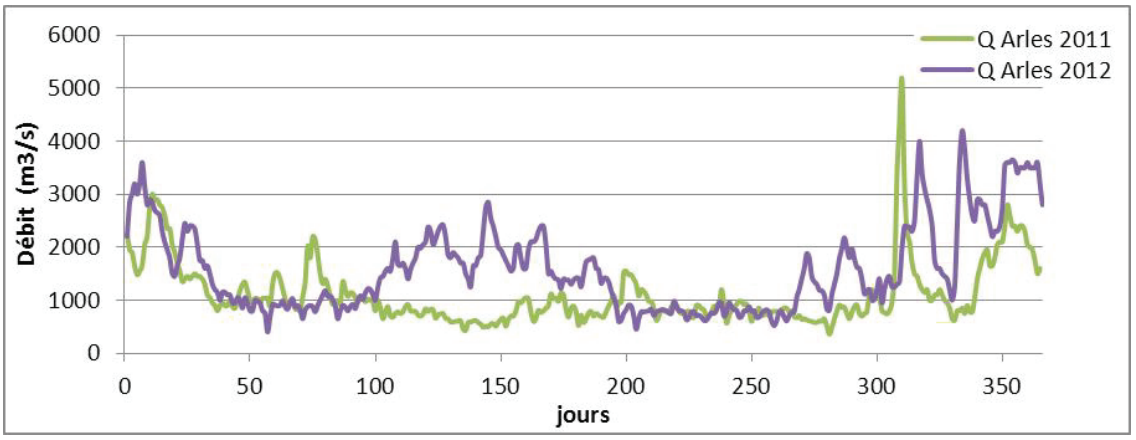


FIGURE 3.18 – Débits journaliers du Rhône à Arles en 2011 et 2012, source CNR.

Pour l'année 2011, il manque 38 données dans les chroniques du MIO qui sont hors période de crue et 24 données pour l'année 2012 (dont 5 en période de crue). La relation entre la concentration en MES et le débit à Arles établie à partir de données collectées entre 2005 et 2009 par Antonelli (2010) est utilisée pour compléter les chroniques avec des données manquantes :

$$\log C_s = 2,07 \ \log Q - 5,15 \tag{3.1}$$

avec C_s la concentration en MES et Q le débit.

Les crues de novembre 2011 et 2012 sont associées à des pics de MES atteignant 2,5 et 3,8 g/L respectivement, tandis que les pics des crues de janvier et décembre 2012 atteignent seulement 700 mg/L.

Des mesures distribuées de concentrations en MES dans la section du Rhône au niveau de la station d'Arles seraient intéressantes à mener, notamment en cas de crue de la Durance. La modélisation hydraulique des flux et des aménagements permettrait également de prendre en compte finement la combinaison des flux des affluents en routant les MES dans le réseau. La prise en compte des phénomènes de mélange et de séparation des masses de MES est nécessaire et constitue un enjeu important de la modélisation des écoulements.

Le suivi des teneurs en contaminants particulaires à Arles repose sur des prélèvements tous les 15 jours à l'aide d'une centrifugeuse fixe (Cf. §2.3.1.4). En cas de crue, la fréquence d'échantillonnage est augmentée, avec un prélèvement réalisé en montée de crue, un au pic de crue et un en descente de crue. Un piège à sédiments est également installé à SORA et permet d'obtenir un échantillon intégré mensuel. Les méthodes d'analyse du mercure et des PCB dans les MES sont décrites au §?? et les résultats d'analyses sont disponibles pour les années 2011 et 2012.

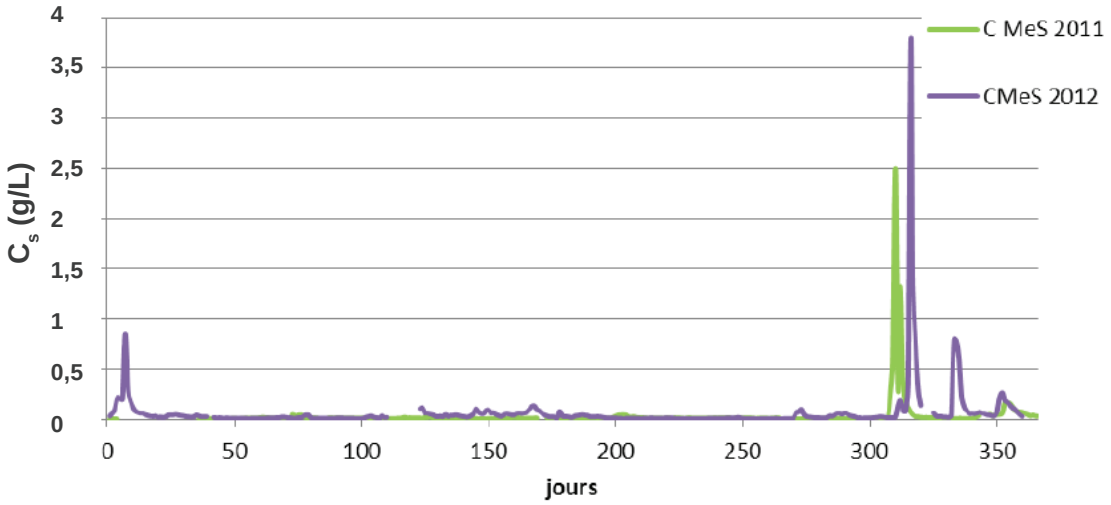


FIGURE 3.19 – Concentrations journalières en MES (g/L) du Rhône à Arles en 2011 et 2012, source MIO

3.4 Suivi de deux événements hydrosédimentaires majeurs

Entre le 26 mai et le 8 juin 2008, la station de suivi d'Arles a mesuré des concentrations en MES exceptionnellement fortes par rapport au débit d'eau enregistré. Les flux de MES mesurés au cours de ces deux semaines se sont révélés aussi importants que ceux observés lors de la crue de décembre 2003, de fréquence de retour supérieure à 50 ans, alors que les débits sont restés à un niveau relativement modéré. En 2003, la crue avait duré 6 jours et les flux de MES ont été évalués à 5 Mt de MES à Arles (Ollivier *et al.*, 2010; Eyrolle *et al.*, 2012).

La compréhension de l'origine de ces flux inhabituels est un enjeu pour la quantification des flux à la mer. Des données de débits et de concentrations en MES ont été collectées par différents partenaires sur le Rhône, l'Isère et la Durance au cours de cette période. Le jeu de données ainsi constitué offre la possibilité d'étudier les mécanismes de la dynamique hydro-sédimentaire à l'échelle du réseau du Rhône aval.

Sur le Haut-Rhône, les chasses de barrage qui se déroulaient tous les trois ans jusqu'en 2003, ont été de nouveau conduites en 2012 après 9 années d'arrêt. Au cours des deux semaines que durent les opérations, d'importantes quantités de MES transitent dans le réseau hydrographique. L'OSR, en partenariat avec la CNR, a mis en place un protocole de suivi des concentrations en MES et des teneurs en contaminants particulaires en différents points du Haut-Rhône et sur les affluents. Le suivi intensif mené a fourni un jeu de données complet permettant d'étudier la dynamique des flux sédimentaires et des contaminants associés à l'échelle du réseau hydrographique du Haut-Rhône.

Nous présentons dans ce chapitre les suivis détaillés menés et les données collectées au cours de ces deux événements hydro-sédimentaires exceptionnels, combinaisons de crues et de chasse, concernant pour l'un le Rhône aval et pour l'autre le Haut-Rhône.

3.4.1 L'événement de mai-juin 2008 sur l'Isère, la Durance et le Rhône aval

Le rassemblement des données a représenté un important travail auprès de différents producteurs, dont la Compagnie Nationale du Rhône (CNR), Irstea, le Laboratoire des Transferts en Hydrologie et Environnement (LTHE), l'Institut Méditerranéen d'Océanologie (MIO), l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) et Électricité de France (EDF).

Tableau 3.2 – Données de débit et concentrations en MES recueillies au niveau des stations du Rhône, du réseau Arc Isère et de la Durance pour le calcul des flux de MES de la crue du Rhône de mai-juin 2008.

Cours d'eau	Station d'intérêt pour les flux	Surface drainée (km^2)	Station de débit associée	Mesure de concentration en MES
Rhône	Saint-Rambert	44000	Saint-Rambert[1]	prélèvements[2] (à Roche de Glun)
Arvan		180		prélèvements[3]
Glandon				prélèvements[3] :
Arc	Pontamafrey	1500	Pontamafrey[2]	prélèvements[3]
Isère	Grenoble Campus	5700	Grenoble[4]	turbidimètre[4]
Isère	Tullins	8000	Beaumont-M.[1]	turbidimètre[2]
Isère	Pont des Fauries	10000	Beaumont-M.[1]	prélèvements[2]
Isère	Romans	11320	Beaumont-M.[1]	HADCP[3]
Isère	Beaumont-Monteux	11800	Beaumont-M.[1]	prélèvements[2]
Rhône	Pont de Valence	66500		prélèvements[2]
Rhône	Vivier	71000	Viviers[1]	HADCP[3]
				(à Tricastin)
Bléone	Chaffaut	713		
Durance	Cadarache	11700		
Durance	Mallemort	12742		
Durance	Bonpas	14159	Bonpas[1]	turbidimètre[2]
Rhône	Beaucaire	95500	Beaucaire[1]	Cf. Arles
Rhône	Arles	95 590	Arles[1]	prélèvements[5]

[1] : CNR
[2] : EDF
[3] : Irstea
[4] : LTHE
[5] : IRSN / COM

Les stations d'intérêt du Rhône, du réseau Arc Isère et de la Durance pour lesquelles les données disponibles permettent une évaluation des flux de MES entre le 26 mai et le 8 juin 2008 sont recensées dans le Tab. 3.2. Les stations de mesure sont localisées sur la Fig. 3.14 pour le réseau Arc-Isère et sur la Fig. 3.16 pour la Durance et le Rhône aval. Les chroniques de débit et les données de

concentrations en MES collectées entre le 26 mai et le 8 juin 2008 sur le Rhône, l'Isère et la Durance sont représentées sur la Fig. 3.20. Les flux de MES de la Durance et de la Bléone ont été directement fournis par EDF ; nous ne disposons dons pas des chroniques brutes de débit et de concentrations en MES, à l'exception du débit à Bonpas.

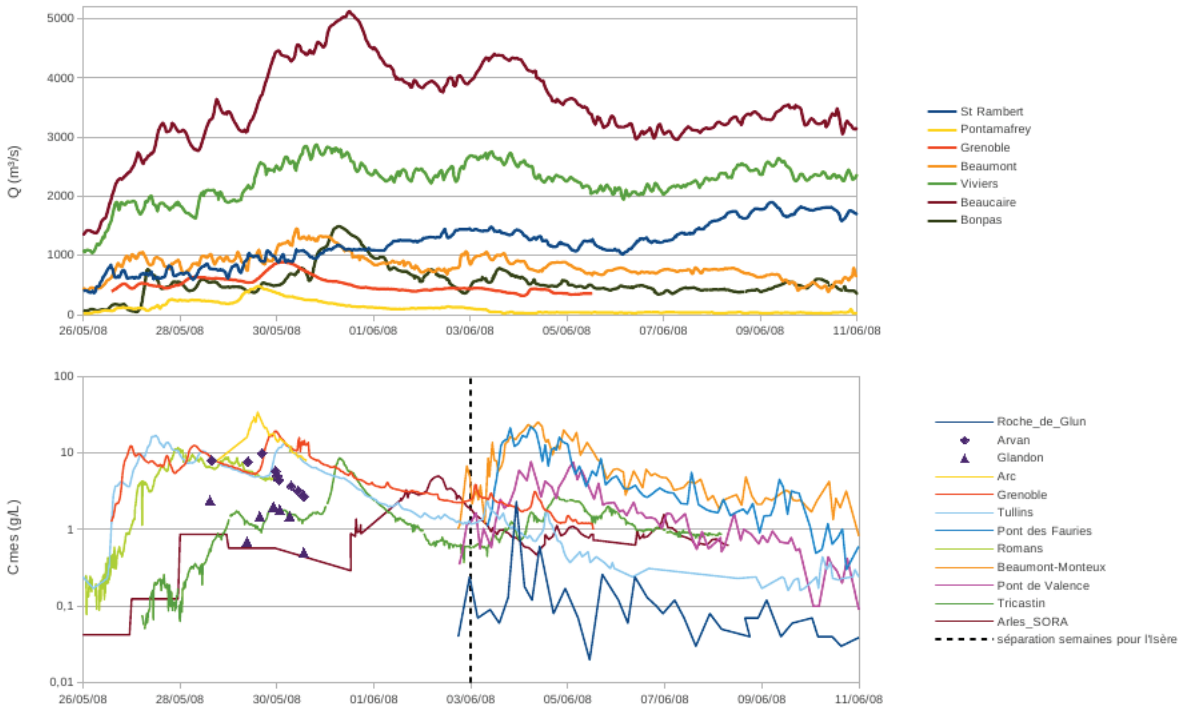


FIGURE 3.20 – Enregistrements de débit et de concentration en MES aux différentes stations du Rhône, de l'Isère et de la Durance au cours de l'événement hydro-sédimentaire de mai-juin 2008

Ces enregistrements font apparaître deux événements producteurs de MES. Tout d'abord, trois pics de crue de l'Arc sont observés, provoquant trois pics de concentration en MES mesurés sur l'Isère à Grenoble et à Tullins du 26/05/2008 au 02/06/2008, puis sur le Rhône à Tricastin du 28/06/2008 au 03/06/2008 et enfin à Arles du 01/06/2008 au 05/06/2008. Durant cette même période a eu lieu la chasse du barrage de St Egrève, situé sur l'Isère entre Grenoble et Tullins. Cette chasse se traduit notamment par une concentration en MES à Tullins supérieure à celle mesurée à Grenoble lors du premier pic.

Dans un second temps, durant la semaine du 3 au 8 juin, a lieu la chasse des barrages de la Basse Isère qui se traduit par un pic de MES enregistré à Beaumont-Monteux et, avec un jour de décalage, sur le Rhône à Tricastin. Il est remarquable que dans cette deuxième phase, pour des concentrations supérieures à l'exutoire de l'Isère (Romans/Beaumont-Monteux), le pic de concentration dans le Rhône aval au Tricastin a été environ trois fois inférieur à celui de la première semaine. L'explication est sans doute à rechercher au niveau de la gestion des aménagements et d'une granulométrie

potentiellement plus grossière des MES mobilisées par la chasse de la Basse-Isère. En effet, la CNR a signalé que les sédiments qui se sont déposés dans le canal d'amenée de l'usine de Bourg-lès-Valence étaient très sableux, ce qui suggère qu'une fraction importante du flux a pu être intercepté par les retenues.

La station du Rhône à Pont de Valence ne permet pas de calculer sans hypothèse le flux du Rhône à l'aval de la confluence de l'Isère en raison d'une suspicion de mauvais mélange des écoulements de l'Isère et du Rhône dans le canal de l'usine de Bourg-lès-Valence. En effet, le pont de Valence est situé seulement 9 km en aval de la confluence entre l'Isère et le Rhône et le mauvais mélange est signalé dans le rapport EDF (Rieux, 2008). Nous préférons donc calculer les flux de MES à Viviers, en utilisant la concentration en MES déduite de l'atténuation acoustique (Moore, 2011) du H-ADCP (EDF) du Tricastin dans le canal de Donzère, en supposant qu'au niveau de la diffluence de Donzère, le mélange est atteint.

Pour évaluer les apports amont du Rhône en amont de la confluence avec l'Isère, les données de concentration en MES enregistrées à Roche de Glun dans le Vieux-Rhône de Bourg-lès-Valence sont associées au débit mesuré à Saint Rambert, en faisant l'hypothèse que les concentrations en MES sont représentatives de l'écoulement avant la diffluence. Cette hypothèse est également suivie pour évaluer le flux total du Rhône à la mer en considérant le débit total mesuré à la station de Beaucaire, qui se trouve en amont de la séparation entre le Rhône et le petit Rhône à Arles. La concentration en MES utilisée est celle mesurée à Arles, sous hypothèse de mélange et de représentativité de cette concentration.

L'étude de ce jeu de données nous a permis d'établir que l'événement hydrosédimentaire de mai-juin 2008 est composé de deux événements consécutifs, les chasses de barrages et les crues de l'Isère d'une part, et la crue de la Durance d'autre part. Nous avons également identifié les stations d'intérêt pour le calcul des flux à partir des données disponibles et en prenant en compte les problèmes de mélange des eaux au niveau des confluences et des aménagements hydroélectriques du Rhône. Les résultats des calculs de flux sont discutés dans le §5.2.1.

3.4.2 Les chasses du Haut-Rhône de juin 2012

Les opérations de chasse des barrages du Haut-Rhône se sont déroulées du 4 au 18 juin 2012, avec l'abaissement de la retenue de Génissiat au cours de la première semaine et l'abaissement de la retenue de Verbois la deuxième semaine, à partir du 9 juin, accompagné par l'abaissement de tous les ouvrages CNR jusqu'à Sault-Brénaz (gestion ordinaire de l'aménagement EDF de Cusset). Le suivi de ces opérations, mené en collaboration avec les SIG et la CNR, a eu pour objectif de quantifier

et d'étudier la variabilité spatio-temporelle des flux de MES et de contaminants particulaires et des paramètres d'intérêt associés (carbone organique et granulométrie), générés dans le Haut-Rhône par l'abaissement des retenues de Génissiat et de Verbois. Les flux de MES engendrés par les reprises de dépôts au cours des crues suivantes ont également été suivis dans le cadre de la surveillance des stations pérennes et du groupe d'intervention en crues.

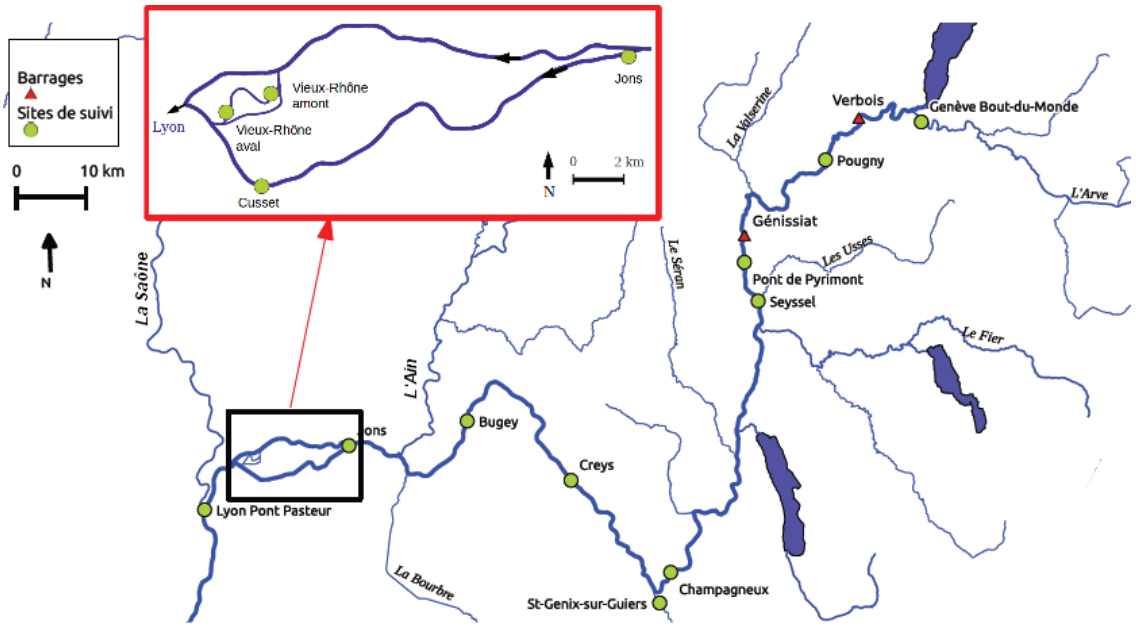


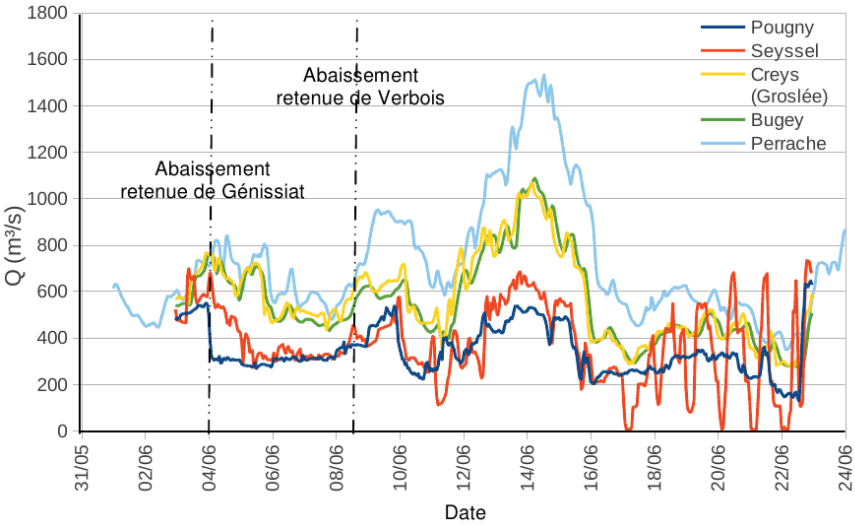
FIGURE 3.21 – Réseau hydrographique du Haut-Rhône, barrages de Verbois et Génissiat, et points de mesure du suivi OSR mis en place lors des opérations de chasse du Haut-Rhône en juin 2012.

Le suivi de ces opérations a été assuré par quatre équipes évoluant tous les jours sur le terrain entre le 4 et le 15 juin. Ces équipes étaient constituées de 15 agents Irstea, d'une personne du CEREGE et de l'animateur de l'OSR. Elles ont été épaulées par la CNR et la société AMP, notamment dans les derniers jours du suivi pour pallier la panne de la centrifugeuse mobile survenue le 11 juin. Au total, environ 650 flacons, 50 échantillons de pièges à sédiments, 30 centrifugations et 20 prélèvements manuels composites (bonbonnes) ont été collectés (Cf. §2.2 pour le détail des techniques de prélèvement).

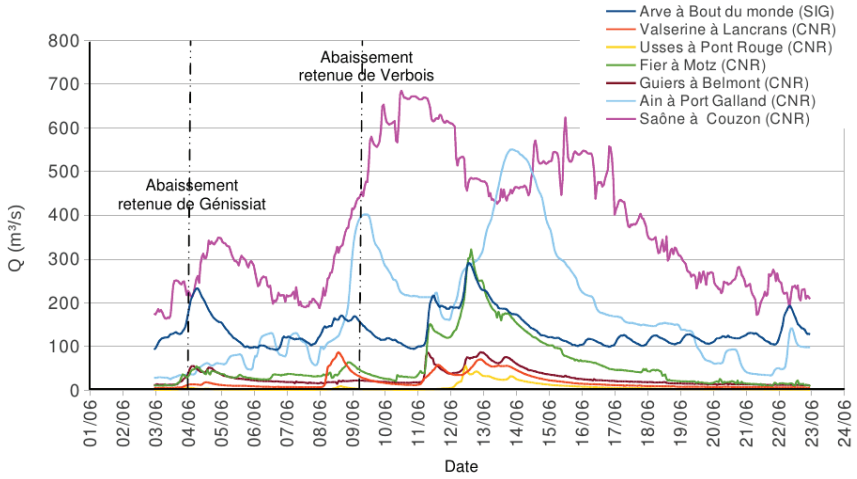
La Fig. 3.21 présente les stations de suivi des opérations de chasse par les équipes OSR. Les opérations ont été suivies avec une fréquence d'échantillonnage temporelle élevée en un nombre restreint de stations choisies en fonction de leur position par rapport aux principales zones de production et de stockage des sédiments sur l'ensemble du Haut-Rhône (Rhône et affluents à l'amont de Lyon). Le détail du suivi réalisé à chaque station est détaillé dans le rapport Piégay et *et al.* (2008).

3.4.2.1 Les débits

Les stations CNR et OFEV réparties sur le Haut-Rhône ont permis l'enregistrement des débits pendant la période des opérations de chasse. Lors des deux semaines d'opération de chasse, le Rhône était en crue, avec un débit atteignant 1500 m^3/s la seconde semaine à Perrache (Cf. Fig. 3.22a).



(a)



(b)

FIGURE 3.22 – Débits (Q en m^3/s) mesurés sur les stations CNR durant la période de chasse en juin 2012 (a) sur le Haut-Rhône et (b) sur ses principaux affluents

Sur les principaux affluents, les mesures de débit sont réalisées soit par la CNR (majorité des stations présentées) soit par l'OFEV. Durant la période de chasse, des crues ont été enregistrées sur la plupart des affluents du Haut-Rhône (Cf. Fig. 3.22b). A l'amont, l'Arve était en crue quelques jours avant l'abaissement du barrage de Génissiat. Cet affluent est le principal contributeur au flux de MES du Rhône durant les périodes hors chasse. Il a de nouveau été en crue durant la seconde se-

maine des opérations. Le Fier a également été en crue pendant la semaine d'abaissement de Verbois (semaine 2). A l'aval, l'Ain a fait deux crues importantes durant la première et la seconde semaine des opérations.

Des jaugeages avec un profileur Doppler de type ADCP ont été réalisés dans la zone de Miribel-Jonage pour connaître la répartition des débits entre les différents bras. Ces résultats sont présentés en Annexe H.

3.4.2.2 Les matières en suspension

La concentration en MES a été suivie tout au long du réseau avant, pendant et après les opérations de chasse des barrages. La fréquence d'échantillonnage dépendait du type de suivi effectué :

- prélèvements manuels quotidiens à Pougny, Seyssel, Creys, Bugey, Jons, dans la zone de Miribel-Jonage et à Lyon ;
- échantillons prélevés automatiquement toutes les 4 heures à Creys, Bugey, Jons, dans la zone de Miribel-Jonage et à Lyon. La concentration en MES de ces échantillons a été déterminée par filtration-pesée au laboratoire ;
- mesure en continu de la turbidité grâce à des turbidimètres enregistrant une moyenne des mesures toutes les 15 minutes à Creys, Bugey, Jons, dans la zone de Miribel-Jonage et à Lyon. Pour chaque turbidimètre, une courbe d'étalonnage a été établie en utilisant les données de concentrations en MES obtenues par les autres techniques de mesure (prélèvements manuels/automatiques, pycnomètre, crêpe). La Fig. 3.23 présente les mesures obtenues à la station de Bugey par les différentes techniques de prélèvement et de mesure, ainsi que la chronique de turbidité convertie en concentration en MES. Les coefficients de variation des concentrations en MES ponctuelles obtenues à partir de prélèvements effectués au même moment avec des techniques différentes sont compris entre 2 à 20 % ; les résultats sont donc cohérents entre eux. La courbe représentant la turbidité convertie en MES reproduit bien la dynamique sédimentaire mesurée par les mesures ponctuelles, et le coefficient de corrélation entre la turbidité et la concentration en MES pour la station de Bugey est de 0,98. Les relations de calibration établies pour les différents turbidimètres sont présentées en Annexe G.

Les concentrations en MES enregistrées aux sites amont de Pougny et Seyssel par les pycnomètres de la CNR ont été comparées aux données obtenues par la méthode de la crêpe (CNR) et par prélèvement manuel (Irstea) (Cf. Fig. 3.24). L'écart entre les valeurs obtenues avec le pycnomètre et les valeurs obtenues par la méthode de la crêpe et les prélèvements manuels est en moyenne de 2 % (140 couples de valeurs testés). Les résultats des différentes méthodes de mesure sont donc cohérents

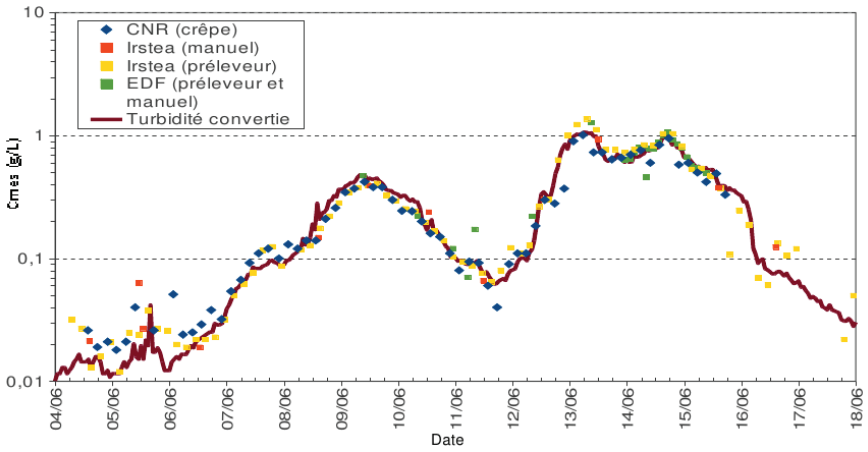


FIGURE 3.23 – Exemple de signal turbidimétrique calé avec des prélèvements rapprochés (manuels automatisés) pour la mesure de la concentration en MES ($Cmes$ en g/L) : station de Bugey (EDF).

et comparables. Les mesures pycnomètre permettant d'avoir une fréquence de mesure élevée, ces données ont été choisies pour le calcul de flux de MES. Des turbidimètres CNR, également installés à ces deux stations, étaient limités à une mesure jusqu'à 4000 NTU et n'ont donc pas permis un suivi de l'ensemble de l'épisode.

Des concentrations en MES importantes ont été enregistrées à Pougny, avec un pic dépassant 40 g/L le 11 juin (Cf. Fig. 3.24). En aval, à Seyssel, les taux de MES atteignent 10 à 15 g/L lors des deux ouvertures de barrage. Le taux de MES engendré par l'ouverture du barrage de Verbois est donc réduit de 75 % lors de son passage à Seyssel.

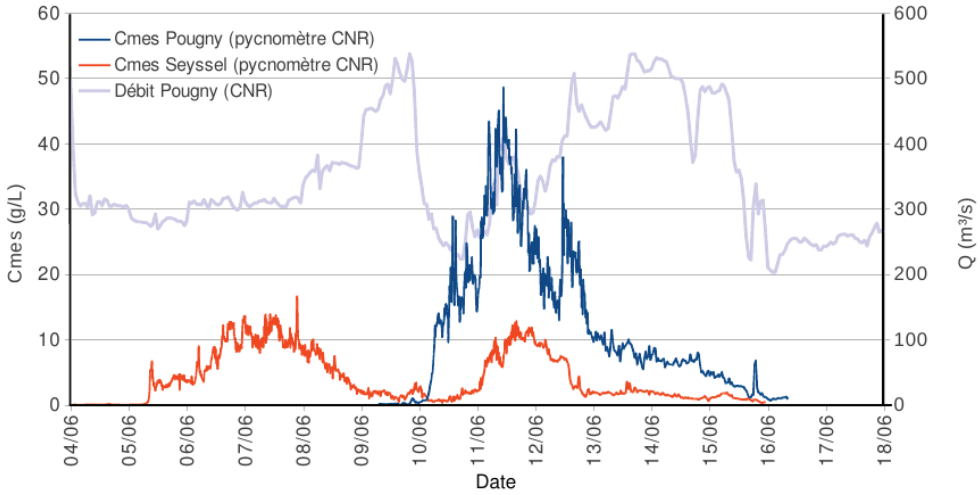


FIGURE 3.24 – Concentrations en MES (g/L) à Pougny et Seyssel en juin 2012. Débit (Q en m^3/s) à Pougny.

Sur le tronçon entre Creys, Bugey et Jons (Cf. Fig. 3.25a), on observe une diminution de l'intensité et un léger étalement des pics de MES en allant vers l'aval sous l'effet de la dispersion.

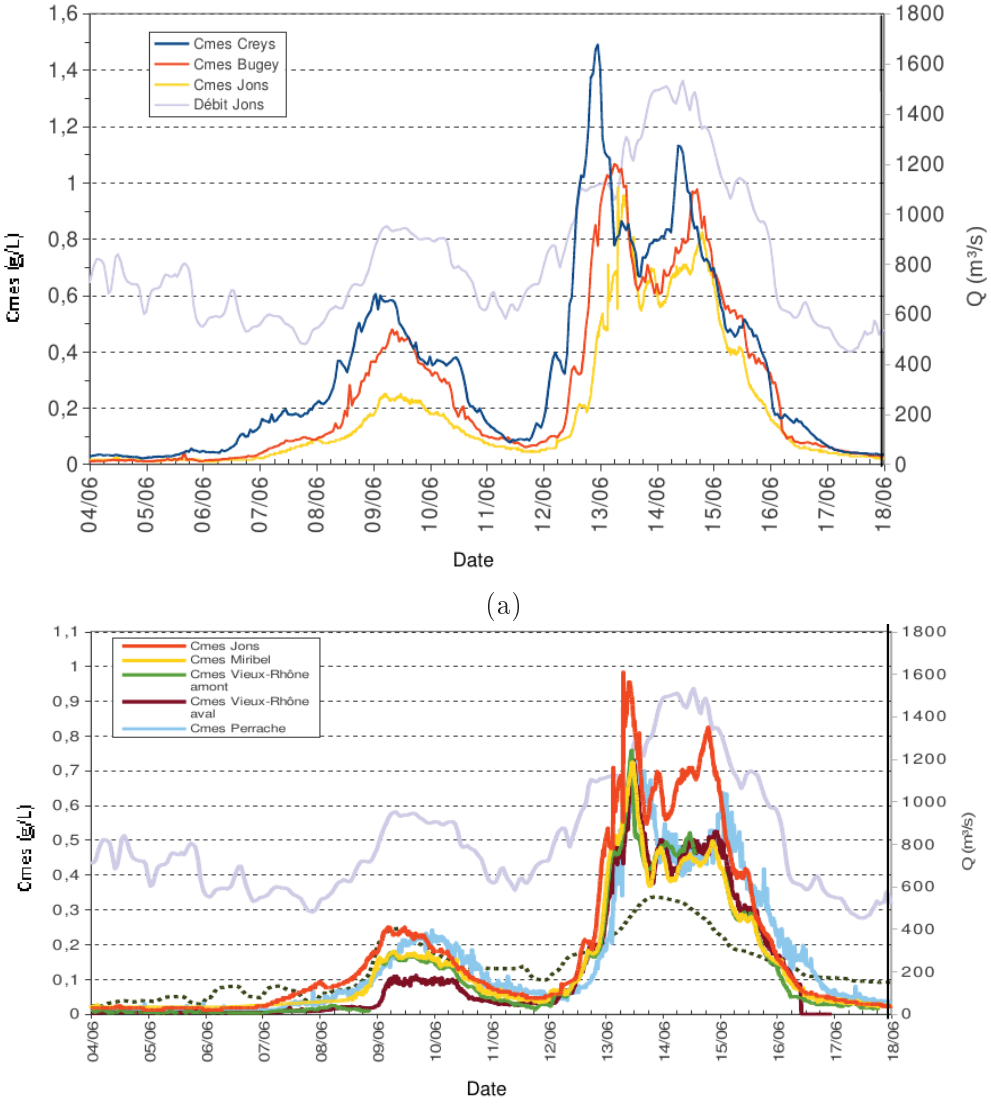


FIGURE 3.25 – Concentrations en MES (g/L) pendant la période de chasse de juin 2012 (a) à Creys, Bugey et Jons et (b) aux sites situés à proximité de Lyon : Jons, canal de Miribel (Neyron), Vieux-Rhône amont, Vieux-Rhône aval, et Lyon-Perrache. Débit (Q en m^3/s) du Rhône à Jons en gris continu et de l'Ain en pointillés verts.

Pour les stations de de Jons, Neyron, Vieux-Rhône amont, Vieux-Rhône aval et Lyon-Perrache (Cf. Fig. 3.25b), on observe distinctement les pics de concentration en MES associés à chaque ouverture de barrage. L'ouverture de Génissiat, qui a eu lieu le 4 juin, a entraîné une augmentation de la concentration en MES à partir du 8 juin et jusqu'au 11 juin. La concentration à atteint 250 mg/L à Jons au cours de cette semaine. L'ouverture de Verbois, qui a eu lieu le 9 juin, a entraîné une

augmentation de la concentration jusqu'à 1 g/L à Jons. L'augmentation de la concentration en MES a duré du 12 au 17 juin. Les débits du Rhône à Anthon et de l'Ain à Lagnieu ont également été reportés sur cette figure. On remarque que deux crues de l'Ain ont eu lieu au cours de cette période. Les pics de débit de l'Ain ont eu lieu au même moment que les pics de concentration en MES et sont à l'origine des deux augmentations de débit enregistrées sur le Rhône.

Les concentrations en MES des principaux affluents du Haut-Rhône ont été mesurées pendant les opérations de chasse. La station de mesure permanente de l'Arve à Bout-du-Monde (Cf. §3.3.1) et la station temporaire de mesure de la turbidité installée sur le Guiers (Cf. §3.3.2) pendant la période de chasse ont fourni des chroniques continues de concentrations en MES pour ces deux affluents. Ces chroniques sont présentées sur la Fig. 3.26, où elles sont comparées aux concentrations enregistrées sur l'Isère à Romans pendant la même période. La concentration maximale en MES de l'Arve atteignait 1,4 g/L le 4 juin et 1,0 g/L les 11 et 12 juin. La concentration en MES du Guiers est montée jusqu'à 1,5 g/L le 11 juin. Durant la même période, l'Isère était également en crue et a apporté une quantité importante de MES au Rhône avec des pics de concentrations en MES atteignant 4,5 g/L le 6 juin et 1,5 g/L le 13 juin.

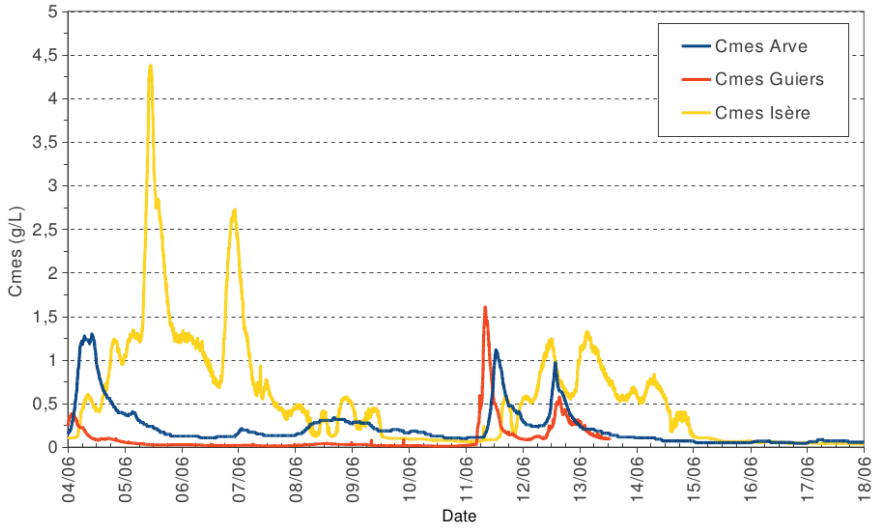


FIGURE 3.26 – Concentration en MES (g/L) aux stations OSR sur l'Arve, le Guiers et l'Isère durant la période de chasse en juin 2012.

Des prélèvements manuels ont été réalisés par les équipes de la CNR et d'Irstea sur les 4 autres affluents du Haut-Rhône (i.e., Usses, Fier, Ain, Saône). Les concentrations en MES sont présentées dans la Fig. 3.3.

Tableau 3.3 – Concentrations en MES (g/L) des affluents du Haut-Rhône mesurées par prélèvements ponctuels pendant les opérations de chasse de juin 2012.

Les Usses		Fier		Ain		Saône	
Date TU+1	MES CNR (g/L)	Date TU+1	MES CNR (g/L)	Date TU+1	MES CNR (g/L)	Date TU+1	MES CNR (g/L)
12/06/12 11:51	3,72	11/06/12 10:21	0,28	13/06/12 08:45	0,06	12/06/12 05:35	0,033
13/06/12 07:30	0,11	12/06/12 08:25	0,41	13/06/12 11:05	0,06	12/06/12 13:04	0,038
		12/06/12 11:19	1,01	Date TU+1	MES Irstea (g/L)	13/06/12 07:04	0,032
		13/06/12 09:40	0,20	06/01/12 14:55	0,0790	13/06/12 13:03	0,028
				13/06/12 08:30	0,0310	14/06/12 05:03	0,019
				14/06/12 12:40	0,0570	14/06/12 13:45	0,027
						15/06/12 05:02	0,022
						15/06/12 13:24	0,025
						16/06/12 06:02	0,024
						16/06/12 16:02	0,029
						17/06/12 07:00	0,019
						17/06/12 16:15	0,016
						Date TU+1	MES Irstea (g/L)
						08/06/12 13:20	0,022
						10/06/12 07:00	0,036
						11/06/12 15:45	0,044

3.4.2.3 Les teneurs en contaminants

Le suivi de la contamination des MES lors des opérations de chasse est basé sur un prélèvement fréquent des MES à l'aide de différents dispositifs :

- une centrifugeuse mobile (CMO, cf. §2.3.1.4) : prélèvements quotidiens à Creys et Jons pendant en moyenne environ 1 heure. Nous avons également centrifugé deux fois à Perrache et une fois sur la Saône à l'Ile Barbe pendant les opérations de chasse ;
- pièges à sédiments (TAS, cf. §2.3.1.5) : Pougny, Seyssel, Champagneux, Creys, Jons et Perrache. Les échantillons ont été collectés tous les 1 à 4 jours en fonction de leur taux de remplissage des pièges ;
- prélèvements manuels composites en bonbonnes en verre (MAN, cf. §2.3.1.3) : Pougny et Seyssel.

La Fig. 3.27 récapitule les prélèvements de MES pour les analyses chimiques réalisés dans le cadre du suivi OSR des opérations de chasse sur le Haut-Rhône de juin 2012 aux stations de Pougny (POU), Seyssel (SEY), Champagneux (CHA), Creys (CRE), Jons (JON) et Perrache / Pont-Pasteur (PPA). Au total, 75 échantillons de MES ont été collectés en vue des analyses de PCB, de mercure, de carbone organique et de granulométrie.

3.4.2.4 Le suivi post-chasse

Après les opérations de chasse de juin 2012, le groupe d'intervention en crues d'Irstea s'est mobilisé lors de deux périodes de crues à l'automne 2012 pour réaliser des prélèvements sur les affluents et sur le Rhône : les 11 et 12 novembre 2012 à Jons, sur l'Ain et la Bourbre ; du 27 au 30

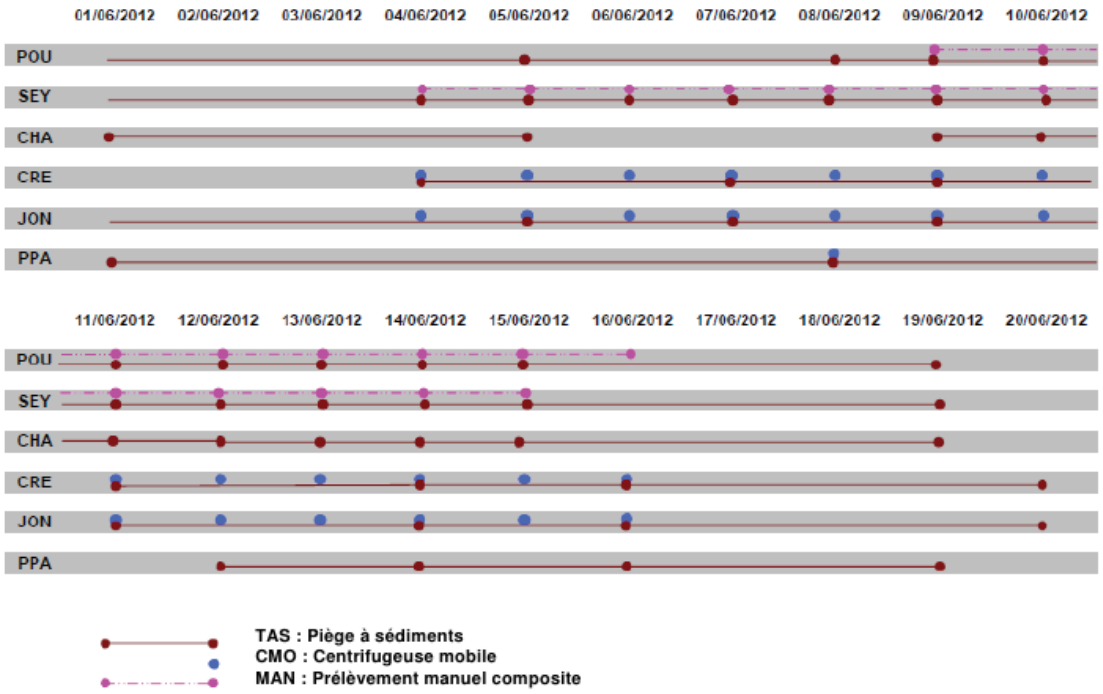


FIGURE 3.27 – Bilan des prélèvements de MES pour les analyses chimiques réalisés dans le cadre du suivi OSR des opérations de chasse sur le Haut-Rhône de juin 2012. (POU : Pougny ; SEY : Seyssel ; CHA : Champagneux ; CRE : Creys ; JON : Jons ; PPA : Perrache / Pont-Pasteur)

novembre 2012 sur la Bourbre (forte crue), la Saône et à Jons. Ce suivi avait pour but de fournir des données pour évaluer l'impact des chasses sur le réseau hydrographique, notamment au cours des épisodes de crues postérieures.

3.5 Bilan des données collectées

3.5.1 Données de débit

Les chroniques de débit réunies auprès des différents producteurs de données pour le Rhône et ses affluents sont synthétisées en Annexe I. La mise au même format et au même fuseau horaire des chroniques a représenté un important travail préliminaire à l'utilisation de ces données pour le calcul de flux.

Les données de débit sont disponibles à pas de temps horaire pour toutes les stations du Haut-Rhône, et des affluents majeurs (Saône, Isère, Durance). Elles sont également disponible aux stations d'Arles et Beaucaire, mais nous n'avons pas collecté ces données dans le cadre de la thèse. Les chroniques présentent dans l'ensemble des périodes de lacune très réduites et sont jugées de bonne qualité partout par les différents producteurs. Ces données peuvent donc être utilisées pour le calcul

de flux de MES et de contaminants particulaires.

Entre 2001 et 2012, l'écart relatif entre la somme des flux d'eau apportés par le Léman et les affluents jaugés (Arve, Valserine, Usses, Fier, canal de Savières, Séran, Guiers, Ain, Bourbre, Saône et Gier) et le flux d'eau du Rhône mesuré à Ternay, après la confluence avec la Saône est en moyenne de -6,2 % (Cf. Fig. 3.28). Or la surface du bassin jaugé par les stations des affluents amont représente 94% de la surface surface totale du bassin à Ternay. Cet écart dans le bilan hydrique s'explique donc par la surface de bassin versant qui n'est pas prise en compte dans la somme des apports ; on peut donc considérer qu'il est équilibré pour la période 2001-2012. Le même bilan a été effectué par Linne (2011) pour la partie du bassin versant située entre Valence et Arles (Cf. Fig. 3.29). Elle en conclut que le bilan en eau est équilibré pour chaque année et sur 10 ans, avec un bouclage à 3 % en moyenne (sauf pour l'année 2009).

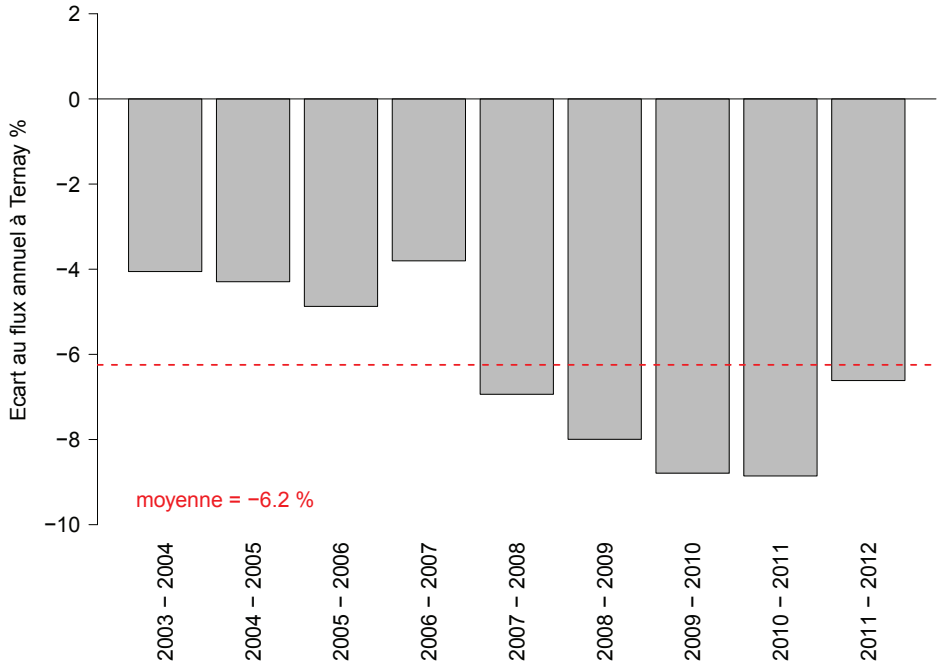


FIGURE 3.28 – Ecart relatif (%) entre la somme des flux d'eau apportés par le Léman et les affluents du Haut-Rhône (Arve, Valserine, Usses, Fier, canal de Savières, Séran, Guiers, Ain, Bourbre, Saône et Gier) et le flux d'eau du Rhône calculé à Ternay pour la période 2001-2012

La réalisation de bilans d'eau intermédiaires au niveau des stations de mesure sur le Haut-Rhône a permis de mettre en évidence un détarage de la station de mesure d'Anthon pour les années antérieures à 2000. La CNR a ainsi pu corriger la relation hauteur-débit à cette station. Au niveau des autres points nodaux, les données se sont montrées cohérentes les unes avec les autres et les bilans

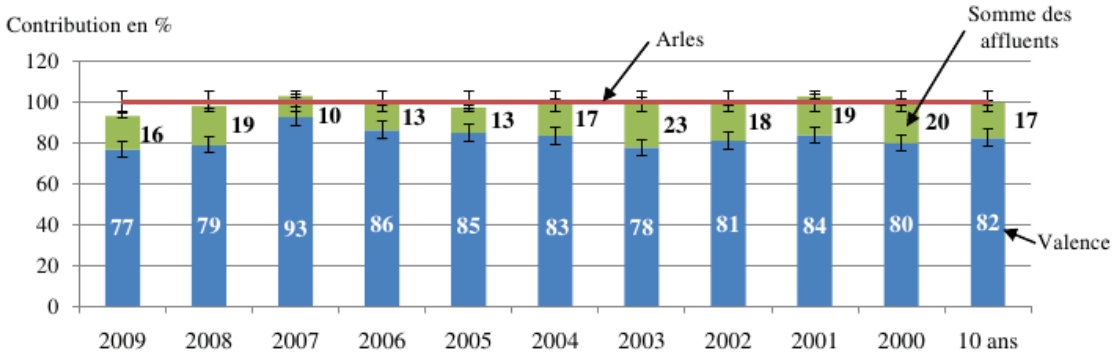


FIGURE 3.29 – Bilans annuels et décennal des apports en eau pour le bas-Rhône et ses affluents, extrait de Linne (2011). Les flux à Valence et pour les affluents sont en pourcentage du flux à Arles.

équilibrés.

Cinq périodes de crue ont été échantillonnées en 2011-2013 sur le Rhône à Jons. Les crues de décembre 2011 et de février 2013 correspondaient à des apports des affluents amont, avec des débits importants mesurés sur l'Arve, la Valserine, les Usses et le Fier (Cf. Fig. 3.30). En revanche, en janvier 2012, la crue mesurée à Jons était principalement due à des apports des affluents aval, avec de fortes crues enregistrées sur le Guiers, l'Ain et la Bourbre. Les crues de novembre et de décembre 2012 étaient généralisées sur l'ensemble des affluents, avec toutefois des débits plus importants sur les affluents amont (Arve et Valserine) en novembre qu'en décembre et un pic de crue très important de la Bourbre en décembre.

3.5.2 Données de concentrations en MES

3.5.2.1 Représentativité spatio-temporelle des données de MES

Les données de concentrations en MES collectées par Irstea et les différents producteurs de données sur le Rhône et ses affluents et utilisées dans cette thèse sont synthétisées en Annexe I. Au cours de cette thèse, nous avons fait un effort particulier d'échantillonnage des concentrations en MES du Rhône et de ses affluents en période de crue, d'étalonnage des turbidimètres existants et d'installation de nouveaux turbidimètres. Les méthodes déployées pour mesurer les concentrations sont détaillées dans le §2.2.

La compilation des données, la mise au même format et au même fuseau horaire des données a représenté un important travail préliminaire à l'utilisation de ces données pour le calcul de flux. En 2011-2013, le suivi OSR a permis de mesurer les concentrations en MES en régime de base et en crue pour la plupart des affluents du Haut-Rhône (Cf. Fig. 3.30). Pour les stations pour lesquelles un turbidimètre était disponible, les données de type ponctuel (obtenues par prélèvement manuel

ou automatique, pycnomètre ou "crêpe" , cf. §2.2 pour le détail des méthodes) obtenues pendant la même période ont été utilisées pour établir la relation de calibration entre la concentration en MES et la turbidité. Sur la Fig. 3.30, c'est le cas pour les turbidimètres permanents du Rhône à Jons, de l'Arve et de la Saône, et des turbidimètres temporaires du Guiers, de l'Ain et de la Bourbre.

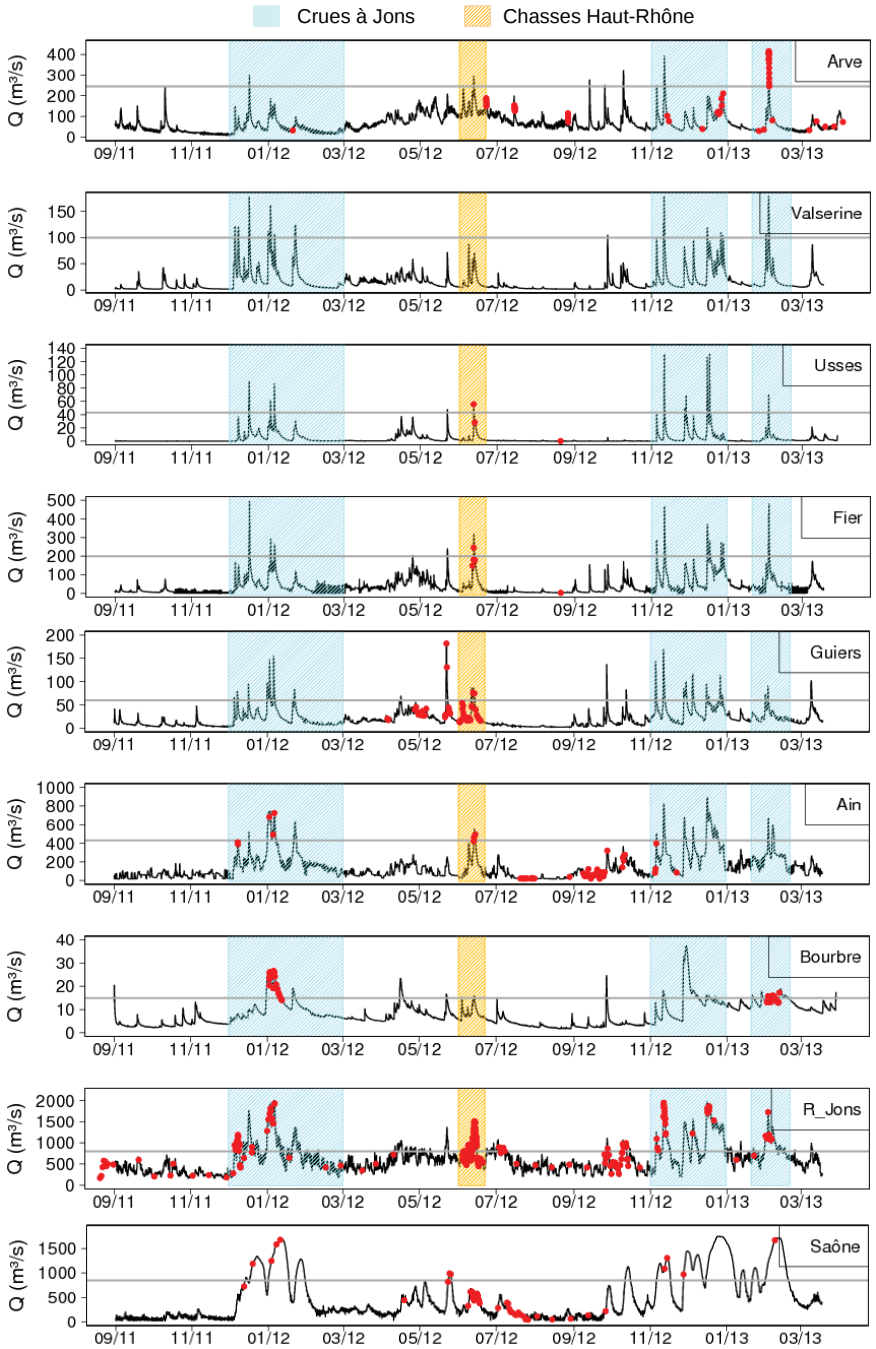


FIGURE 3.30 – Débits et dates de mesure des concentrations en MES dans le Rhône et ses affluents par l'OSR entre septembre 2011 et mars 2013. Pour les affluents du Haut-Rhône, les périodes de crue à Jons sont matérialisées en bleu et la période de chasse en orange.

3.5.2.2 Qualité de l'étalonnage des turbidimètres

Pour la plupart des stations turbidimétriques qui composent notre réseau de mesure (le Rhône à Creys, Bugey, Jons, Perrache, Neyron, Vieux-Rhône amont et Vieux-Rhône aval et la Bourbre), une relation linéaire forcée à 0 semble être bien adaptée lorsqu'une large gamme de concentration est échantillonnée (au moins trois ordres de grandeurs). Une allure sigmoïdale est en général observée pour les gammes de concentrations en MES de 0 à 0,2 g/L, et l'utilisation de la relation linéaire établie peut entraîner alors une erreur de ±30 % sur la concentration en MES. Ce problème se posera surtout pour les cours d'eau où la concentration en MES reste dans cette gamme de mesure, même en période de crue, comme dans le cas de la Saône par exemple. Pour les autres stations turbidimétriques du réseau, ce décalage n'aura que peu d'influence sur le flux de MES annuel, puisqu'il ne concerne pas les plus fortes valeurs de concentration en MES, généralement observées pendant les crues et responsables de la plus importante par du flux de MES.

3.5.3 Teneurs en PCB et en mercure

3.5.3.1 Représentativité spatio-temporelle des données de contaminants

Réseau Eau et MES (2000-2009) :

Parmi les 17 stations du réseau Eau et MES de l'Agence de l'eau RMC, les stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay, du Rhône à Saint Vallier, de l'Isère à Grenoble, de l'Isère à Chateauneuf, de la Durance aux Mées et du Rhône à Arles sont situées sur le Rhône ou affluents producteurs de MES. Pour ces 9 stations, nous disposons des données de mercure et des 7 congénères de PCB indicateurs (PCBi) collectées à la centrifugeuse entre 2000 et 2009 à raison de 4 fois par an en moyenne. Ces données sont synthétisées (nombre de prélèvement, fréquence de quantification, teneur moyenne et écart-type) et l'évolution temporelle du mercure, des 7 PCBi et de la somme des 7 PCBi aux différentes stations du réseau (OSR, 2013b). Le réseau Eau et MES de l'AERMC ne fournit pas d'indication de granulométrie ou de teneur en carbone organique particulaire des MES prélevées.

Les chroniques de débits, seuils de crue et dates de prélèvements de MES pour l'analyse des contaminants à ces stations sont représentés sur la Fig. 3.31. Pour la Durance, ne disposant pas du débit aux Mées, la chronique de Bonpas a été utilisée comme indication des périodes de crue. Les prélèvements ont été effectués principalement en régime de base et les crues représentent seulement 0 à 15 % des échantillons collectées aux différentes stations.

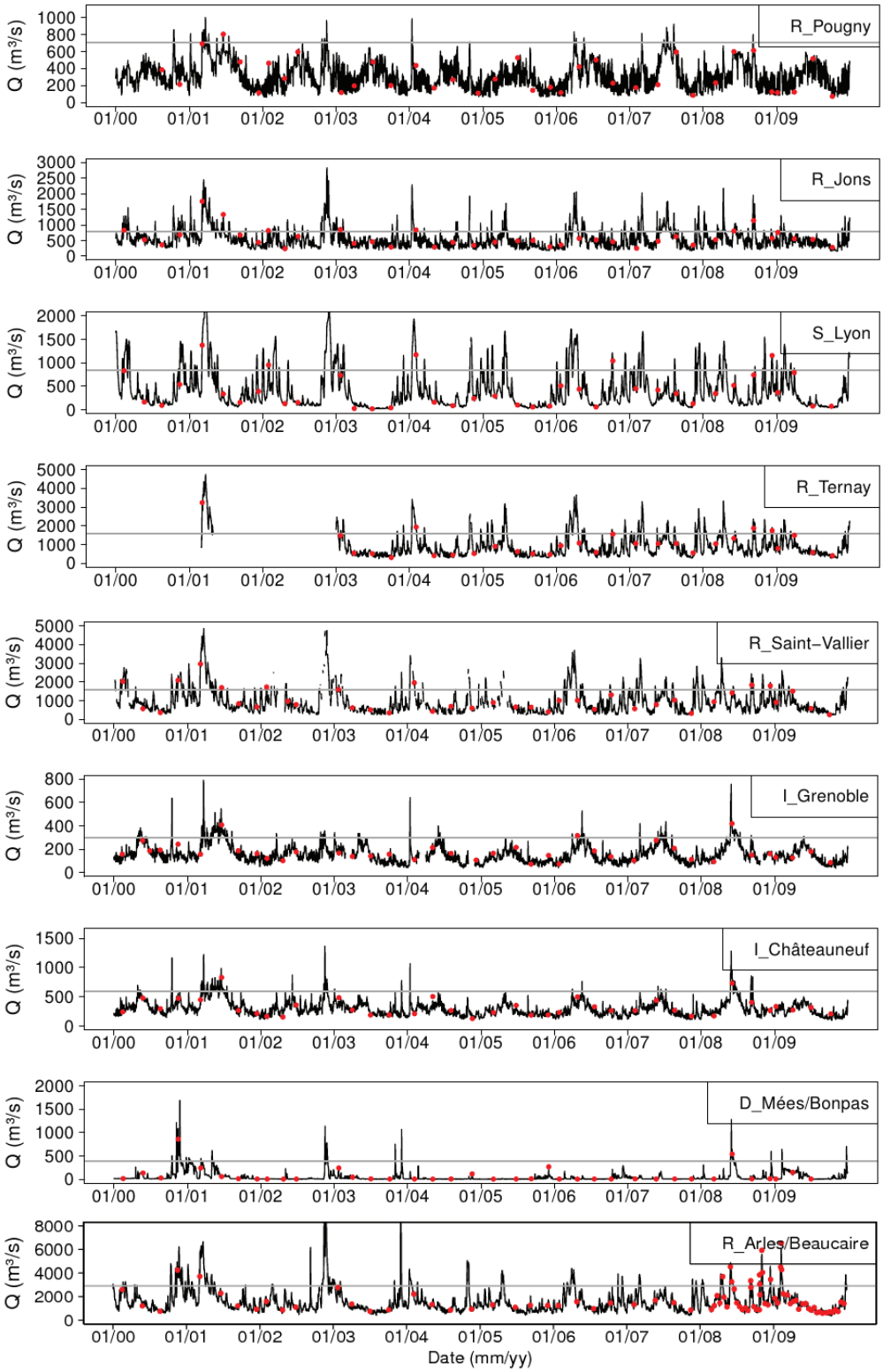


FIGURE 3.31 – Débits et dates de mesures des teneurs en PCB et mercure dans le cadre du suivi Eau et MES de l'AERMC (2000-2009) aux stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay, du Rhône à Saint Vallier, de l'Isère à Grenoble, de l'Isère à Châteauneuf et de la Durance aux Mées (Débit à Bonpas)

Le suivi OSR

Les données de mercure, des 7 PCB indicateurs des MES et de carbone organique particulaire (COP) obtenus à partir des prélèvements sont synthétisées (nombre de données, fréquence de quantification, teneur moyenne et écart-type) en Annexe I pour les trois types de prélèvement utilisés, centrifugation, prélèvement manuel composite et piège à sédiments. Les données pour les stations du Rhône à Pougny, Seyssel et Perrache ont été collectées uniquement pendant la période des chasses de juin 2012.

Les prélèvements ont tous fait l'objet d'analyse granulométrique et d'une identification des sous-populations granulométriques (Cf. §2.4.1).

La période commune de mesure pour le Haut-Rhône et le Rhône aval est de septembre 2011 (début des mesures à la station du Rhône à Juin) à fin décembre 2012. Sur cette période, les prélèvements de MES pour l'analyse teneurs en mercure et PCB à la station de Jons, sur les affluents du Haut-Rhône proches de Lyon (Ain et Bourbre) et sur la Saône ont permis d'échantillonner les crues et les périodes de régime de base (Cf. Fig. 3.32). Seule la crue de novembre 2011 a été suivi sur la Durance. Pour les affluents amonts, les données de teneurs en contaminant sont peut nombreuses et principalement en régime de base.

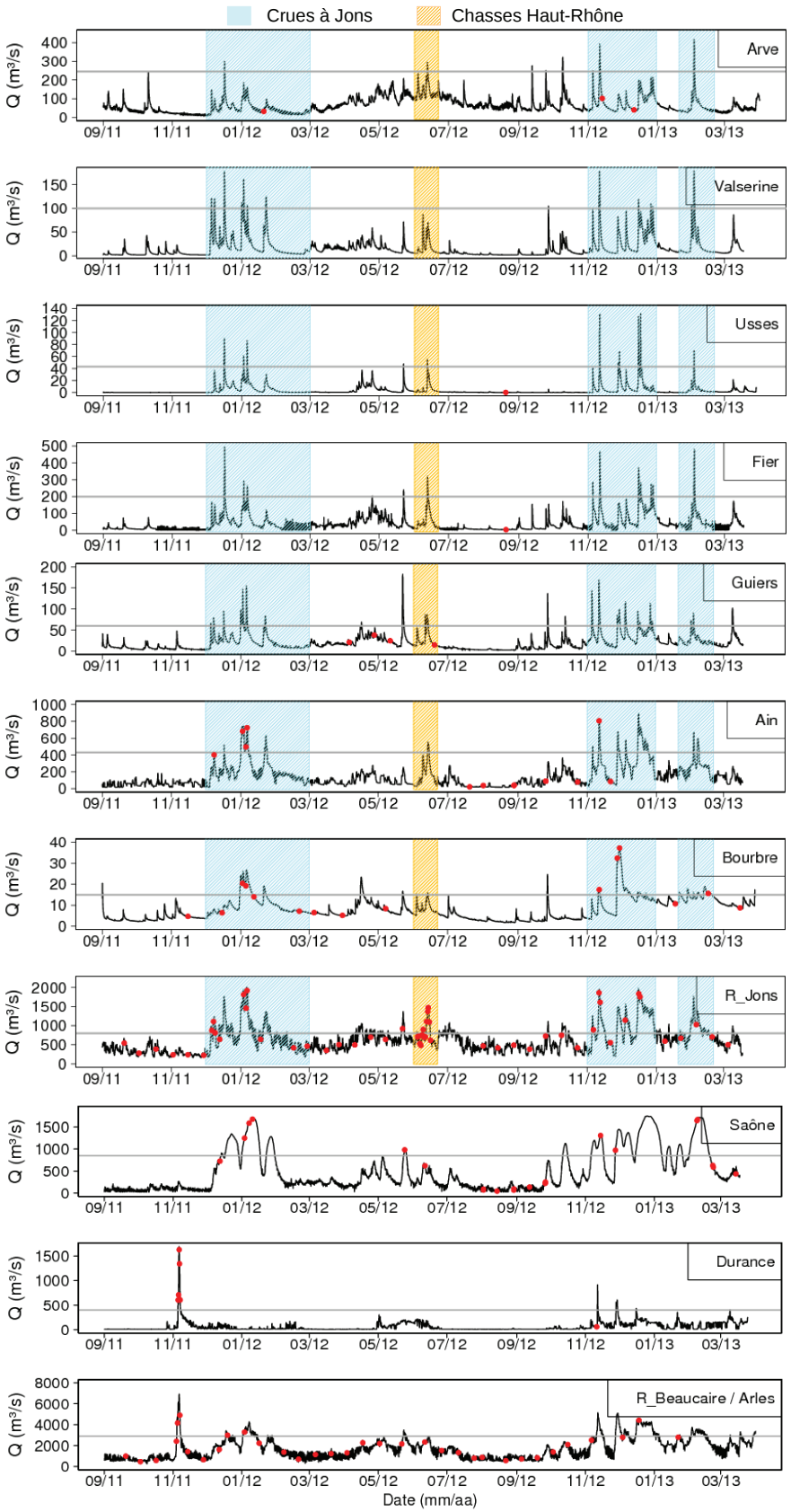


FIGURE 3.32 – Débits et dates de mesures des teneurs en PCB et mercure dans le Rhône et ses affluents par l'OSR entre septembre 2011 et mars 2013. Pour les affluents du Haut-Rhône, les périodes de crue à Jons sont matérialisées en bleu et la période de chasse en orange.

3.5.3.2 Cohérence des données des suivis Agence et OSR

Les stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon et du Rhône à Arles sont communes aux suivis de l'Agence de l'eau RMC et de l'OSR. Les données de mercure et de PCB indicateurs sont collectées dans le cadre des deux réseaux à ces stations sont représentées sur les Fig. 3.33 et 3.35. Le suivi de la Durance n'a pas été effectué à la même station par les deux réseaux mais les données sont également comparées.

L'utilisation d'un test de Mann-Whitney-Wilcoxon indique que pour chaque station, les teneurs en somme des PCBi et en mercure sont en moyenne significativement plus faibles pour les données issues du suivi OSR que pour les données issues du suivi de l'AERMC, à l'exception du mercure mesuré dans la Saône (p = ns) et de la Durance pour laquelle l'écart-type très important des données du suivi AE-RMC rend toute comparaison de moyenne inutile. Des différences de protocoles peuvent être à l'origine de ces écarts de teneurs entre les suivis (Roux, 2011).

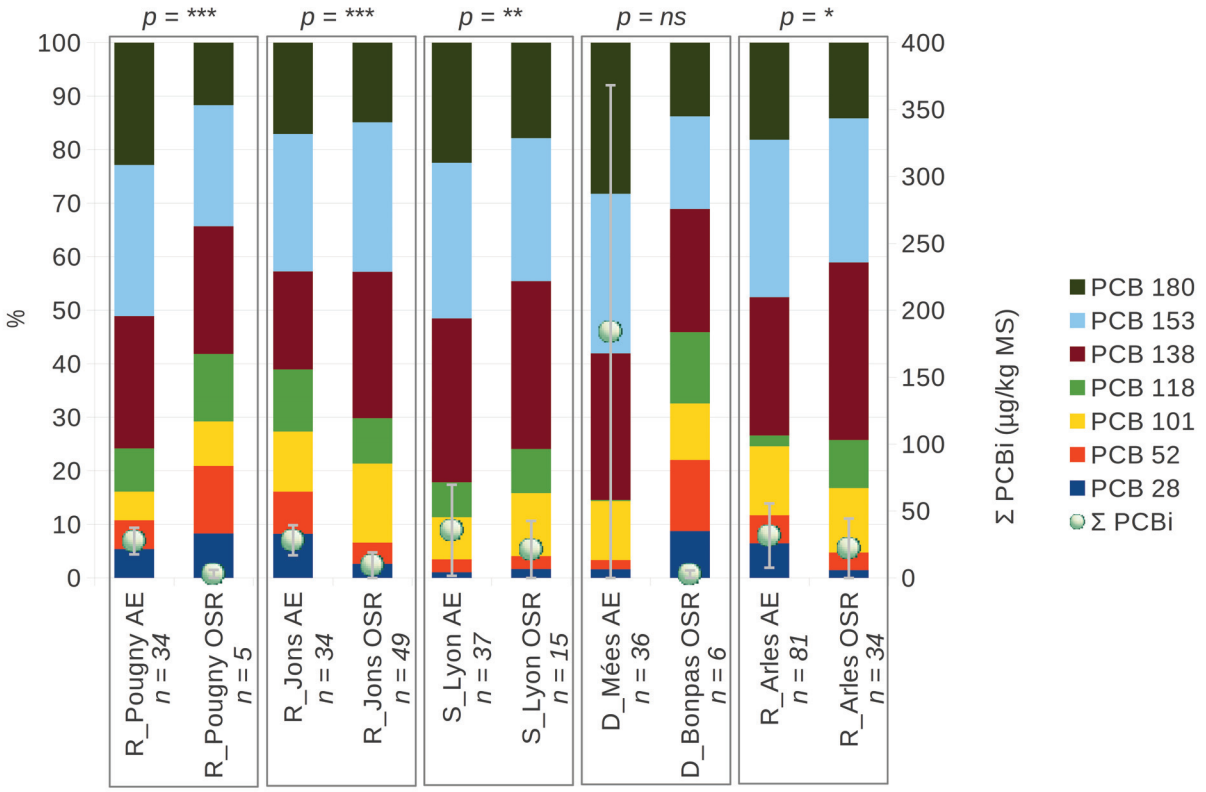


FIGURE 3.33 – Pourcentages des 7 PCB indicateurs et teneurs moyennes (± écart-type) de la somme des PCBi (∑PCBi) des MES prélevées à la centrifugeuse dans le cadre de réseau Eau et MES de l'AE RMC (2000-2009) et du réseau de l'OSR (2011-2012) aux stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, de la Durance aux Mées et du Rhône à Arles.

Pour la somme des 7 PCBi ($\sum$PCBi), la différence entre les données AERMC et OSR est notamment due aux limites de quantification des différents congénères. En effet, lorsqu'un des congénères n'est pas quantifié, la valeur qui lui est attribuée pour effectuer la somme correspond à sa LQ divisée par 2. Sabot (2013) a montré que le choix de la valeur attribuée aux congénères non quantifiés influence considérablement le calcul de la somme des PCBi et la répartition des congénères dans cette somme. Ainsi, pour des échantillons de MES prélevés dans le Rhône à Pougny, les congénères non quantifiés peuvent représenter plus de 40 % de la somme des PCBi, lorsque la valeur de LQ/2 leur est attribuée. Cette proportion augmente quand la $\sum$PCBi est faible. Sabot (2013) indique également que l'écart relatif entre les $\sum$PCBi calculées en utilisant soit la LQ/2 soit une valeur de 0 pour les congénères non quantifiés est lié à la fréquence de quantification (FQ) des congénères, i.e. le rapport entre le nombre de fois où la teneur de la substance est supérieure à la LQ et le nombre d'analyses de cette substance. Plus la FQ est faible, plus les teneurs en $\sum$PCBi sont basses et plus les écarts relatifs entre les sommes calculées sont élevés. Une FQ>60 % pour l'ensemble des congénères est nécessaire pour réduire à 10 % l'écart relatif entre les $\sum$PCBi calculées en utilisant différentes valeurs pour les congénères non quantifiés.

Les limites de quantification (LQ) des analyses de mercure et de PCB effectuées dans le cadre du suivi Eau et MES de l'Agence de l'Eau RMC (AE-RMC) ont évolué au cours du temps (Cf. Fig. 3.34). Ainsi, la LQ pour le mercure était de 0,005 mg/kg MS de 2000 à 2002 et de 0,020 mg/kg MS de 2003 à 2009. Pour les 7 PCB indicateurs, la LQ était de 5,0 μg/kg MS de 2000 à 2002, puis de 10,0 μg/kg MS entre 2003 et 2007 et de 1,0 μg/kg MS en 2008-2009 (Cf. Fig. 3.34). Ces LQ sont plus élevées que les LQ du suivi OSR (LQ = 0,010 mg/kg pour le mercure et LQ = 0,50 à 0,75 μg/kg MS selon les congénères de PCB).

Pour tout le suivi AERMC à l'exception d'Arles, les congénères de PCB présentent des FQ faibles, la plupart inférieures à 50 %, liées à une limite de quantification haute de 10,0 μg/kg MS entre les années 2003 et 2008. Par exemple, le PCB 153 à Jons (Cf. Fig. 3.34) est quantifié une seule fois entre 2003 et 2008, soit une FQ de 5 %, tandis qu'en 2008-2009, suite la diminution de la LQ à 1,0 μg/kg MS, sa fréquence de quantification est de 100 %. Entre 2003 et 2008, la LQ était donc probablement trop importante pour pouvoir analyser le congénère 153 ; la même observation est faite pour les 6 autres congénères dont la FQ augmente après 2008 (OSR, 2013b).

Dans le cas du suivi OSR, les fréquences de quantification des PCB sont en général supérieures à 70 %, à l'exception des congénères les plus légers (PCB 28, 52 et 101), rarement quantifiés. La FQ moyenne pour l'ensemble des congénères est toutefois en générale supérieure aux 60 % nécessaires pour limiter l'influence de la LQ dans le calcul de la $\sum$PCBi, ce qui n'est pas le cas pour les données

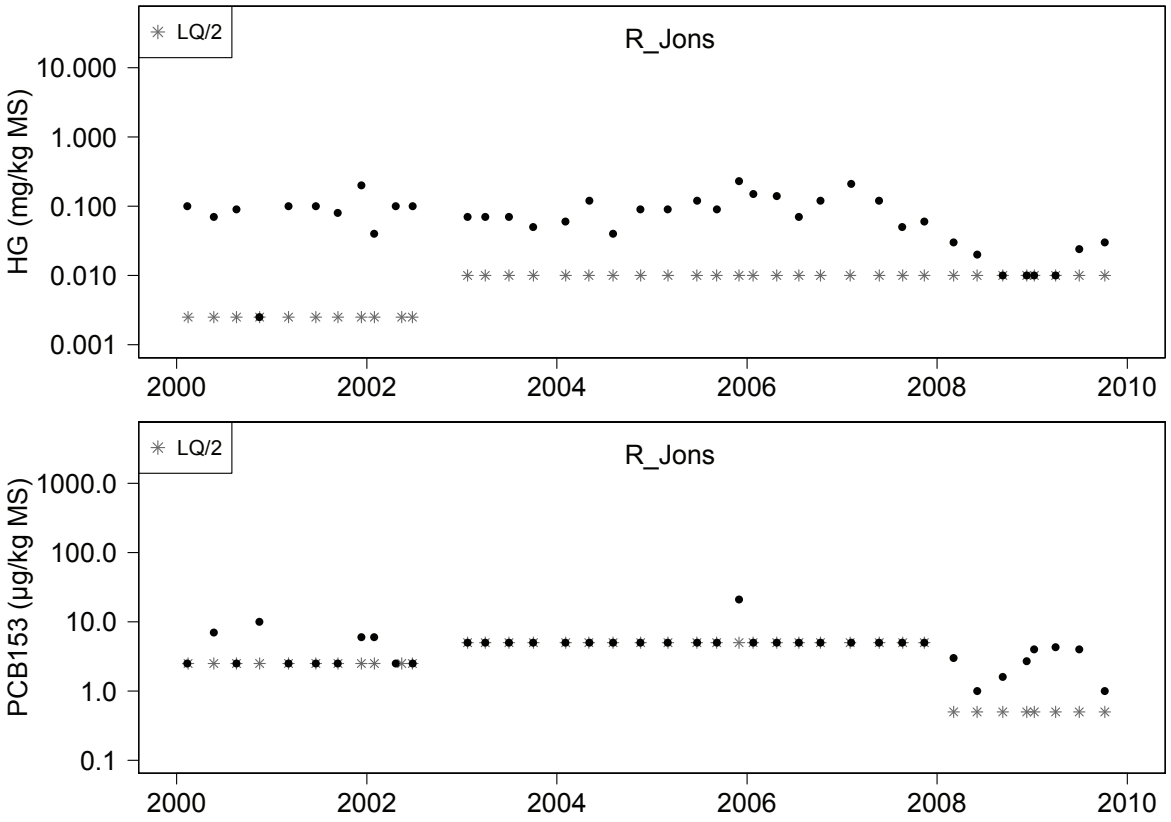


FIGURE 3.34 – Teneurs en mercure et PCB158 des MES échantillonnées dans le cadre du suivi Eau et MES de l'AERMC (2000-2009) à la station du Rhône à Jons. LQ : limite de quantification.

de l'AERMC. Les $\sum$PCBi des deux suivis sont par conséquent difficiles à comparer.

Les profils moyens de PCB aux stations de Jons, de la Saône et d'Arles présentent la même proportion de congénères légers (PCB 28, 52, 101 et 118) et de congénères lourds (PCB 138, 153 et 180) pour les deux suivis. On ne note donc pas de différence notable entre les profils issus des deux suivis à ces stations. En revanche, à la station de Pougny, les PCB 28, 52, 101 et 118 représentent plus de 40 % sur profil OSR tandis qu'ils ne représentent que 25 % du profil AERMC. Nous rappelons que les données OSR à Pougny ont été collectées dans les conditions particulières du suivi de la chasse du Haut-Rhône de juin 2012, tandis que les données AERMC ont été collectées principalement en régime de base, hors période de chasse. Outre les questions de LQ, il est également possible que les différences de profil soient associées aux différences de régime hydrologique.

Pour la Durance, les profils de PCB sont très différents entre le suivi OSR, pour lequel les congénères légers représentent près de 50 % de la $\sum$PCBi, et le suivi AERMC, où ils ne représentent

que 15 % de la $\sum$PCBi. Plusieurs raisons expliquent ces différences. Tout d'abord, les données n'ont pas été collectées à la même station. La station des Mées est située à la confluence avec la Bléone, très en amont du réseau hydrographique (Cf. Fig. 3.16), tandis que la station de Bonpas se situe à l'exutoire du bassin versant, avant la confluence avec le Rhône. Les particules collectées dans le cadre des deux suivis présentent donc probablement des caractéristiques et des origines différentes. Le manque d'informations complémentaires telles que la granulométrie et la teneur en carbone organique des échantillons AERMC ne permet pas de confirmer cette hypothèse et limite l'utilisation des données du réseau Eau et MES. De plus, les données du suivi OSR sur la Durance ont été collectées exclusivement au cours de la crue de novembre 2011, tandis que les données AERMC ont été collectées principalement en période de régime de base. Nous verrons aux Chap. 4 et 5 que la majeure partie des flux de MES de la Durance est produite lors des crues et que les flux de contaminants particulaires sont principalement contrôlés par les flux de MES. Pour l'étude des flux de contaminants particulaires, il nous apparaît par conséquent plus pertinent d'utiliser les données de l'OSR, bien que peu nombreuses, mais qui ont été collectées en crue et à l'aval du bassin versant de la Durance.

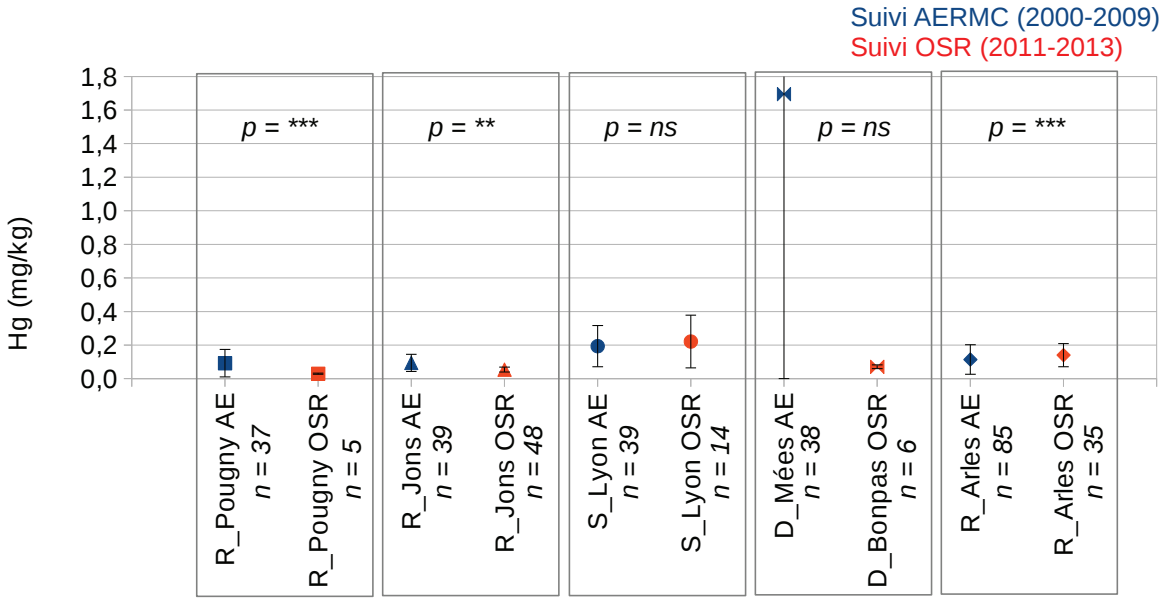


FIGURE 3.35 – Teneurs moyennes en mercure des MES prélevées à la centrifugeuse dans le cadre de réseau Eau et MES de l'AE RMC (2000-2009) et du réseau de l'OSR (2011-2012) aux stations du Rhône à Pougny, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon et du Rhône à Arles. P value du test de Mann-Withney-Wilcoxon

Le mercure a une FQ supérieure à 50 % à toutes les stations étudiées et dans la plupart des cas, elle est de l'ordre de 80 %. La Fig. 3.35 indique qu'aux stations du Rhône à Pougny et Jons

les teneurs en mercure issues du suivi OSR sont significativement plus faibles que celles du suivi AERMC. A Arles, la moyenne du suivi OSR est significativement plus forte que celle de l'AERMC. Pour la Saône, on n'observe pas de différence significative entre les deux suivis. Pour la Durance, on observe une différence très importante de teneur entre les deux suivis et les mêmes raisons que dans le cas des PCB peuvent être invoquées pour expliquer ces différences.

Les problèmes de LQ et de protocoles analytiques soulevés montrent que les données issues des suivis OSR et AE ne sont comparables. Les données du réseau AERMC semblent toutefois montrer que les données de mercure étaient stables entre 2001 et 2007. En revanche, la variabilité des données AERMC n'est pas interprétable pour les PCB.

4 Variabilité spatio-temporelle des flux particulaires

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous avons utilisé les suivis à pas de temps fins des flux de contaminants particulaires (mercure et PCB) effectués aux stations du Rhône à Jons et à Arles, et des flux de MES à la station de l'Arve à Bout-du-Monde pour étudier la variabilité temporelle des différents paramètres du flux particulaire (débit, concentration en MES et teneur en contaminant) en fonction de la station de mesure, du temps et de l'hydrologie.

Nous avons étudié l'influence de l'hydrologie sur les variations de la concentration en MES (C_s) et des teneurs en contaminants particulaires (C_c) en recherchant des relations entre C_s et le débit, et entre C_c et le débit, C_s, la teneur en carbone organique particulaire (COP) et la granulométrie. Cette recherche a pour objectif à la fois d'interpréter les variations mesurées et de les reconstituer lorsqu'elles ne sont pas mesurées, pour permettre le calcul des flux particulaires.

Nous avons alors évalué la représentativité des données dont nous disposons aux autres stations du suivi et pour les années antérieures au suivi OSR, en considérant la variabilité temporelle mesurée aux stations de suivi renforcé (ordre de grandeur et temporalité des variations). Nous pouvons ainsi choisir les méthodes de calcul de flux de MES et de contaminants particulaires en fonction des données disponibles pour chaque station de mesure.

4.2 La variabilité spatio-temporelle du débit, des flux de MES et de la composition des particules

4.2.1 La variabilité du débit

Entre 2001 et 2012, l'enregistrement de débit horaire est disponible pour toutes les stations, à l'exception d'une partie de l'année 2002 à la station de Ternay. Sur cette période, les variations de débit en une même station du Rhône ou de ses affluents couvrent de 2 à 3 ordres de grandeurs pour

les valeurs extrêmes et de 0,5 à 1 ordre de grandeur pour les quantiles à 25 et 75 % (Cf. Fig. 4.1). D'une station à l'autre, les moyennes des débits varient sur 3 ordres de grandeur. Les moyennes (ou modules) calculées à partir des 10 années de mesure, sont en général supérieures aux médianes. En effet, de plus nombreux débits sont inférieurs à la moyenne ; mais celle-ci est augmentée du fait de très fortes valeurs de débit durant les crues.

L'année hydrologique 2011-2012 est moyenne par rapport à la période 2001-2012. Les débits d'eau moyens sont très proches des débits d'eau moyen sur 10 ans. Pour la Durance, c'est au cours de l'année 2011-2012 que les plus forts débits de la période 2001-2012 ont été atteints, lors de la crue de novembre 2011.

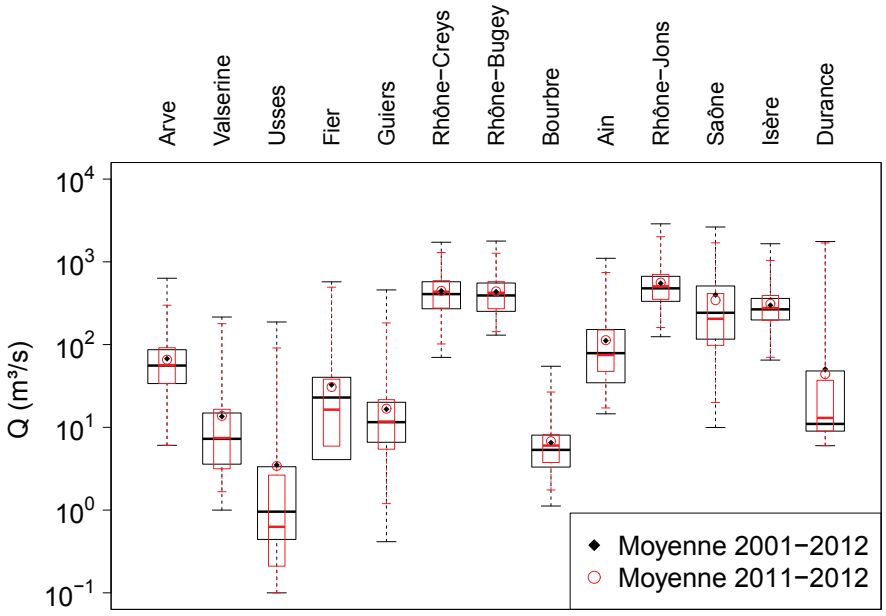
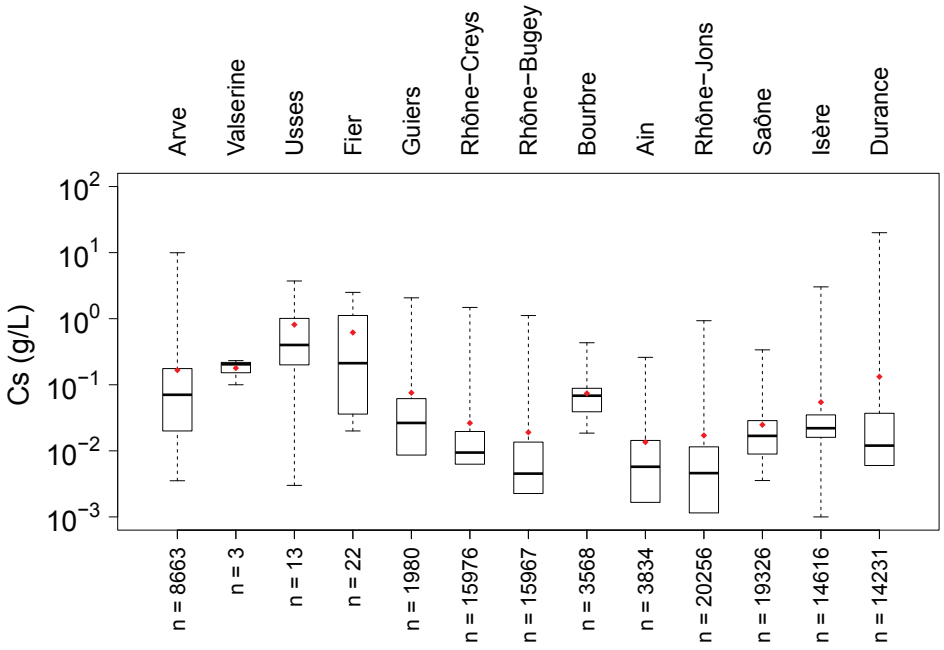


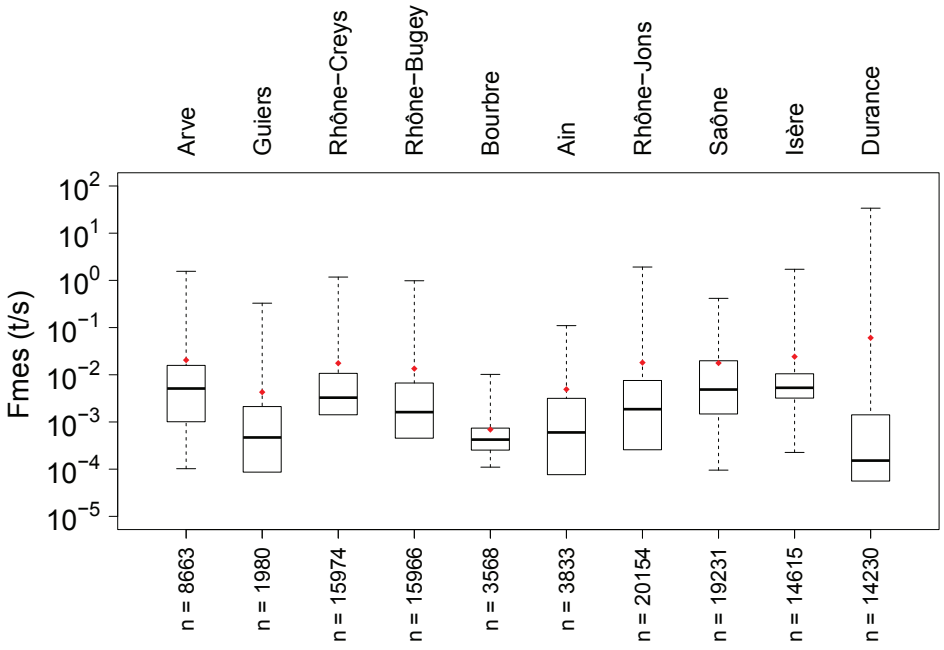
FIGURE 4.1 – Boxplot (quantiles à 25, 75 et 50 % (médiane), les moustaches s'étendent jusqu'aux valeurs maximales et minimales) et moyenne (en rouge) des débits horaires (Q en m^3/s) des affluents du Haut-Rhône, du Rhône à Jons, de la Saône à Lyon, de l'Isère à Beaumont-Monteux et de la Durance à Bonpas sur la période 2001-2012 (noir) et en 2011-2012 (rouge).

4.2.2 La variabilité des concentrations et des flux de MES

Les variations de concentration en MES (C_s) en une même station couvrent de 3 à 4 ordres de grandeur pour les valeurs extrêmes et de 0,5 à 2 ordres de grandeurs pour les quantiles à 25 et 75 % (Cf. Fig. 4.2a). D'une station à l'autre, les moyennes des C_s varient sur 2 ordres de grandeur et sont supérieures aux médianes. Comme pour les débits, les C_s sont la plupart du temps inférieures à la moyenne, qui est cependant augmentée par quelques valeurs très fortes lors des périodes de crue.



(a)



(b)

FIGURE 4.2 – Boxplot (quantiles à 25, 75 et 50 % (médiane), les moustaches indiquent les valeurs extrêmes) et moyenne (en rouge) des n valeurs (a) de concentration de MES (C_s en g/L) disponibles et (b) de flux de MES ($Fmes$ en t/s) mesurés en 2011-2012 sur le Rhône et ses affluents.

Le flux de MES horaire mesuré en une même station varie sur 2 à 6 ordres de grandeur pour les valeurs extrêmes et sur 1 à 2 ordres de grandeurs pour les quantiles à 25 et 75 % (Cf. Fig. 4.2b). D'une station à l'autre, les flux de MES horaires moyens varient sur deux ordres de grandeurs et les flux moyens sont toujours supérieurs aux flux médians.

Les flux de MES mesurés en 2011-2012 sur le Rhône et ses affluents par l'OSR révèlent des dynamiques et des intensités très contrastées (Cf. Fig. 4.3). Lors des périodes de crue de la Durance, le flux moyen horaire mesuré atteint 35 t/s ; tandis que pour l'Isère, l'Arve et le Rhône à Jons, il atteint 1,2 à 1,5 t/s et de 0,14 t/s pour la Saône. Les périodes de crue de la Saône durent entre une semaine et un mois et sont plus longues que sur les autres cours d'eau suivis, dont le Rhône à Jons, l'Arve, l'Isère et la Durance, où elles ne durent que quelques heures à quelques jours. La Saône présente donc une dynamique sédimentaire lente et de faible intensité, tandis que la Durance présente une dynamique nerveuse, avec des crues solides de très forte intensité sur de courtes périodes.

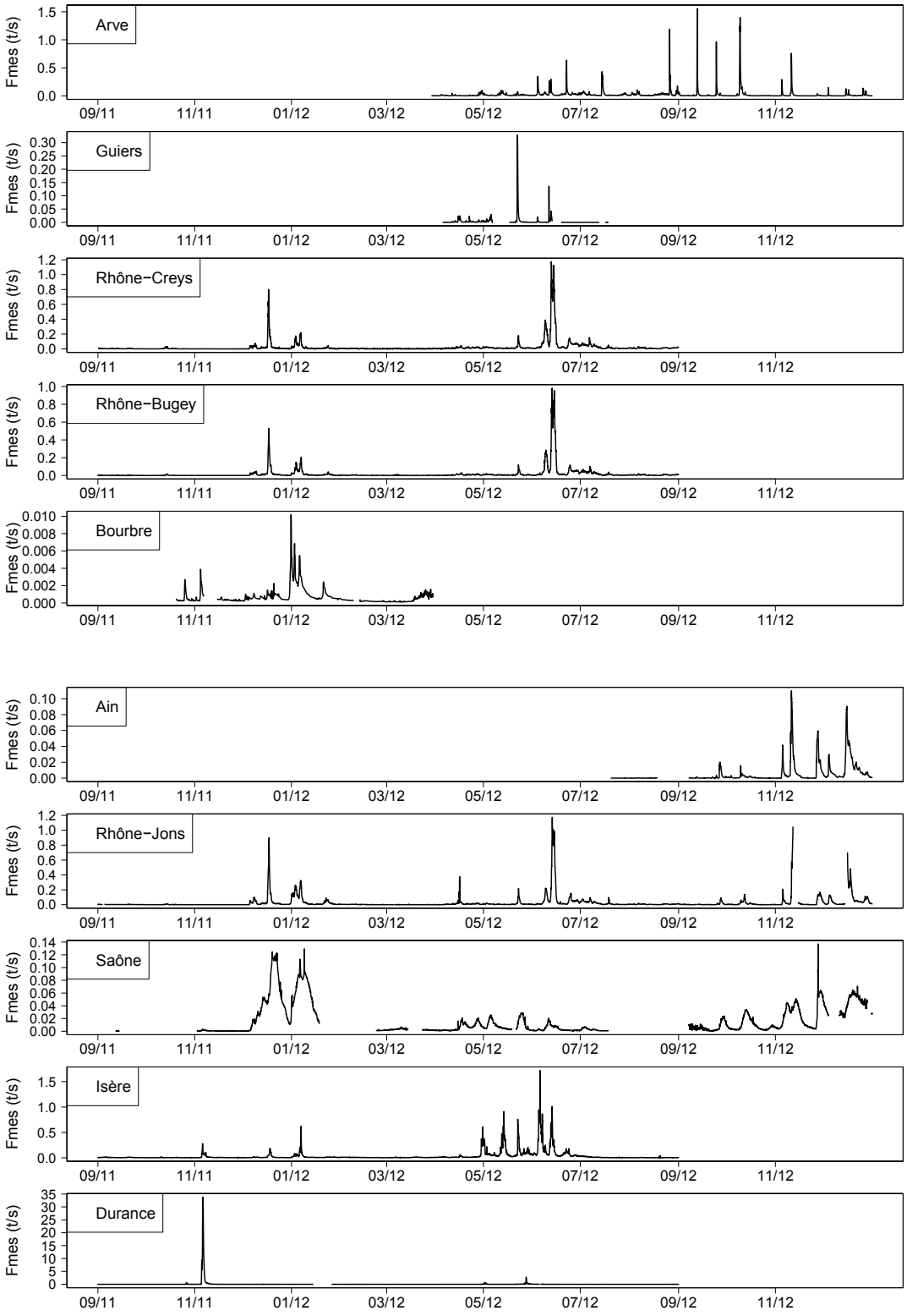


FIGURE 4.3 – Flux de MES (*Fmes* en t/s) mesurés entre septembre 2011 et décembre 2012 aux stations permanentes et temporaires du Rhône et de ses affluents

Cette variété de dynamique sédimentaire est confirmée par le calcul de 4 indicateurs parmi ceux proposés par Meybeck *et al.* (2003) dans le cadre du programme Variflux (Cf. Tab. 4.1) : la concentration moyenne pondérée ($Cs*$), le flux spécifique moyen journalier ($y*$), le pourcentage de temps nécessaire pour transporter la moitié de la masse de sédiment ($Ts50$) et le pourcentage de masse de sédiment transportée en 2% du temps ($Ms2$). Le $Ms2$ et le $Ts50$ ont été définis en représentant le pourcentage du flux de MES en fonction du pourcentage de temps écoulé (Cf. Fig. 4.5). En effet, sur la période de mesure, la Durance présente une concentration moyenne pondérée $Cs*$ et un flux spécifique moyen journalier $y*$ élevés et un $Ts50$ extrêmement court, tandis que la Saône présente des $Cs*$ et $y*$ faible et un $Ts50$ long. Le Rhône à Jons se trouve entre les deux, avec une $Cs*$ faible et un $y*$ moyen.

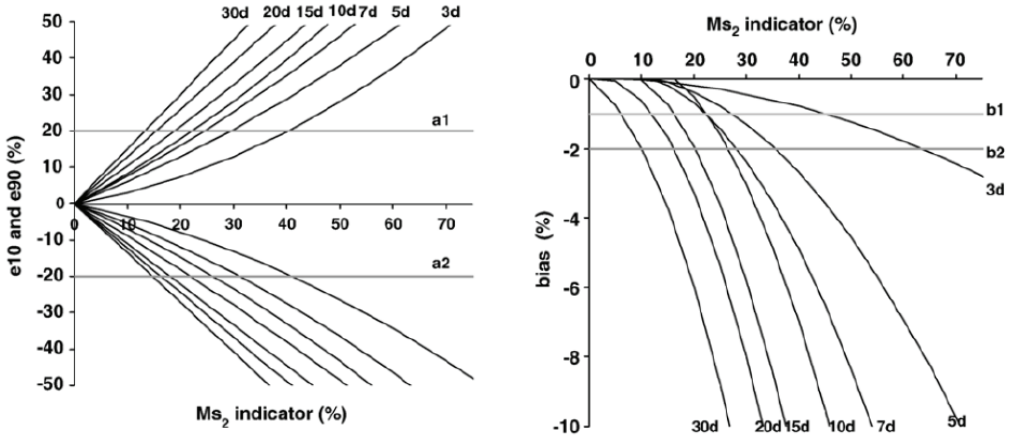
Tableau 4.1 – Valeurs de quelques indicateurs Variflux pour le classement des cours d'eau étudiés, d'après (Meybeck *et al.*, 2003). Cs* : concentration moyenne pondérée ; y* : flux spécifique moyen journalier ; Ts50 : pourcentage de temps nécessaire pour transporter la moitié de la masse de sédiment ; Ms2 : pourcentage de masse de sédiment transportée en la moitié du temps.

	Cs*	y*	Ts50	Ms2
	g/L	kg/km²/j	%	%
Arve	0,261	893	4	37
Guiers	0,178	600	2	49
R_Creys	0,044	98	3	40
R_Bugey	0,034	75	2	45
Bourbre	0,083	84	15	43
Ain	0,028	111	5	13
R_Jons	0,035	76	2	43
Saône	0,037	49	9	14
Isère	0,086	177	3	35
Isère (Mano 2008)	*0,566*	*1502*	*2*	*51*
Durance	1,582	366	0,1	92
Arles	0,100	96		
Arles (Mano 2008)	*0,203*	*404*	*2*	*48*

	Cs* (g/L)	**y* (kg/km²/j)**		**Ts 50%**
Très faible	**0,005 – 0,02**	**< 10**	Très long	**> 16,5**
Faible	**0,02 – 0,1**	**10 – 50**	Long	**16,5 – 8**
Moyen	**0,1 – 0,5**	**50 – 200**	Moyen	**8 – 3,4**
Elevé	**0,5 – 2**	**200 – 1000**	Court	**3,4 – 1,4**
Très élevé	**2 – 10**	**1000 – 5000**	Très court	**1,4 – 0,4**
Extrêmement élevé	**> 10**	**> 5000**	Extrêmement court	**< 0,4**

Les études de Meybeck *et al.* (2003), Moatar et Meybeck (2007) et Mano (2008) présentent des abaques reliant le $Ms2$ au pas de temps d'échantillonnage des concentrations en MES à appliquer à un bassin versant pour réduire le biais et les incertitudes d'estimation du flux de MES (Cf. Fig. 4.4). Les pas de temps d'échantillonnage indiquées sur l'abaque sont au minimum de 3 jours et s'appliquent à un échantillonnage à pas de temps fixe. Pour toutes les stations de mesure des flux présentées dans le Tab. 4.1 à l'exception de la Saône et de l'Ain, les $Ms2$ obtenus sont supérieurs à 40 % et un pas de temps d'échantillonnage de 3 jours est trop important pour réduire les incertitudes d'estimation des flux. Cette conclusion a déjà été proposée par Mano (2008) pour le Ferrand, la Romanche et

l'Isère. Il souligne que ces abaques sont basées sur une évaluation du flux de référence à partir de données de concentration journalières et ne permettent donc pas de prendre en compte la forte variabilité infra-journalière de ces bassins. Ainsi, cette méthode (Moatar et Meybeck, 2007), basée sur un échantillonnage à pas de temps fixe, est inadaptée pour la plupart des cours d'eau que nous étudions.



(a) (b)

FIGURE 4.4 – Abaques des incertitudes sur le calcul des flux annuels de MES à partir de suivis discrets (méthode de la concentration moyenne pondérée par les débits) : (a) déciles inférieurs et supérieurs des erreurs relatives pour différents intervalles de suivis de 3 à 30 jours et (b) biais pour différents intervalles de suivis. a1 et a2 sont les limites de précision imposées à ±20 %, b1 et b2 sont les limites de biais imposées à -1 % et -2 % (d'après Moatar et Meybeck (2007), extrait de Mano (2008).

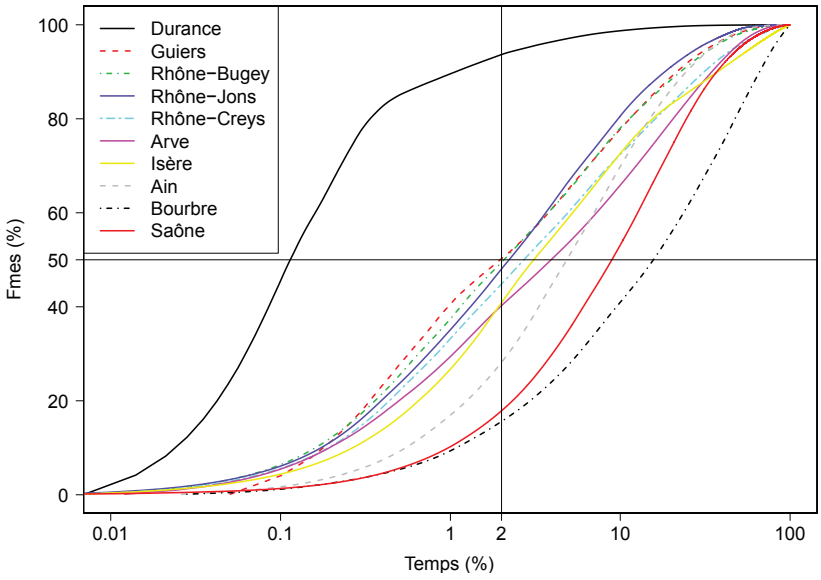


FIGURE 4.5 – Pourcentage du flux de MES en fonction du pourcentage de temps écoulé mesuré sur le Rhône et ses affluents au cours de la période 2011-2012

4.2.3 La variabilité des teneurs en contaminants

Le suivi OSR

Nous présentons ici les données collectées aux stations du Rhône à Jons et à Arles, de l'Arve à Genève, de la Saône à Lyon, de la Durance à Bonpas et des Usses à Pont-Rouge, du Fier à Motz, de l'Ain à Chazey, de la Bourbre à Tignieu, dans le cadre du suivi OSR (Cf. Chap.3). Une étude plus précise des teneurs à Jons est menée au §4.4.1. Les données collectées sur les affluents amont (Arve, Usses, Fier) sont trop peu nombreuses (n = 1 à 3) pour permettre de comparer les niveaux de contamination. Elles sont toutefois utilisées pour le calcul de flux de contaminants, car ce sont les seules dont nous disposons ; leur représentativité est discutée au Chap. 5.

La teneur en mercure varie peu en une même station au cours du temps, particulièrement à Jons où la variation inter-quartile est d'un facteur 1,1 (Cf. Fig. 4.6). Les plus importants écarts entre les quantiles à 25 et 75 %, d'un facteur 1,5 à 2, ont été enregistrés dans la Bourbre, la Saône et le Rhône à Arles. D'une station à l'autre, la teneur moyenne en mercure varie d'un facteur 10, de 0,046± 0,016 mg/kg à 0,221± 0,157 mg/kg, la plus faible teneur moyenne ayant été enregistrée dans l'Arve et la plus forte dans la Saône. La teneur de la Saône est 4 fois plus importante que dans le Rhône à Jons (0,054 ± 0,014 mg/kg). La Sâone présente une valeur extrême à 0,744 mg/kg le 24/05/2012 qui n'est pas représentée sur le graphique et qui augmente la moyenne. En excluant ce point, la moyenne des teneurs en mercure de la Saône est de 0,180 mg/kg (± 0,047 mg/kg), ce qui reste la plus forte teneur moyenne enregistrée pour les 9 stations (Cf. Fig. 4.6) ; environ 3,4 fois plus élevée que dans le Rhône à Jons. Les teneurs moyennes en mercure dans la Bourbre et dans le Rhône à Arles sont également plus élevées qu'à Jons (environ 2,6 fois) avec des teneurs moyennes de 0,119±0,049 mg/kg et 0,140±0,068 mg/kg respectivement. Les teneurs dans les autres affluents amonts et la Durance sont plus faibles (de 0,046 à 0,143 mg/kg), mais trop peu de données sont disponibles à date pour conclure sur les niveaux de contamination de ces cours d'eau.

Au sein d'une même station, les sommes des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) varient jusqu'à un facteur 5 pour les valeurs extrêmes (Cf. Fig. 4.6). Les plus fortes variations ont été enregistrées aux stations de la Bourbre, de la Saône et d'Arles. D'une station à l'autre, la $\sum$PCBi moyenne varie d'un facteur 20, de 2,9±0,7 μg/kg à 44,7±16,9 μg/kg (en excluant le Fier avec une seule valeur), la plus faible teneur moyenne ayant été enregistrée dans la Durance et la plus forte dans la Bourbre. La $\sum$PCBi moyenne de la Bourbre est 4,7 plus importante que celle du Rhône à Jons (9,6±4,7 μg/kg) ; la $\sum$PCBi moyenne de la Saône à Lyon (21,3±15,5 μg/kg) et du Rhône à Arles (22,2±10,0 μg/kg) est 2,3 fois plus importante que dans le Rhône à Jons.

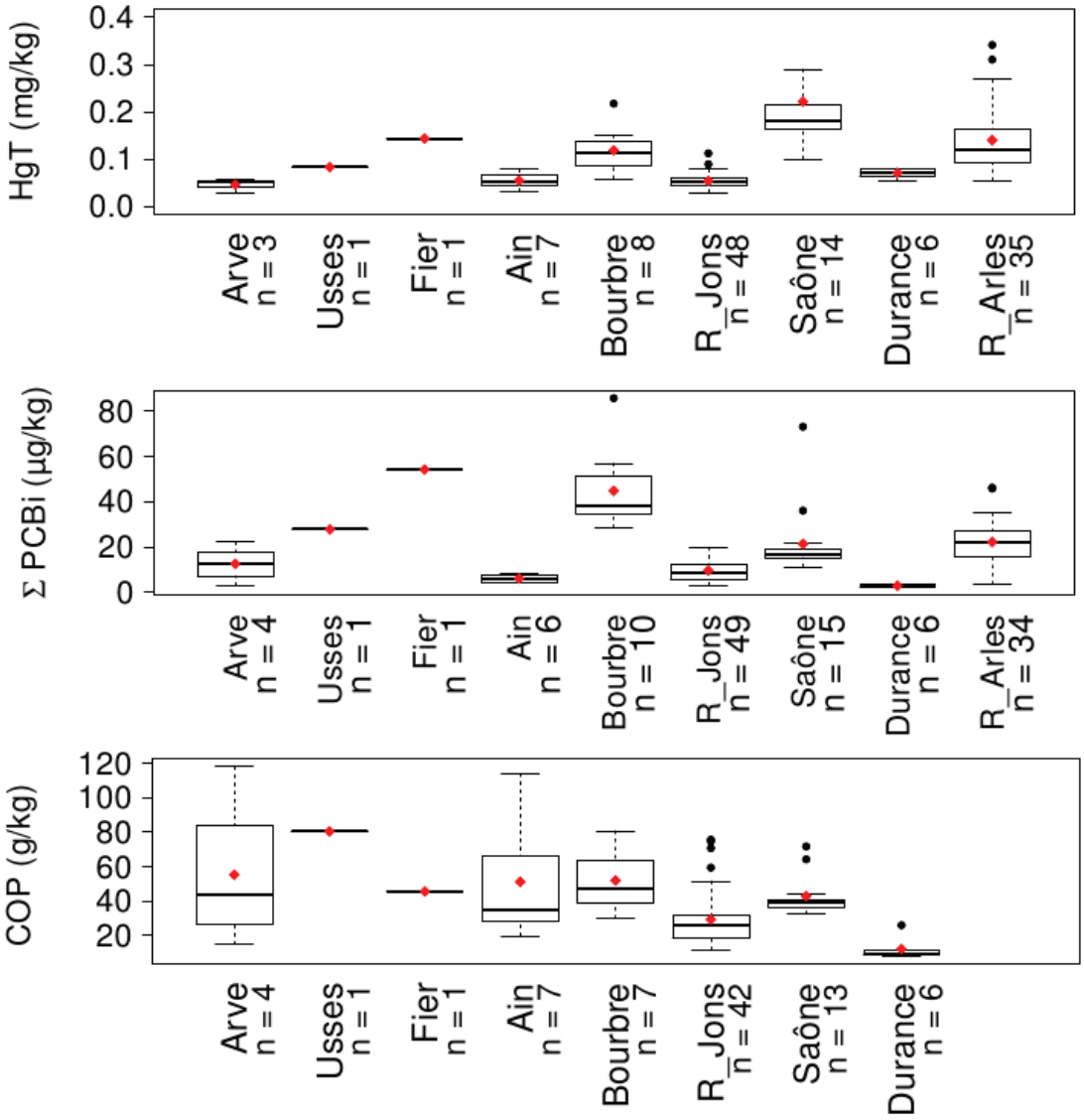


FIGURE 4.6 – Teneurs en mercure (HgT), somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) et carbone organique particulaire (COP) mesurées aux 9 stations du suivi OSR.

Les analyses de teneurs en COP ne sont pas encore disponibles pour tous les échantillons de MES, notamment pour Arles. Les variations des teneurs en COP peuvent être importantes au sein d'une même station et d'une station à l'autre, elles atteignent un facteur 4.

Les profils de PCB varient selon les stations étudiées (Cf. Fig. 4.7). La Durance et la Bourbre présentent une proportion de congénères légers (PCB 28, 52 101 et 118) de l'ordre de 50 %, ce qui est supérieur aux profils des autres stations (de 10 à 35 %). Pour les stations de l'Ain, de la Saône et du Rhône à Arles et Jons, ce sont les PCB lourds (PCB 138, 153 et 180) qui prédominent, représentant plus de 70 % des profils. Les différences de profils peuvent être liées à des sources de contamination différentes. Cette question est approfondie au Chap. 5.

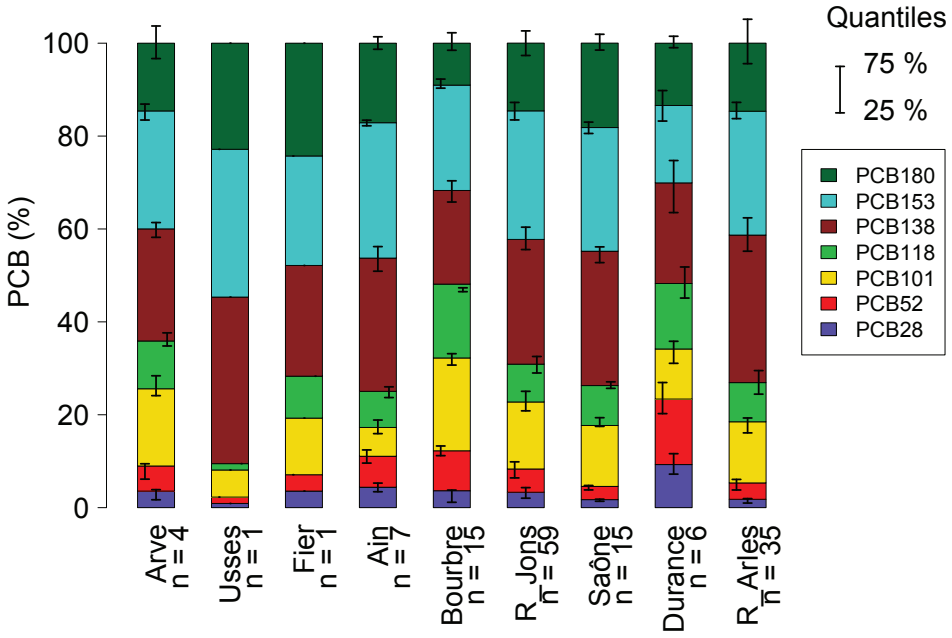


FIGURE 4.7 – Proportion moyenne des 7 PCB indicateurs dans la somme ($\sum$PCBi) des MES prélevées aux 9 stations du suivi OSR.

L'évolution temporelle des profils de PCBi aux stations de la Bourbre, de l'Ain, du Rhône à Jons, de la Saône et du Rhône à Arles (Fig. 4.8) indique que les profils varient très peu au sein d'une même station.

Par ailleurs, la granulométrie des échantillons ne présente pas de différence entre les stations pour lesquelles une analyse granulométrique a été menée (Cf. Fig. 4.9). Les modes et écart-types (σ) des sous-populations granulométriques varient très peu. La fraction grossière (80-2500 μm), supposée non porteuse de contamination, est absente de tous les échantillons, à l'exception de la Bourbre (2 %). Pour l'Ain, le Rhône à Jons et la Saône, les proportions (λ) des sous-populations granulométriques ne varient pas entre les stations ; les sous-populations 1-10 et 10-27 μm représentent environ 95 % des échantillons. Pour la Bourbre, ces deux sous-populations représentent environ 75 % des échantillons.

On observe une diminution d'un facteur 1,4 des teneurs en mercure en crue par rapport au régime de base dans la Saône, si on ne considère pas la valeur extrême à 0,744 mg/kg (Cf. Fig. 4.10). En revanche, dans la Bourbre, les teneurs en mercure sont multipliées par 2 en crue par rapport au régime de base. Pour les autres stations, la différence de teneur en mercure entre le régime de base et les crues n'est pas significative.

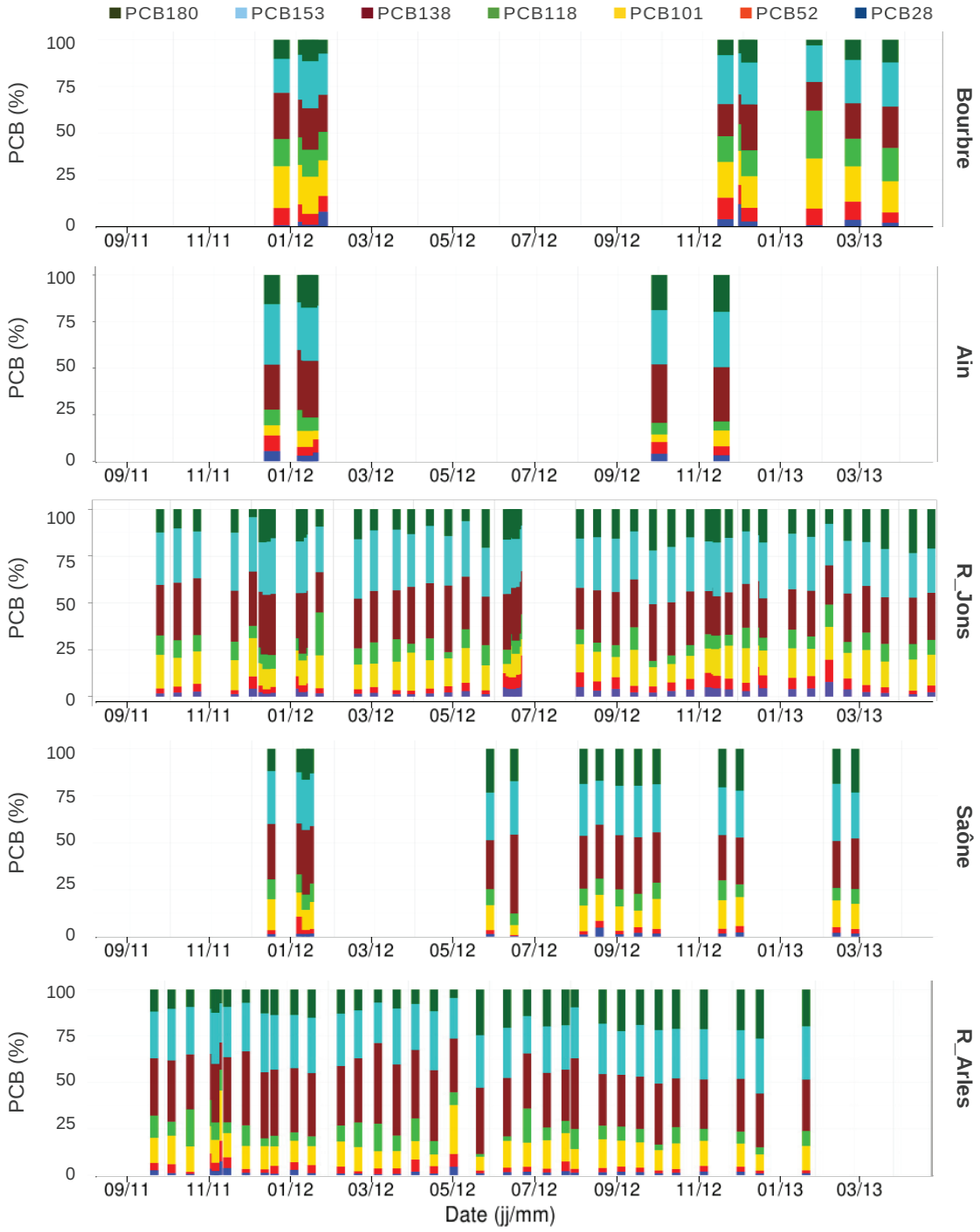


FIGURE 4.8 – Evolution temporelle de la proportion moyenne des 7 PCB indicateurs dans la somme ($\sum$PCBi) des MES prélevées aux 2 stations principales et sur 3 affluents (Bourbre, Ain et Saône) du suivi OSR.

Les différences de $\sum$PCBi entre le régime de base et les crues ne sont pas significatives, à cause d'une variabilité importante des teneurs. les teneurs moyennes dans le Rhône à Jons et dans la Saône sont toutefois plus importantes en crue qu'en régime de base, d'un facteur 1,3.

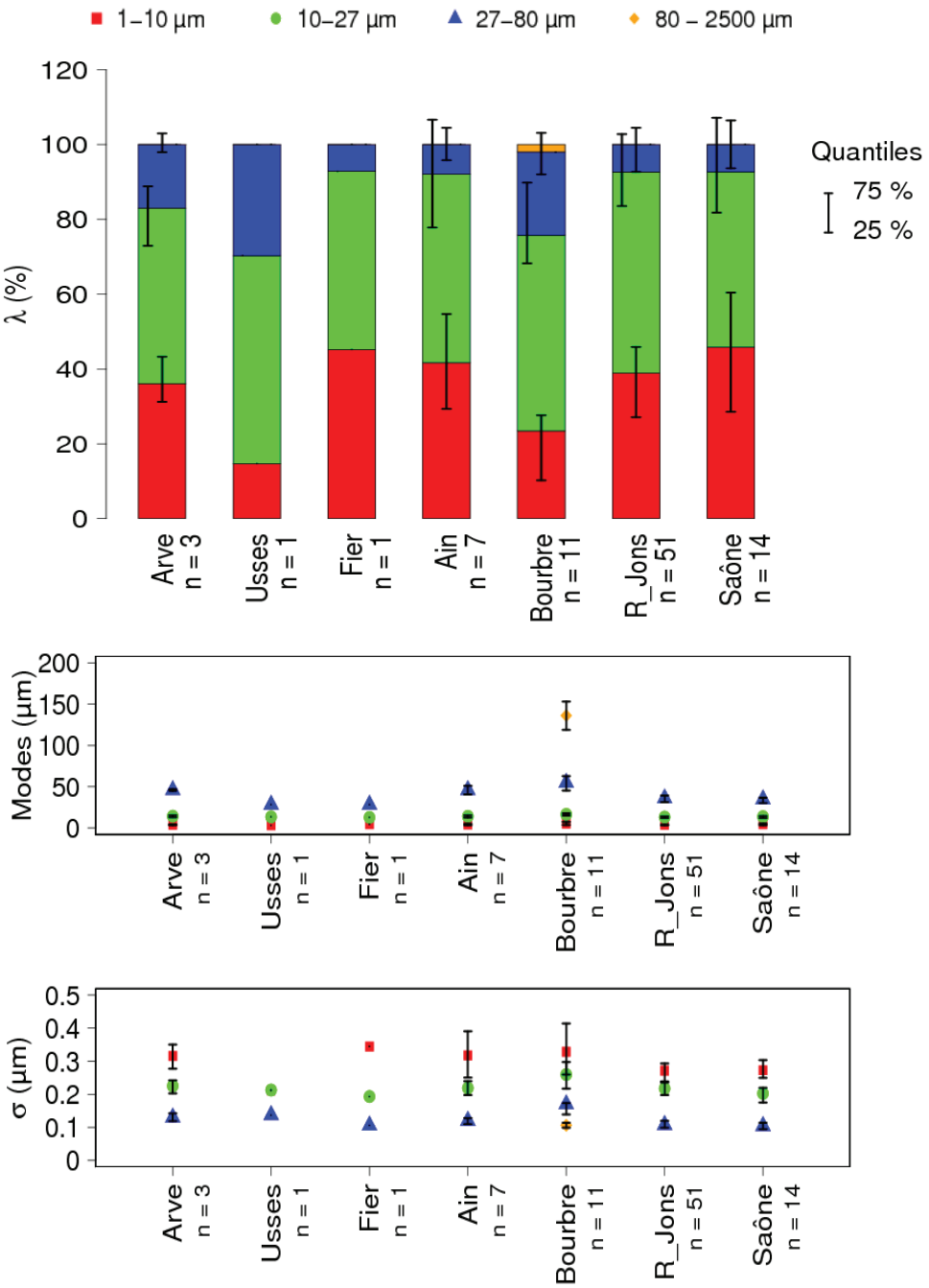


FIGURE 4.9 – Analyse granulométrique volumique et identification des sous-populations (proportions λ, Modes μ et écart-types σ, cf. §2.4.1) des MES prélevées aux stations du suivi OSR

La normalisation des teneurs en mercure par la teneur en carbone organique particulaire (Cf. Fig. 4.10) permet d'atténuer la différence entre régime de base et crue de la Bourbre, mais augmente la différence dans le cas de l'Ain. Pour la Saône et le Rhône à Jons, la normalisation des teneurs en mercure et en $\sum$PCBi par le COP accroît la dispersion des valeurs par rapport aux teneurs non normalisées ; ce n'est pas le cas pour la Bourbre. Cette dispersion des teneurs normalisées pour la Saône et du Rhône à Jons peut être expliquée par la grande taille des bassins versants qui drainent ces

stations, permettant des origines multiples de particules présentant des caractéristiques différentes. Les origines de particules sont moins variées sur un bassin versant de petite taille comme la Bourbre.

Les teneurs en COP ne permettent pas d'expliquer la variabilité observée des teneurs en mercure et ∑PCBi entre les affluents. En effet, même après normalisation par le COP, les teneurs en mercure et en ∑PCBi restent significativement différentes.

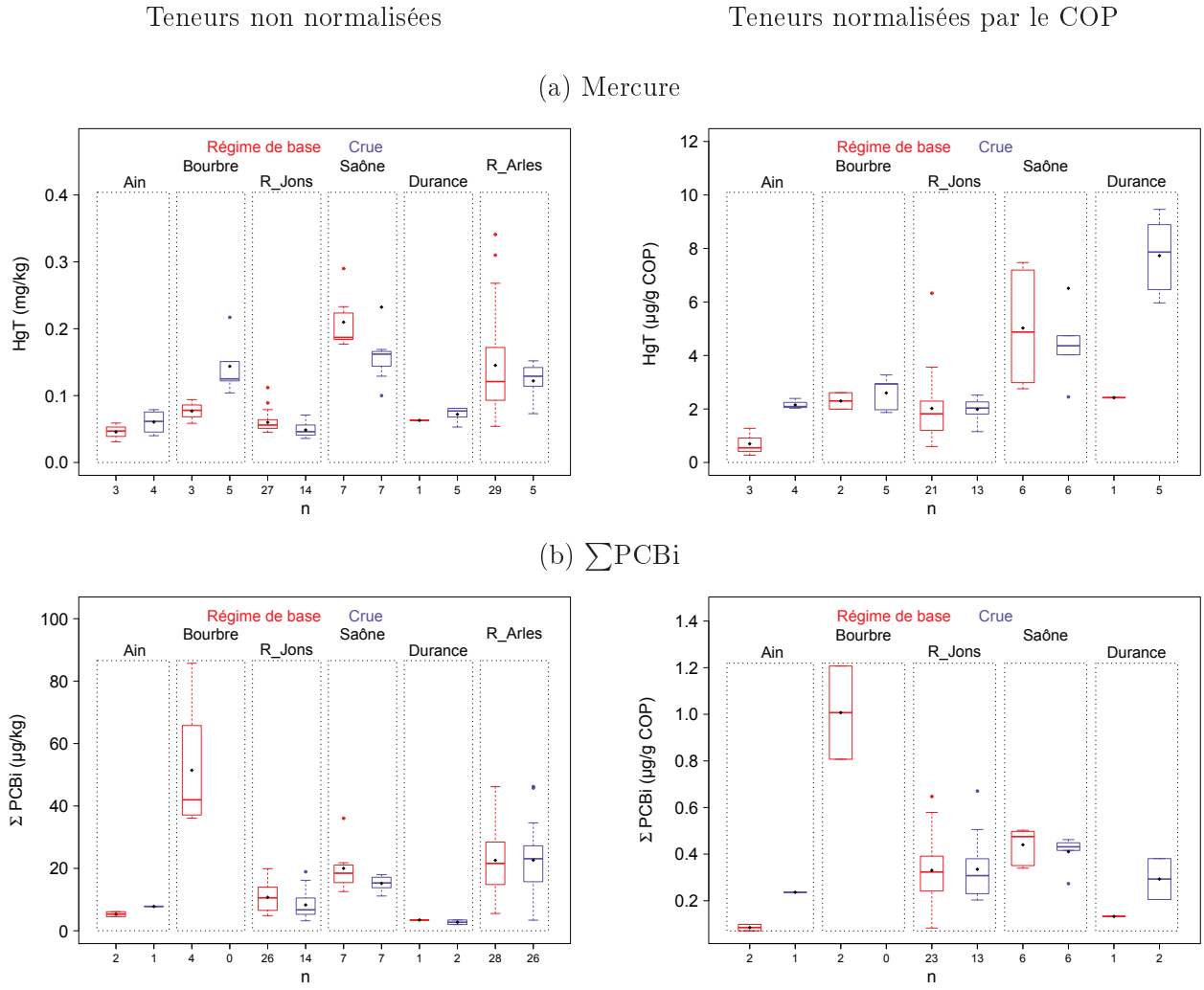


FIGURE 4.10 – (a) Teneurs en mercure (HgT) et (b) sommes des 7 PCB indicateurs (∑PCBi) non normalisées et normalisées par la teneur en carbone organique particulaire (COP) aux 9 stations du suivi OSR en régime de base et en crue. n : nombre de données

Le suivi AERMC

Au Chap. 3, nous avons montré que les teneurs en PCB issues du réseau de l'AERMC et de l'OSR ne peuvent pas être comparées pour des questions de protocoles analytiques (LQ trop élevées

pour le suivi AERMC). Nous avons également constaté que les teneurs en mercure du suivi AERMC étaient significativement différentes des données OSR et que des différences de méthode analytique sont probablement la cause de ces écarts. Les données issues des deux réseaux ne sont donc pas comparables. Néanmoins, les données de mercure du suivi AERMC permettent de faire l'hypothèse de la faible variabilité temporelle des teneurs en mercure sur la période 2000-2007 pour les différentes stations étudiées (Cf. §3.5.3.2 et rapport OSR (2013b). Enfin, trop peu de données ont été prélevées en crue entre 2000 et 2007 (de 1 à 6 échantillons selon les stations) pour établir des différences de teneurs entre les régimes hydrologiques (Cf. rapport OSR (2013b)).

4.3 Reconstitution de la variabilité temporelle des flux de MES

4.3.1 Etude de cas : l'Arve à Genève Bout-du-Monde

4.3.1.1 Intérêt et objectif

Le suivi discret sur une longue durée et l'installation récente de la station de suivi des flux de MES en continu font de l'Arve un cas d'étude intéressant pour tester les différentes méthodes de calcul de flux qui ont été présentées dans le Chap. 1. L'objectif est d'établir quelle méthode est la plus adaptée au calcul de flux annuel de particules fines en suspension à partir de données issues d'un suivi discret, afin de l'appliquer aux autres affluents du Haut-Rhône.

Les concentrations en MES (C_s) de l'Arve à la station Genève Bout-du-Monde (Fig. 3.2) ont été mesurées en moyenne tous les 5 jours vers 7h du matin (TU) entre 1965 et 2003. Depuis le 22/03/2012, une station de mesure turbidimétrique a été installée (Cf. §3.3.1) et fournit une valeur moyenne de C_s toutes les heures. Le flux d'eau de l'Arve à Genève Bout-du-Monde pour l'année hydrologique 2012-2013 est de $2{,}43.10^9$ m^3 (Cf. Tab. 5.3.1.1). Les périodes de fonte et de pluie contribuent à ce flux d'eau à part à peu près égale, avec un flux de fonte légèrement supérieur au flux de pluie (56 % contre 44 %). Les flux de MES de référence (F1) pour l'année 2012-2013 et pour les périodes de fonte et de pluie ont été établis en multipliant les C_s horaires par les débits horaires et en sommant ces flux horaires sur la période voulue. Pour les 12 mois de mesure de la station turbidimétrique, F1 est de 0,64 Mt. La contribution des périodes de pluie et de fonte au flux de MES de l'année 2012-2013 est équivalente à leur contribution en eau, soit 56 % pour la fonte et 44 % pour la pluie. Bien qu'ayant des fonctionnements sédimentaires très différents, les deux périodes de l'année produisent donc une part à peu près équivalente de flux solides pour l'année hydrologique 2012-2013.

Pour le calcul des flux pour les années antérieures à 2012-2013, les données disponibles sont (Cf. Chap. 3) :

– 1890 : une valeur de débit et une valeur de C_s tous les jours à 13h.

Tableau 4.2 – Flux d'eau et flux de MES de référence (F1) pour la période de fonte, la période de pluie et l'année hydrologique entière 2012-2013 pour l'Arve à Genève Bout-du-Monde

Période	Flux d'eau		Flux de MES de référence *F1*	
	10^9 m^3	%	Mt	%
Fonte	1,37	56	0,36	56
Pluie	1,05	44	0,28	44
Année 2012-2013	2,43	100	0,64	100

– 1965-1973 : les débits journaliers et une valeur de C_s environ tous les 5 jours à 7h.

– 1974-2003 : les débits horaires et une valeur de C_s environ tous les 5 jours à 7h.

Notre objectif est de calculer le flux de MES annuel de l'Arve pour ces différentes années de mesure. Nous avons détaillés 12 méthodes de calcul de flux de MES à partir de suivi discret de C_s (Cf. §1.3) et nous souhaitons déterminer quelle méthode est la plus appropriée pour calculer le flux de MES de l'Arve à partir des données disponibles. Quelle que soit la méthode de calcul de flux choisie, le résultat dépend de la qualité du jeu de données de MES et de débit utilisé, et notamment de la représentativité temporelle des données qui le constituent. Dans le cas de l'Arve, pour évaluer la représentativité des jeux de données disponibles, on a regardé :

– l'effet de l'heure fixe d'échantillonnage : 13h ou 7h ;

– l'effet de la fréquence d'échantillonnage : seulement une fois tous les 5 jours ou une fois par jour.

4.3.1.2 Effet de l'échantillonnage sur le flux de MES

Échantillonnage temporel discret : impact de l'horaire de mesure

A partir des chroniques moyennes horaires de débit (1974-2013) et de C_s (2012-2013), on peut évaluer le biais engendré par un prélèvement à 7h ou à 13h sur ces deux paramètres. Pour chaque jour, on calcule l'écart entre le débit mesuré à chaque heure et le débit moyen du jour. Le même travail est fait à partir des C_s. Puis les statistiques de ces écarts sont établies pour les débits et C_s en séparant les périodes de fonte et les périodes de pluie (Cf. Fig. 4.11).

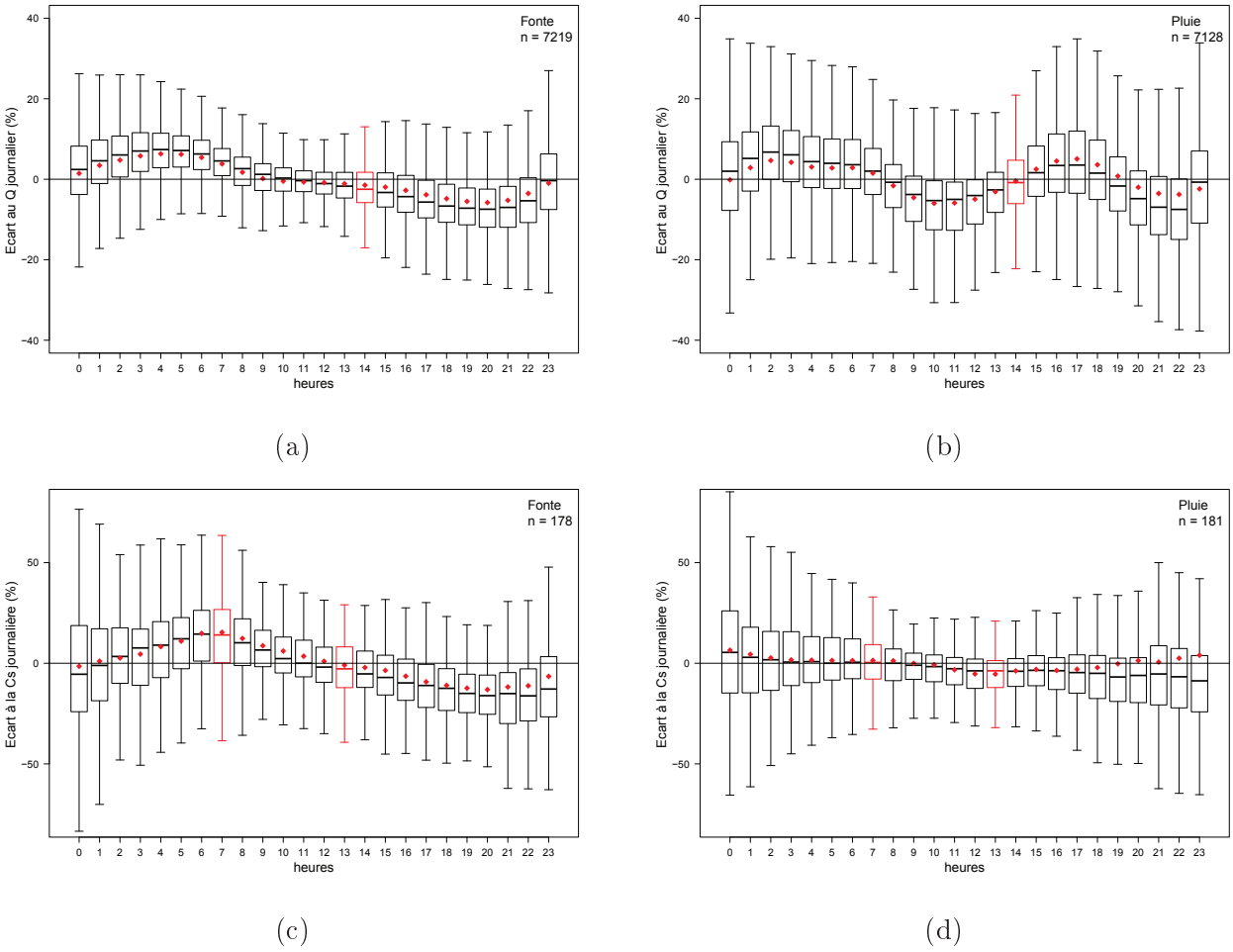


FIGURE 4.11 – Médianes, quantiles 25 et 75 %, moustaches (noir) et moyennes (losanges rouges) des écarts de la moyenne horaire à la moyenne journalière (a) du débit (Q) pour les n jours des périodes de fonte de 1974-2013 ; (b) de Q pour les n jours des périodes de pluie de 1974-2013 ; (c) de la concentration en MES (C_s) pour les n jours de la période de fonte de 2012-2013 ;(d) de C_s pour les n jours de la période de pluie de 2012-2013 .

En période de fonte (Fig. 4.11.a et Fig. 4.11.c), les écarts moyens à la moyenne des débits et des C_s montrent un cycle de variation journalier avec des valeurs élevées le matin et basses l'après-midi. En période de pluie (Fig. 4.11.b et Fig. 4.11.d), en revanche, les écarts sont plus dispersés qu'en période de fonte et il ne se dégage pas de tendance cyclique nette. La grande dispersion des écarts est due au caractère aléatoire de l'occurrence de crues à l'heure de la prise d'échantillon. Les débits et C_s à 13h, en période de fonte sont en moyenne équivalents aux valeurs journalières. En période de pluie, les débits et C_s à 13h sous-estiment légèrement les valeurs journalières (-3 % pour le débit et -5 % pour C_s). Pour le suivi de 1890, à 13h, le biais sur les C_s et les débits est donc négligeable, et les données collectées sont représentatives des données moyennes journalières.

La C_s et le débit mesurés à 7h en période de fonte surestiment la moyenne journalière (+22 % pour C_s et +3 % pour le débit). Le suivi OFEV, entre 1964 et 2003, avec des prélèvements effectués à

7h, fournit donc plutôt des valeurs de C_s supérieures aux valeurs journalières moyennes en périodes de fonte.

Impact de l'échantillonnage journalier pour l'année 1890

Le flux de MES de l'année 1890 calculé par Baëff (1891), sans le mois d'octobre qui n'a pas été mesuré, est de 0,61 Mt de MES. Lugeon (1912) complète ce résultat en estimant à 0,06 Mt le flux de MES pour le mois d'octobre 1890, d'où un total de de 0,67 Mt pour l'année 1890. En se basant sur une étude des données pluviométriques enregistrées par l'Observatoire de Genève, il conclut que « l'année 1890 représente une période de charriage un peu au-dessous de la moyenne ». Il propose donc de retenir 0,70 Mt comme valeur moyenne annuelle de flux de MES. Collet *et al.* (1916), après correction des débits, obtient un flux de MES pour les 11 mois de mesure de Baëff (1891) de 0,65 Mt. En ajoutant à cette valeur le flux d'octobre proposé par Lugeon (1912), on obtient un flux de MES de 0,71 Mt pour l'année 1890, au lieu de 0,67 Mt (on note que la « large sous-estimation » des débits suggérée par Collet *et al.* (1916) ne s'élevait finalement qu'à -6 %).

A partir du jeu de données de l'année 2012-2013, nous avons calculé le flux de MES en mimant le suivi effectué par Baëff (1891) en 1980 (nous avons utilisé seulement les données moyennes horaires de C_s et de débit mesuré à 13h, en les considérant comme des valeurs moyennes journalières). Ce flux de MES présente un écart de -5 % par rapport au flux de référence $F1$. Il est surestimé pendant la période de fonte (+17 %) et sous-estimé pendant la période de pluie (-14 %). La sous-estimation liée au protocole d'échantillonnage temporel effectué par Baëff (1891) est par conséquent négligeable. Pour l'année 1890, une fois les débits corrigés, on retient donc un flux de MES de 0,70 à 0,75 Mt.

Impact de l'échantillonnage tous les 5 jours et choix de la meilleure méthode de calcul de flux

La chronique continue de l'année hydrologique 2012-2013 a été sous-échantillonnée de façon à reproduire la fréquence de prélèvement du suivi OFEV : un prélèvement tous les 5 jours à 7h (TU) du matin. En respectant cette règle, 5 sous-échantillons ont été constitués, commençant chacun à une date différente. Les différentes méthodes de calcul de flux présentées dans le §1.3 ont alors été appliquées aux 5 jeux de données sous-échantillonnées pour l'année 2012-2013 et les flux de MES ainsi calculés ont été comparés au flux de MES de référence F1 (Cf. Tab. 5.3.1.1).

Les méthodes M1 à M7 sont des méthodes par interpolation à l'aide de moyennes et les méthodes M8 à M12 sont des méthodes fondées sur des relations entre le débit et C_s. Les écarts relatifs des flux obtenus pour chaque méthode au flux de référence F1 sont représentés sur la Figure 4.12.

Pour chaque méthode, les résultats obtenus à partir des 5 sous-échantillons sont présentés. Deux indicateurs sont utilisés pour comparer les résultats des différentes méthodes de calcul. D'une part, la moyenne des écarts relatifs obtenus pour les 5 sous-échantillons renseigne sur la justesse de la méthode, c'est-à-dire sur sa capacité à reproduire le flux de MES de référence. Plus la moyenne des écarts est proche de 0 %, plus la méthode est juste. D'autre part, la dispersion des résultats obtenus pour les 5 sous-échantillons renseigne sur la fidélité de la méthode. Plus la dispersion est grande, plus la méthode est sensible à l'échantillonnage, et moins elle est robuste.

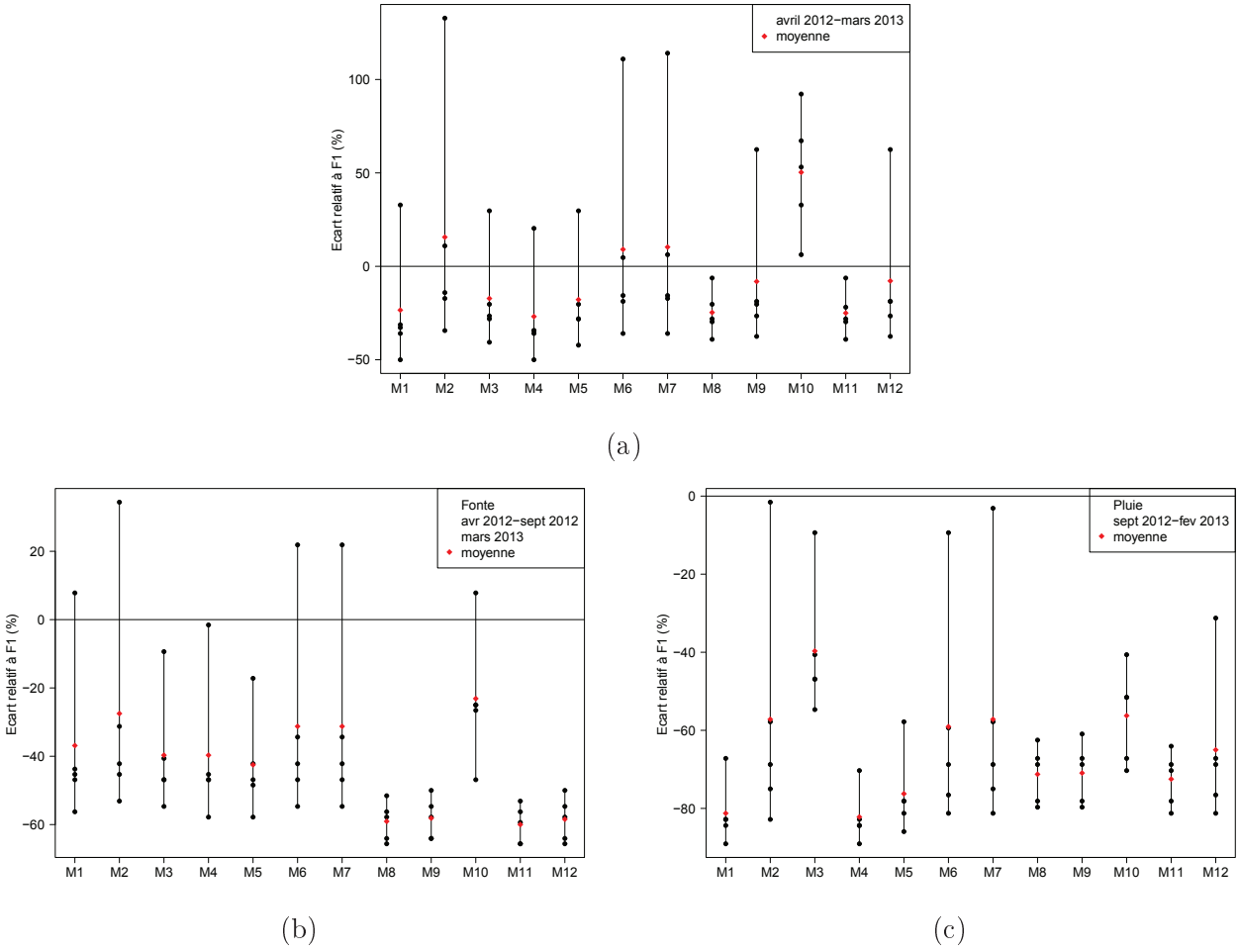


FIGURE 4.12 – Comparaison des 12 méthodes de calcul de flux (Cf. §1.3) pour les 5 sous-échantillons (•) obtenus en gardant une valeur de MES à 7h tous les 5 jours dans le suivi de l'année 2012-2013 sur la station de l'Arve à Genève Bout-du-Monde : (a) écarts des résultats obtenus au flux de référence F1 pour l'année entière, (b) pour la période de fonte et (c) pour la période de pluie.

Pour l'année entière (Fig. 4.12.a), la plupart des méthodes fournissent des flux sous-estimés en moyenne et une très grande dispersion des résultats est observée pour toutes les méthodes. Les méthodes ne sont donc dans l'ensemble ni justes, ni fidèles. Les méthodes par interpolation temporelle (M1 à M7) sont en général moins fidèles que les méthodes de courbes de tarage (M8 à M12).

Les résultats obtenus en traitant séparément les deux périodes (cf. Fig. 4.12b et c) sont plus sous-estimés que les résultats obtenus pour l'année entière. Il semble qu'en réduisant les jeux de données pour traiter séparément les deux périodes, on réduit leur représentativité. Les deux périodes ont des dynamiques sédimentaires différentes, mais il semble préférable de les traiter ensemble plutôt que séparément. Le calcul du flux en mimant le suivi de Baëff (1891) au paragraphe précédent donnait également des résultats plus justes pour l'année entière que pour chaque période prise séparément.

Nous avons vu précédemment que les C_s et les débits de l'Arve peuvent varier considérablement au cours d'une même journée. Une mesure tous les 5 jours (et même une fois par jour) ne permet pas de tenir compte de ces fortes fluctuations infra-journalières. De plus, les pics de crues de l'Arve passent en général en 24 h ou un peu plus ; ainsi un échantillonnage tous les 5 jours risque de rater ces événements (Fig. 4.13). Le sous-échantillonnage des crues dans le jeu de données est responsable de la grande dispersion des résultats, notamment pour les méthodes par interpolation à l'aide de moyennes (M1 à M7). Si toutes les crues de l'année sont manquées dans le jeu de données, la C_s moyenne est sous-estimée par rapport à la C_s moyenne réelle et le flux est sous-estimé. A l'inverse, si les crues sont sur-représentées dans le jeu de données, la C_s moyenne calculée est trop élevée, ce qui entraîne une large surestimation du flux. C'est ce qui est observé pour la méthode M2, qui est une simple moyenne des flux instantanés mesurés, et pour laquelle la dispersion des résultats est la plus importante.

Cet effet de l'échantillonnage discret est en partie compensé dans les méthodes par interpolation qui prennent en compte l'ensemble des débits mesurés et pas seulement les débits mesurés au moment du prélèvement de MES. C'est le cas des méthodes M3, M4 et M5 qui fournissent des résultats plus fidèles, mais malgré tout biaisés (sous-estimation de 20 à 30 % en moyenne) du flux de MES.

La méthode M6 et la méthode M7 (qui ajoute un facteur correctif à M6) présentent également des résultats très peu fidèles (écarts relatifs de -40 à +110 %). Pourtant, dans ces méthodes le flux de MES moyen mesuré au moment des prélèvements est pondéré par l'hydrologie enregistrée sur toute la période. Le sous-échantillonnage à 5 jours est ici trop lâche pour que cette méthode soit fidèle. Les méthodes M6 et M7 sont cependant les deux méthodes les plus justes (écart-relatif moyen de 10 %).

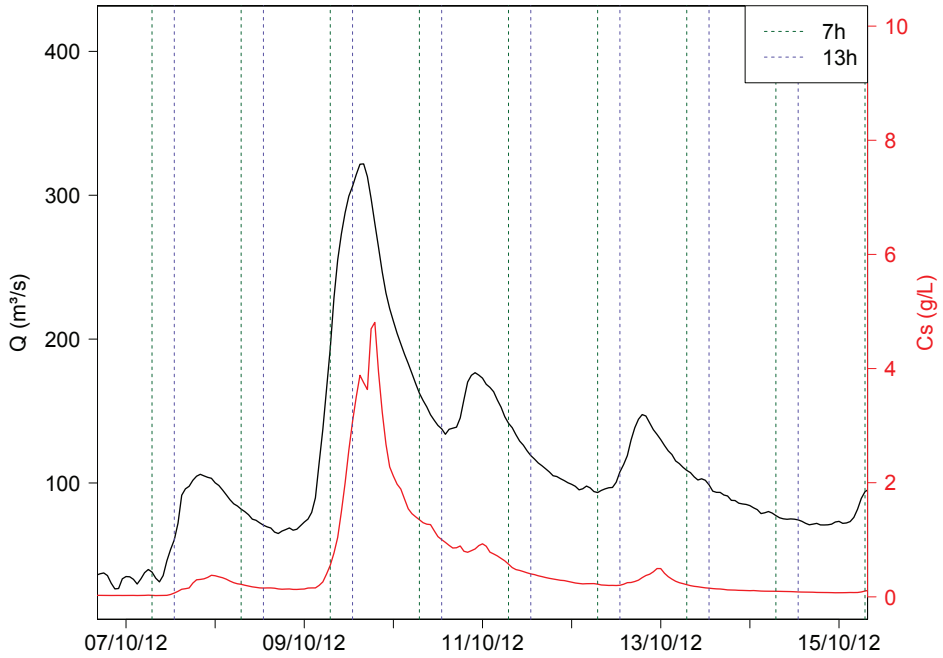


FIGURE 4.13 – Débit (Q, noir) et concentration en MES (C_s, rouge) enregistrés à la station de Bout-du-Monde sur l'Arve, au cours de la crue du 07 au 15 octobre 2012. Indication des horaires des suivis effectués par : l'OFEV à 7h tous les 5 jours de 1965-2003 (vert) ; Baëff (1891) à 13h tous les jours en 1890 (bleu)

Les méthodes de courbes de tarage (M8 à M12) présentent en général une dispersion moins importante des résultats. Basées sur la reconstitution d'une chronique continue de C_s à partir d'une relation avec le débit, elles apparaissent moins sensibles à l'échantillonnage temporel. Les méthodes M8 et M11 sont les deux méthodes les plus fidèles. Elles ne fournissent toutefois pas des résultats justes, puisque les flux de MES calculés sous-estiment le flux de référence d'en moyenne 25 %. Cette sous-estimation des flux de MES par les méthodes de régression est aussi relevée dans la littérature (Walling et Webb, 1981; Jansson, 1985; Walling, 1988).

Les méthodes M9 à M12 sont des dérivées de la méthode M8. L'utilisation de la courbe des débits classés dans la méthode M11 n'apporte pas une amélioration significative des résultats par rapport à M8. Et on note que les méthodes M9 et M10, qui proposent des facteurs de correction pour la régression logarithmique utilisée dans la méthode M8 fournissent des résultats très dispersés. Si l'ajout des facteurs de correction améliore la justesse de la méthode M9 par rapport à M8, ce n'est pas le cas pour M10 ; et dans les deux cas les méthodes sont moins précises que M8.

Ces résultats confirment qu'aucune méthode n'apparaît comme vraiment meilleure que les autres pour reproduire le flux de MES à partir d'un échantillonnage à 5 jours. Phillips *et al.* (1999) concluent également qu'aucune méthode n'est à la fois juste (flux moyen calculé proche du flux de référence F1)

et fidèle (faible dispersion des résultats pour différents sous-échantillons) lorsque le pas de temps de mesure est trop lâche. Pour améliorer les estimations, ils suggèrent de se concentrer sur les méthodes fidèles mais biaisées, et de leur appliquer un facteur de correction pour tenir compte du biais observé. Si l'on suit ce principe, la méthode la plus appropriée pour le calcul des flux de l'Arve est la méthode M8. D'après les résultats de l'année 2012-2013, il faudrait multiplier le résultat obtenu par 1,4 pour améliorer l'estimation du flux annuel. Toutefois, le choix de cette méthode resterait arbitraire et basé sur une seule année de mesure.

4.3.1.3 Recherche de relations entre le débit et la concentration en MES

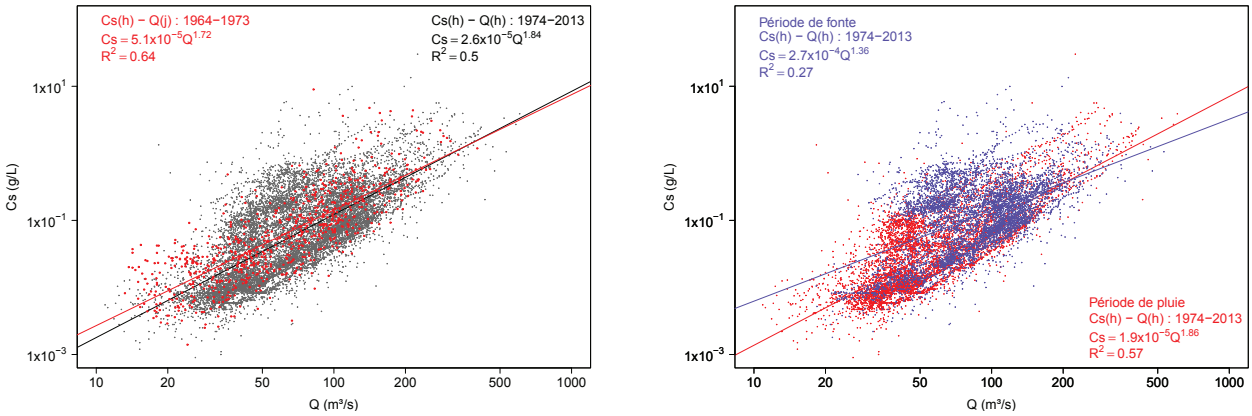
Courbes de tarage classiques de C_s

La relation Cs(Q) utilisée dans la méthode M8 est une régression linéaire simple sur les valeurs logarithmiques de Cs et de Q, ce qui correspond à la relation la plus couramment établie. Néanmoins, plusieurs auteurs (Walling, 1977; Asselman, 1999; Jansson, 2002; Le Coz *et al.*, 2007; Launay *et al.*, 2012) ont constaté que ces relations n'étaient pas satisfaisantes, soit parce qu'elles fournissent une prédiction erronée de Cs et ne permettent donc pas de reproduire la dynamique temporelle de Cs, soit parce que le flux de MES calculé à partir de ces relations est sous-estimé par rapport au flux réel. Diverses méthodes pour améliorer les relations Cs(Q) ont été proposées dans la littérature, en fonction de l'objectif poursuivi. Nous les présentons et les testons sur le cas de l'Arve. L'objectif est d'établir une relation Cs(Q) permettant de reproduire au mieux le flux de MES annuel mesuré pour l'année 2012-2013, et que nous pouvons ensuite appliquer pour les autres années pour lesquelles le débit est connu.

Nous cherchons donc à établir d'une part, une relation entre C_s horaire et le débit horaire pour la période 1974-2013, et d'autre part, une relation entre C_s horaire et le débit journalier pour la période 1964-2003. Les deux jeux de données sont représentés sur la Fig. 4.14a. Le nuage de points pour les valeurs horaires de C_s et de débit (noir) présente une tendance basse avec un nuage dense pour les valeurs de C_s et de débit plus faibles, et une grande dispersion des données pour les valeurs plus fortes, ce qui suggère deux types de fonctionnement différents. Le nuage de points pour les C_s horaires et débits journaliers (rouge) est moins dispersé que le noir. Les deux coefficients de corrélation (R^2), respectivement de 0,64 et 0,50, sont médiocres. Les paramètres a et b sont du même ordre de grandeur pour les deux relations puissance établies. La mise en relation des C_s horaires avec les débits horaires fait apparaître des processus plus complexes que lorsqu'on utilise les débits moyennés sur la journée.

Le débit et la C_s de l'Arve peuvent en effet varier d'un facteur deux à trois au cours de la journée. Par ailleurs, nous ne savons pas comment sont définis les débits journaliers pour la période

de 1964 à 1973, et ils ont peut être été obtenus en effectuant une seule mesure par jour. Pour ces deux raisons, nous préférons ne pas utiliser les couples de C_s horaires et de débit journalier pour établir la relation Cs(Q). La relation Cs(Q) utilisée dans la méthode M8 a donc été établie à partir des données horaires de débit et de C_s disponibles de 1974 à 2013 (en noir sur la Fig. 4.14a).



(a) (b)

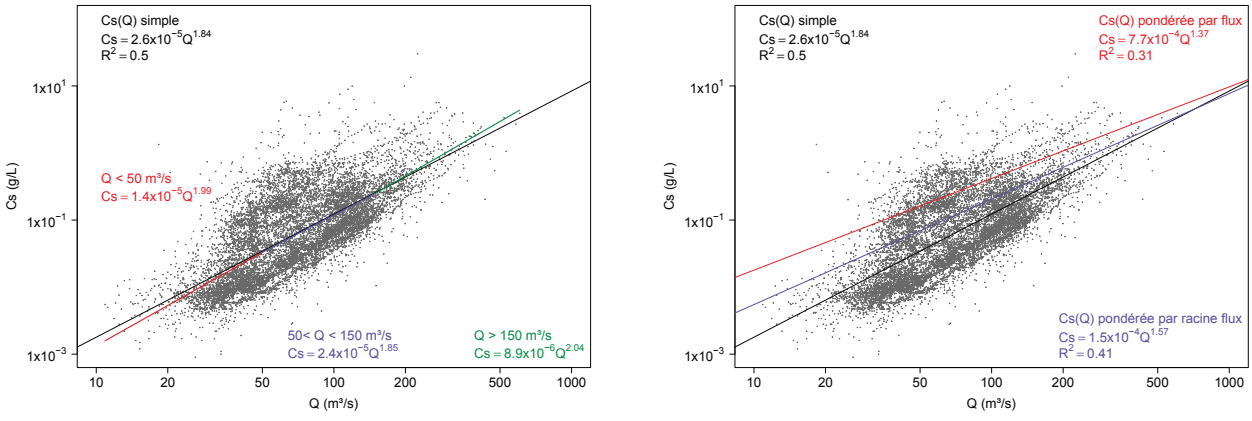
FIGURE 4.14 – Station de l'Arve à Bout-du-Monde : (a) Concentration en MES horaire (Cs_h) en fonction du débit horaire (Q_h) pour la période 1974-2013 (en noir) et Cs_h en fonction du débit journalier (Q_j) pour la période 1964-2003 (en rouge) ; Relations puissance établies à partir des deux jeux de données (droites noire et rouge respectivement) ; (b) Cs_h en fonction de Q_h pour les périodes de fonte (en bleu) et de pluie (en rouge) de 1974 à 2013 ; Relations puissance établies à partir des deux jeux de données (droites bleue et rouge respectivement)

Lorsque le régime hydrologique du cours d'eau est marqué par des périodes au fonctionnement hydrosédimentaire radicalement différent, par exemple fonte et stockage nival, Walling (1977) indique que la séparation du jeu de données peut permettre d'améliorer la relation Cs(Q). Il est également courant de séparer le jeu de données en fonction de la saison (printemps, été, automne, hiver) ou encore en fonction de la position du point de prélèvement sur l'hydrogramme (montée ou descente de crue) (Phillips *et al.*, 1999; Horowitz, 2003). Le régime hydrologique de l'Arve est marqué par deux périodes au comportement hydrosédimentaire très différent (Fig. 4.11), la période de fonte de mars à août et la période de pluie de septembre à février. Ainsi, nous présentons les valeurs horaires de C_s et de débit pour les périodes de fonte et de pluie de 1974 à 2013 sur la Fig. 4.14b (fonte en bleu et pluie en rouge). Les données de la période de fonte constituent la partie haute du nuage de points et sont très dispersées. La corrélation Cs(Q) entre les débits et les C_s pendant les périodes de fonte est très faible (R^2=0,27). La reconstitution de la chronique de MES à partir de la chronique de débit nécessite probablement dans ce cas la prise en compte d'autres facteurs intervenant dans la dynamique sédimentaire, tels que la température par exemple. L'utilisation d'un modèle hydrologique pourrait également permettre d'obtenir de meilleures prédictions des C_s pour

la période de fonte. En revanche, une meilleure corrélation existe entre les débits et les C_s pour la période de pluie que pour l'ensemble des données de 1974-2013, bien que la dispersion des valeurs reste importante (R^2=0,57). La séparation du jeu de données entre périodes de fonte et périodes de pluie ne permet toutefois pas de reproduire les C_s les plus fortes observées.

Pour mieux reproduire les valeurs extrêmes, les services de l'OFEV construisent une courbe Cs(Q) à partir de deux droites de régression, une pour les faibles valeurs de débit et une pour les fortes valeurs, avec un raccordement intermédiaire (Grasso et Jakob, 2003). En procédant de la même façon, nous avons établi une courbe de tarage en 3 parties autour des débits-pivots de 50 m^3/s et 150 m^3/s (Fig. 4.15.a). Les 3 tronçons de droite obtenus ne diffèrent cependant pas significativement de la relation Cs(Q) unique.

Pour donner plus de poids aux échantillons représentant le plus de flux, nous proposons de pondérer la régression Cs(Q) par le flux horaire. La droite de régression ainsi obtenue, en rouge sur la Fig.4.15.b, passe alors par la partie haute du nuage. Cette méthode originale améliore la reproduction des valeurs de C_s pour les périodes de forte production de flux ; en revanche, la partie basse du nuage, qui représente probablement la majeure partie du temps, est surestimée par la relation. Pour limiter cette surestimation, nous avons décidé de pondérer la régression par la racine carrée du flux, plutôt que par le flux.



(a) (b)

FIGURE 4.15 – Concentration en MES horaire (Cs_h) en fonction du débit horaire (Q_h) de 1974 à 2013 à la station de l'Arve à Bout-du-Monde ; (a) Relation puissance simple (en noir) et relation puissance construite en séparant le jeu de données en 3 en fonction du débit ($Q < 50$ m^3/s en rouge, 50 $m^3/s < Q < 150$ m^3/s en bleu et $Q > 150$ m^3/s en vert) ; (b) relations puissance pondérées par le flux (en rouge) et par la racine carrée du flux (en bleu)

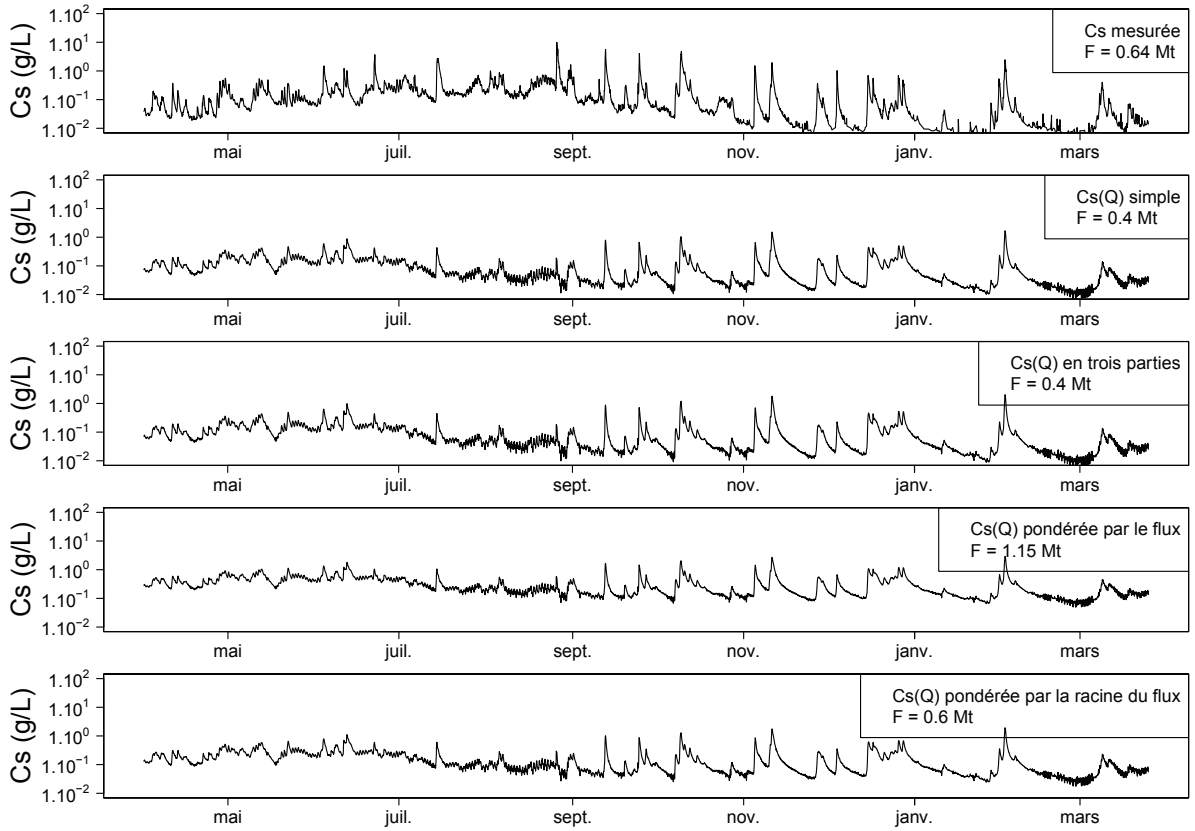


FIGURE 4.16 – Station Arve à Genève Bout-du-Monde de septembre 2012 à mars 2013 : chronique de concentration en MES (C_s) horaire mesurée et chroniques de C_s reconstituées à partir des relations CsQ simple (méthode M8), en 3 parties, pondérée par le flux et pondérée par la racine du flux.

Les méthodes de séparation de la chronique en fonction de la période ou du débit et l'introduction d'une pondération de la régression par le flux ou la racine du flux permettent de forcer la relation Cs(Q) à reproduire les fortes valeurs de C_s et de débit. La Fig. 4.16 montre que ces 4 méthodes ne sont toutefois pas suffisantes pour reproduire l'intensité des pics de crue de 2012-2013 qui restent sous-estimés d'un facteur 2 à 3, quelle que soit la méthode. La relation Cs(Q) en 3 parties n'apporte pas d'amélioration par rapport à la relation Cs(Q)(méthode M8). Elles produisent toutes les deux un flux de MES annuel sous-estimé d'environ 30 %. L'introduction de la pondération par le flux dans la régression (Fig. 4.15b) surestime les C_s en régime de base (niveau de base environ 10 fois plus fort que le niveau de base mesuré) ; le flux annuel se trouve surévalué d'environ 100 % (Fig. 4.16). En pondérant la régression par la racine carrée du flux, on obtient un flux proche (94 %) du flux annuel mesuré pour l'année 2012-2013 sur l'Arve. Les C_s en régime de base sont toutefois surestimées (d'un facteur 5 environ) par rapport aux C_s mesurée et les C_s en crue sont sous-estimées ; les deux effets se compensent pour produire un flux proche du flux mesuré.

Courbes de tarage de C_s modifiées

En crue, il est courant d'observer un décalage entre l'arrivée du pic de C_s et l'arrivée du pic de débit, ce qui se traduit par des phénomènes d'hystérésis qui viennent complexifier les relations entre débit et C_s (Asselman, 1999; Lenzi et Marchi, 2000; Jansson, 2002; Le Coz *et al.*, 2007; Launay *et al.*, 2012). L'établissement d'une relation de la forme suivante peut permettre d'améliorer la relation Cs(Q) :

$$C_s = a\,[Q(t - t_0)]^b \tag{4.1}$$

avec t_0 le décalage temporel entre les pics de crue solide et de crue liquide.

Lorsque le pic de C_s arrive avant le pic de débit, pendant la phase d'accélération de l'augmentation de débit, Le Coz *et al.* (2007) et Launay *et al.* (2012) suggèrent qu'il peut être dû à des phénomènes de remise en suspension de sédiments stockés dans le réseau hydrographique. On peut alors établir une relation de la forme

$$C_s = aQ^b + c\ dQ/dt \tag{4.2}$$

L'introduction dans l'équation du terme cdQ/dt permet, dans le cas de l'Isère à Grenoble par exemple (cf Fig. 4.17), de reproduire les niveaux de C_s. Cependant, le calage de cette relation est lourd à mettre en place et peu répétable, d'un événement à l'autre.

Dans le cas de l'Arve, les pics de débit et de C_s enregistrés pendant les crues arrivent en général simultanément, comme c'est le cas pour la crue du 07 au 15/10/2012 (Fig. 4.13). L'établissement des relations Cs(Q) décrites dans les Eq. 4.1 et 4.2 ne permet donc pas d'améliorer la relation Cs(Q). En revanche, la Fig. 3.4 montre clairement que pendant la période de pluie (à partir de septembre), les pics de C_s ont tendance à diminuer en intensité pour des débits de crue équivalent, les plus fortes C_s étant atteintes en début de période. Ceci suggère l'idée qu'un stock sédimentaire se constitue dans le réseau hydrographique au cours de la période de fonte et qu'il est repris lors des premières crues importantes de la période de pluie. Un terme de destockage des sédiments disponibles sous la forme d'un amortissement en exponentielle décroissante ω(t) peut être ajouté dans la relation Cs(Q) qui devient :

$$C_s = a\omega(t)Q^b \tag{4.3}$$

$$\omega(t) = e^{\frac{V_d}{V_d - V_s}}$$

avec V_d le volume destocké depuis le début de la période de pluie et V_s le stock disponible au début de la période de pluie. La difficulté réside alors dans l'estimation de V_s ; en première approximation,

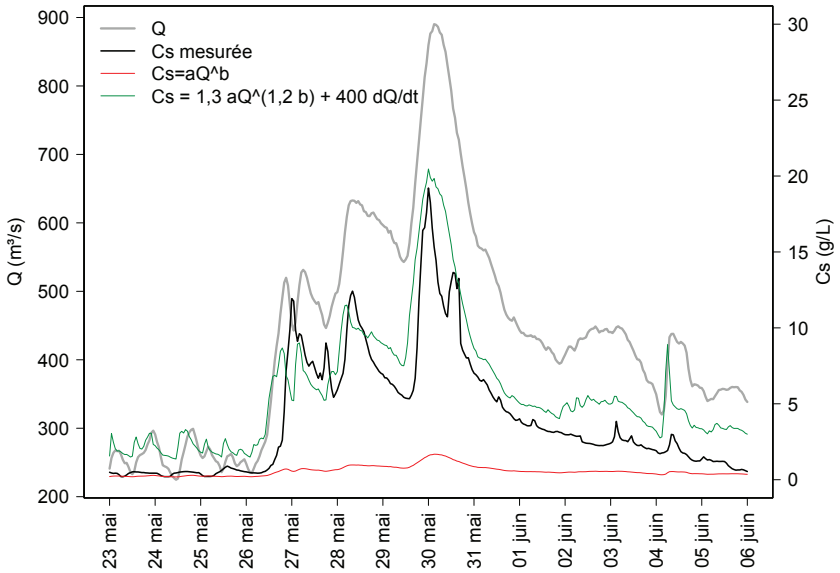


FIGURE 4.17 – Débit (gris) et concentration en MES (C_s, noir) enregistrés à la station de Grenoble-campus sur l'Isère, au cours de la crue de mai-juin 2008 ; C_s modélisée par une relation puissance classique (rouge) et avec introduction d'un terme cdQ/dt (vert).

il peut être défini comme l'intégrale du flux de MES sur toute la période de pluie, ce qui implique que le déstockage est supposé complet sur la période de pluie observée. Cette hypothèse semble réaliste pour l'année 2012, puisque les pics de MES en fin de période pluie sont très faibles. Ce modèle améliore la reproduction des pics de crue de septembre 2012-2013 (pic modélisé à 3 g/L pour la première crue de septembre contre 5 g/L mesurés), mais reste compliqué à caler et donc peu applicable pour le calcul des flux sur les années antérieures.

4.3.1.4 Conclusion sur les méthodes de calcul de flux de MES

Le suivi de l'Arve à pas de temps fin grâce à la nouvelle station turbidimétrique OSR a permis d'évaluer l'effet d'un échantillonnage horaire Nous avons montré que le suivi OFEV, avec un prélèvement à 7 h tous les 5 jours produit des données de C_s supérieures aux valeurs journalières. En revanche, un échantillonnage à 13 h n'entraîne pas de biais par rapport aux valeurs journalières.

Nous avons également comparé les différentes méthodes de calcul des flux de MES à partir d'un suivi discret à 5 jours des C_s et de données de débit (horaire ou journalier) en continu. Parmi les 12 méthodes issues de la littérature et testées, aucune ne permet de fournir des résultats de flux de MES à la fois justes et fidèles pour 5 jours. Les différentes méthodes dépendent fortement de l'échantillonnage des C_s. De plus, un échantillonnage à 5 jours, comme c'est le cas dans le suivi longue durée de l'OFEV, ne permet pas de reproduire les variations infra-journalière de C_s, qui sont

pourtant importantes et permet difficilement d'échantillonner les événements de crue de l'Arve, qui contribuent le plus au flux de MES.

La méthode la plus précise (i.e. qui fournit des résultats avec la dispersion la moins grande) est la méthode M8, qui permet de reconstituer une chronique continue de C_s à partir d'une relation puissance établie avec le débit. Toutefois, une relation Cs(Q) simple s'avère incapable de reproduire les niveaux de C_s mesurés ; et le flux de MES calculé par la méthode M8 pour l'année 2012-2013 sous-estime d'environ 30 % le flux mesuré. Différentes stratégies ayant pour but d'améliorer les performances des relations Cs(Q) ont été testées. Dans un objectif de calcul de flux de MES à l'échelle annuelle, la régression pondérée par la racine du flux est la plus performante. Un jeu de données sur plusieurs années serait nécessaire pour proposer une modélisation hydrologique et sédimentaire plus performante.

Afin de calculer les flux de MES de l'Arve pour les années antérieures où le débit horaire est disponible, nous retiendrons donc la méthode M8, avec la relation Cs(Q) pondérée par la racine du flux obtenue avec les données horaires de 1974 à 2013. Le flux de MES pourra également être calculé pour les années où seul le débit journalier est disponible (de 1904 à 1973), tout en prenant en compte les réserves déjà émises sur la méthode de production de ces débits journaliers et sur l'importance des variations infra-journalières de ce paramètre.

L'exemple de l'Arve démontre l'intérêt d'un suivi moyenne horaire continu par turbidimétrie étalonnée par rapport à un suivi par prélèvements à une fréquence plus large pour capturer la dynamique infra journalière. L'installation, même pendant quelques semaines seulement, d'une station mobile avec enregistrement horaire des C_s permet, si on réussit à enregistrer des crues, de capter cette dynamique et ainsi d'améliorer les performances des relations Cs(Q), en prenant en compte un décalage temporel, ou en découpant la chronique en fonction de l'hydrologie par exemple.

4.3.2 Choix d'une méthode de calcul pour les différentes stations

Pour le calcul des flux de MES annuels sur les autres affluents du Rhône, on a privilégié l'utilisation de la méthode M8, en établissant la meilleure relation Cs(Q) permettant de prendre en compte les processus observés, tels que la reprise derrière les barrages, les différentes sources de production de MES proches et lointaines, le cycle journalier lié à de la fonte. Lorsque C_s a été mesurée en continu, le calcul du flux sur la période de mesure, même si elle est courte, permet de vérifier que la relation Cs(Q) établie permet de reproduire au mieux le flux de MES mesuré, en établissant l'écart relatif entre le flux mesuré et le flux de MES calculé.

Le Tab. 4.3 présente les affluents pour lesquels nous disposons de données de C_s, soit sous la forme d'une chronique issue de la conversion d'une mesure de turbidité, soit sous la forme de données ponctuelles de MES. Dans le cas de chroniques continues, nous avons défini la meilleure relation Cs(Q) en calculant l'écart relatif entre le flux mesuré et le flux calculé par la relation sur la période de mesure disponible. La relation Cs(Q) fournissant l'écart relatif le plus proche de 0 % est choisie pour calculer les flux de MES pour les années où seul le débit est disponible.

Pour l'ensemble des chroniques de MES, la meilleure relation Cs(Q) est la relation Cs(Q) pondérée par la racine carrée du flux. Nous avons donc décidé d'utiliser des relations Cs(Q) pondérées par la racine du flux pour les stations avec seulement des données ponctuelles de MES. Les paramètres a et b des relations Cs(Q) établies pour chaque station sont présentés dans le Tab. 4.3.

Tableau 4.3 – Synthèse des relations Cs(Q) pondérées par la racine du flux obtenues pour les différents affluents du Haut-Rhône

	Cours d'eau - *Station*	a	b	Flux mesuré (Mt)	Flux calculé (Mt)	Ecart (%)
Chronique continue	Arve - *Bout du monde*	$1{,}56.10^{-4}$	1,56	0,64	0,60	-6
	Guiers - *Belmont*	$3{,}44.10^{-4}$	1,60	0,031	0,029	-6
	Rhône - *Creys*	$7{,}51.10^{-8}$	2,08	1,01	0,92	-10
	Rhône - *Bugey*	$3{,}27.10^{-9}$	2,53	0,77	0,72	-7
	Bourbre - *Tignieu*	$4{,}02.10^{-2}$	0,29	0,009	0,008	-2
	Ain - *Port Galland*	$4{,}28.10^{-5}$	1,11	0,068	0,066	-3
	Rhône - *Jons*	$2{,}19.10^{-9}$	2,46	1,31	1,33	+1
	Rhône - *Neyron*	$8{,}35.10^{-5}$	1,29	0,088	0,089	0
	Rhône - *Vieux-Rhône amont*	$2{,}40.10^{-4}$	1,37	0,028	0,029	+5
	Rhône - *Vieux-Rhône aval*	$2{,}97.10^{-4}$	1,34	0,029	0,031	+5
	Rhône - *Perrache*	$6{,}22.10^{-11}$	3,17	0,23	0,25	+9
	Saône - *Lyon*	$1{,}04.10^{-3}$	0,53	1,23	1,20	-2
Cs ponctuelle	Valserine - *Lancrans*	$7{,}18.10^{-3}$	0,65			
	Usses - *Pont rouge*	$4{,}63.10^{-2}$	0,80			
	Fier - *Motz*	$1{,}93.10^{-4}$	1,51			
	Rhône - *pont de la loi*	$1{,}04.10^{-10}$	3,16			

4.4 Reconstitution de la variabilité temporelle des flux de contaminants particulaires

4.4.1 Etude de cas : le Rhône à Jons

4.4.1.1 Intérêt et objectif

Le suivi OSR des flux particulaires effectué à la station de Jons entre 2011 et 2013 a permis d'obtenir des teneurs en mercure et en $\sum$PCBi tous les 15 jours en dehors des périodes de crue et tous les jours lors de quelques épisodes hydrosédimentaires particuliers (les chasses de juin 2012 et quelques crues). Une telle fréquence de données de contaminants particulaires est rare à l'échelle mondiale, et sur le Rhône, seule la station d'Arles a fait l'objet d'un suivi aussi intensif dans le cadre de l'OSR. Ce jeu de données est d'autant plus exceptionnel que les analyses des teneurs en contaminants sont complétées par des analyses de la granulométrie et de la teneur en COP pour caractériser les MES collectées, et que les C_s sont également mesurés en continu à la station de Jons depuis septembre 2010.

En complément de ce jeu de données haute fréquence pour les années 2011 à 2013, nous disposons des données collectées dans le cadre du réseau Eau et MES de l'AERMC, à raison de 4 valeurs par an entre 2000 et 2009. Seules les teneurs en mercure et en PCB (les 7 congénères indicateurs) sont disponibles pour ces années, les C_s, granulométries et teneurs en COP n'ayant pas été mesurées. Pour les années 2000 à 2009 nous disposons du débit à Jons et du flux de MES, reconstitué à l'aide de la relation avec le débit établie au §4.3.2.

A partir des données collectées, il est donc possible de s'intéresser i) aux variations des teneurs en contaminants et aux paramètres qui les contrôlent, ii) de chercher des moyens pour reconstituer ces variations dans les cas, fréquents, où les données sont disponibles à une moins grande fréquence temporelle afin de calculer les flux de contaminants particulaires en réduisant les incertitudes, iii) d'évaluer l'impact d'un échantillonnage temporel plus lâche des teneurs en contaminant sur les résultats du calcul de flux de contaminants et iv) de définir la méthode de calcul de flux de contaminants particulaires la plus appropriée au jeu de données disponible aux différentes stations du réseau.

4.4.1.2 Les données de contaminants dans le Rhône à Jons

Les résultats des mesures effectuées à Jons dans le cadre du suivi de l'OSR (septembre 2011-février 2013) sont présentés sur la Fig. 4.18. Les prélèvements effectués en périodes de crue (Q>800 m^3/s) et lors des chasses de barrage de juin 2012 sont signalés en couleur.

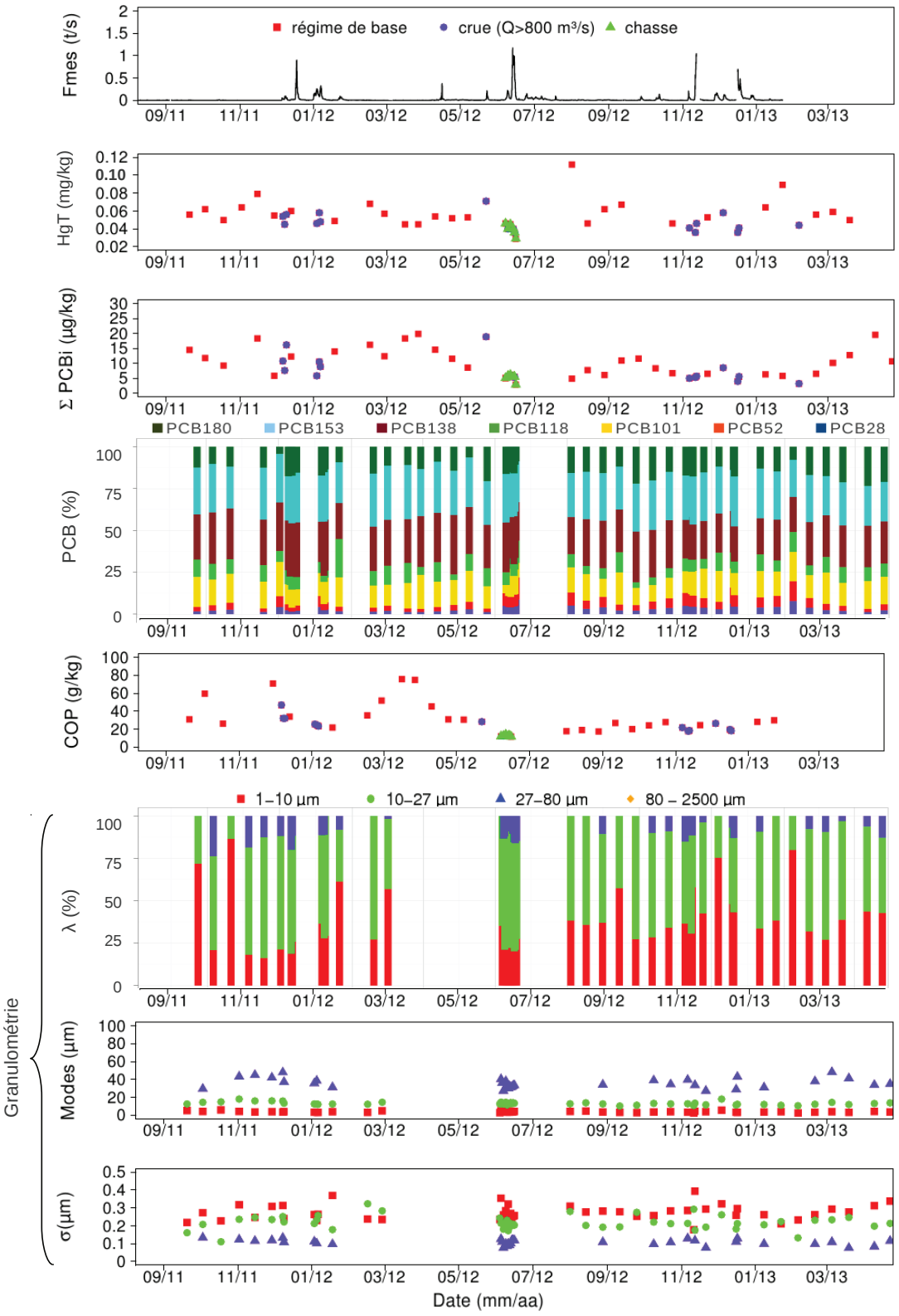


FIGURE 4.18 – Flux de MES (Fmes), teneurs en mercure particulaire total (HgT), somme des 7 PCB indicateurs des MES ($\sum$PCBi) et proportion des 7 congénères dans la somme, analyse granulométrique volumique (λ, Modes et σ) et teneurs en carbone organique particulaire (COP) des MES échantillonnées à la centrifugeuse à Jons (septembre 2011-février 2013).

Les analyses granulométriques des échantillons prélevés à Jons montrent que la sous-population grossière (80-2500 μm), supposée non porteuse de contamination, est toujours absente. Les proportions (λ) des 3 autres sous-populations granulométriques présentent quelques variations au cours du temps mais restent globalement stables, avec une sous-population fine (1-10 μm) représentant 20 à 30 % des échantillons et une sous-population intermédiaire (10-27 μm) qui représente en moyenne 50 % des échantillons. Les modes et les écart-types (σ) des 3 sous-populations granulométriques sont constants dans le temps et en fonction des événements hydrologiques. La granulométrie des MES circulant à Jons est donc restée globalement la même au cours du suivi OSR, malgré l'occurence de plusieurs événements de crue et des opérations de chasse des barrages de juin 2012. Les particules collectées sont majoritairement fines (90 % $<$ 27 μm) ; il semble donc que les MES subissent un tri granulométrique au cours de leur transport dans le Rhône et ses affluents avant d'atteindre Jons et que ce tri granulométrique s'opère en amont de Jons, quelque soit le régime hydrologique observé.

Les teneurs en mercure ont varié au maximum d'un facteur 2 au cours de la période de mesure. Les teneurs en $\sum$PCBi ont varié plus fortement, d'un facteur 5, au cours du temps, mais les profils de PCB ont peu varié. Les PCB les plus légers (28, 52, 101 et 118) représentaient de 25 à 35 % des $\sum$PCBi. Les plus faibles et plus fortes proportions de PCB légers ont été observées au cours des crues des affluents amont (l'Arve, la Valserine, les Usses et le Fier), respectivement en décembre 2011 et février 2013.

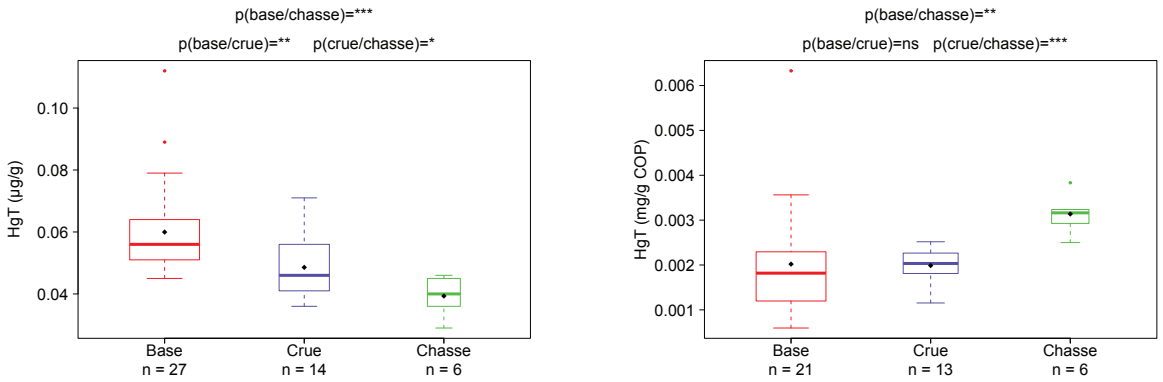
Dans la suite de l'étude des variations de teneurs en contaminants à Jons, nous travaillons sur la $\sum$PCBi, puisque les profils de PCB varient peu au cours du temps. Nous reviendrons sur les profils de PCB et sur l'origine des PCB mesurés à Jons dans le Chap. 5.

Le COP des particules analysées a varié d'un facteur 6,5 sur la période 2011-2013. Les chasses de juin 2012 ont donc été caractérisées par une diminution significative des teneurs en mercure, en $\sum$PCBi et en COP par rapport à la période antérieure, respectivement d'un facteur 1,4, 2,5 et 3,2. Cette diminution des teneurs s'est prolongée après les chasses pour la $\sum$PCBi et pour le COP, mais pas pour le mercure.

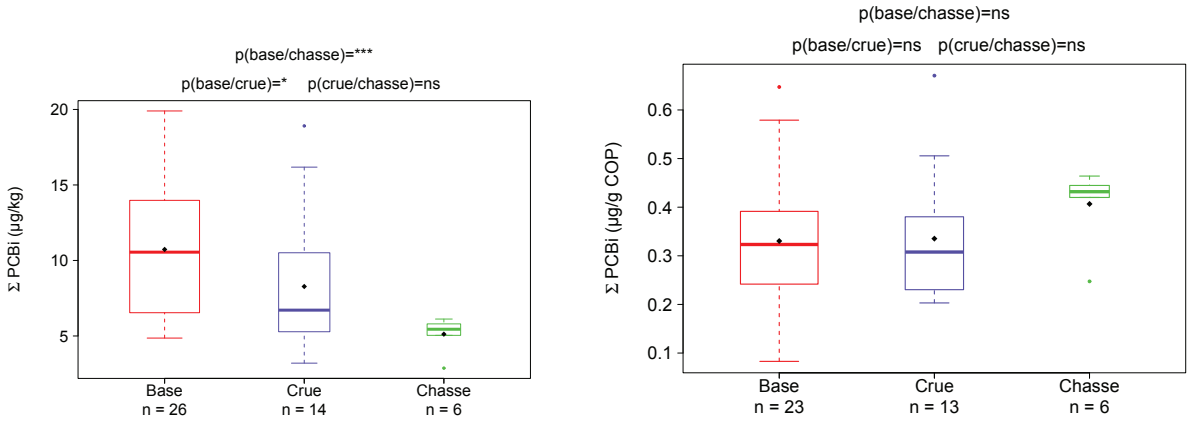
En dehors des périodes de chasse, les teneurs moyennes en mercure et en $\sum$PCBi en crue (Q$>$800 m^3/s) étaient également significativement plus faibles que pendant les périodes de régime de base (Cf. Fig. 4.19). En revanche, contrairement au mercure et à la $\sum$PCBi, on ne constate pas de différence significative entre le régime de base et les crues pour le COP.

Teneurs non normalisées | Teneurs normalisées par le COP

(a) Mercure



(b) ∑PCBi



(c) COP

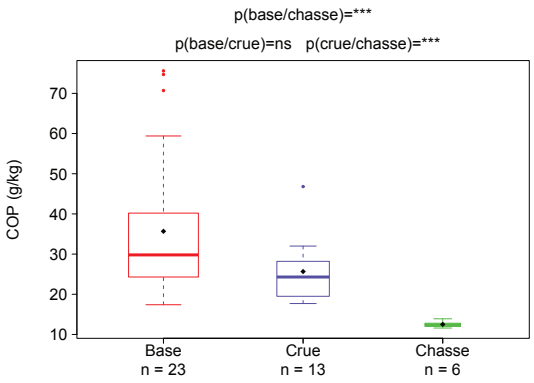


FIGURE 4.19 – (a) Teneurs en mercure (HgT) des MES (b) en somme des 7 PCB indicateurs (∑PCBi) des MES et (c) en carbone organique particulaire (COP) des MES ; non normalisées et normalisées par la teneur en carbone organique particulaire (COP) dans le Rhône à Jons en régime de base, en crue (Q>800 m^3/s) et en période de chasse. (n : nombre de données ; $p(a/b)$: p-value du test de Mann-Whitney-Wilcoxon appliqué aux jeux de données correspondant aux régimes a et b.)

Plusieurs études ont montré une corrélation entre la teneur en COP et la teneur en certains contaminants hydrophobes organiques (Pignatello et Xing, 1996; Abarnou *et al.*, 1987), et en mercure (Jambon et Thomas, 2009) des MES. Les variations de teneurs en mercure et $\sum$PCBi démontrées entre les différents régimes hydrologiques pourraient donc être dues à des changements de teneur en COP des particules. Ainsi, c'est pourquoi il apparaît intéressant de corriger par le COP les teneurs en contaminants des MES échantillonnées à Jons pour vérifier cette hypothèse. La Fig. 4.19 montre l'influence de cette correction sur les moyennes des teneurs : les teneurs en mercure et $\sum$PCBi corrigées sont alors plus élevées que celles non corrigées.

La correction des teneurs en mercure et de la $\sum$PCBi par la teneur en COP rend non significative la différence entre les teneurs en crue et en régime de base (Cf. Fig. 4.19). Le changement de composition des MES en COP lors des épisodes de crue est donc apparemment responsable de la différence de teneur en mercure et $\sum$PCBi par rapport au régime de base.

La correction de la $\sum$PCBi par le COP rend également non significative la différence entre les chasses et le régime de base. En revanche, même après correction par le COP, les teneurs en mercure restent toujours significativement différentes entre le régime de base et les opérations de chasse.

Les teneurs plus faibles en COP des MES ayant transité à Jons pendant les opérations de chasse semblent donc bien expliquer les teneurs plus faibles en $\sum$PCBi, mais ne suffisent pas à expliquer les variations de mercure. La granulométrie n'est pas non plus responsable des variations de teneurs en mercure mesurées au cours des chasses à Jons, puisqu'il n'y a pas de différence significative des distributions granulométriques des échantillons prélevés pendant les opérations de chasse par rapport au régime de base et aux crues.

Au cours des chasses de juin 2012

Le suivi particulier des chasses de juin 2012 permet l'étude de l'évolution amont/aval des particules et de leur niveau de contamination au cours des chasses, de comparer les caractéristiques des particules prélevées pendant les opérations de chasses à celles prélevées en régime de base et en crue à Jons dans le cadre du suivi OSR et d'expliquer les teneurs en mercure et en PCB plus faibles observées à Jons pendant les opérations de chasse.

Les données collectées manuellement (échantillons composites journaliers) aux stations de Pougny et Seyssel, et à la centrifugeuse aux stations de Creys et Jons sont présentées sur les Fig. 4.20 et 4.21. Les dates d'abaissement des retenues de Génissiat (le 4 juin) et de Verbois (le 9 juin) sont

matérialisées en gris sur les graphiques. Les différentes stations sont localisées sur la Fig. 3.21 au Chap. 3.

L'abaissement de la retenue de Génissiat le 4 juin a conduit à une diminution des teneurs en $\sum$PCBi et COP entre le 4 et le 8 juin 2012 observée à la station de Seyssel située en aval de Génissiat : de 10 à 4 μg/kg pour la $\sum$PCBi et de 25 à 5 g/kg pour le COP. Les teneurs en mercure à Seyssel ne montrent pas de diminution significative entre le 4 et le 7 juin 2012, mais chutent le 8 juin, passant de 0,059 à 0,024 μg/g. Au cours de la semaine du 9 au 16 juin, après l'abaissement de la retenue de Verbois, les teneurs en mercure, $\sum$PCBi et COP des MES restent faibles à Seyssel, avec une teneur moyenne en mercure de 0,038 μg/g ($\pm$0,007 μg/g), en $\sum$PCBi moyenne de 5,64 μg/kg ($\pm$0,62 μg/kg) et en COP de 11,6 g/kg ($\pm$1,0 g/kg). Les teneurs en mercure, $\sum$PCBi et COP à Creys et Jons sont équivalentes à celles mesurées à Seyssel. A Pougny, à l'aval immédiat de la retenue de Verbois, la teneur en $\sum$PCBi moyenne mesurée entre le 9 et le 16 juin est de 3,01 μg/kg (écart-type = 0,35 μg/kg), ce qui est plus 2 fois plus faible qu'aux autres stations pour la même période.

Les proportions des différents PCB aux stations du Rhône à Jons, Creys, Seyssel et Pougny lors des opérations de chasse varient peu et les profils observés sont les mêmes qu'à la station de Jons en régime de base et en crue. Les PCB 153 et 138, toujours quantifiés, prédominent et représentent à eux deux plus de 50 % de la contamination totale, tandis que les PCB 28, 52 et 118 sont très rarement quantifiés. Les teneurs à Pougny sont faibles (station la plus à l'amont) et les PCB 28, 52, 101 et 118 ne sont jamais quantifiés.

Seul le profil de PCB du prélèvement du 8 juin à Seyssel présente une proportion de PCB lourds (138, 153 et 180) de 50 %, alors qu'elle est de l'ordre de 70 % dans les profils des autres jours. Le prélèvement du 8 juin à Seyssel présente également les plus faibles teneurs en mercure, $\sum$PCBi et COP mesurées entre le 4 et le 16 juin. L'analyse granulométrique (Cf. Fig. 4.21) de cet échantillon révèle la présence de particules grossières (80-2500 μm), non porteuses de contamination.

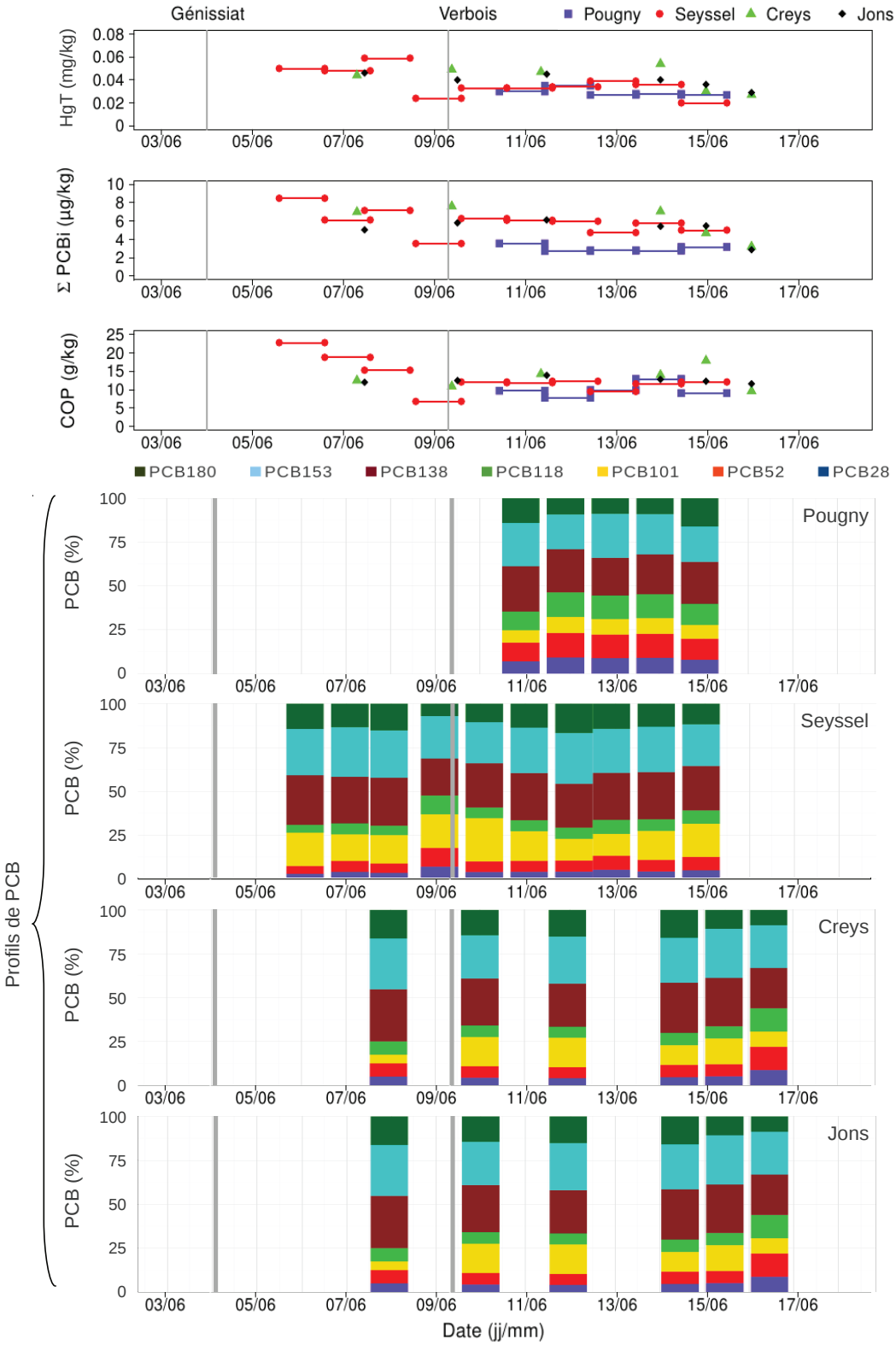


FIGURE 4.20 – Teneurs en mercure particulaire total (HgT), en carbone organique particulaire (COP), somme des 7 PCB indicateurs des MES ($\sum$PCBi) et proportion des 7 congénères dans la somme, des MES échantillonnées manuellement (échantillons composites journaliers) à Pougny et Seyssel, et à la centrifugeuse à Creys et Jons lors des opérations de chasses de 2012.

L'analyse granulométrique des échantillons révèle que les modes et écart-types (σ) des sous-populations granulométriques échantillonnées varient peu dans le temps et d'une station à l'autre. Les sous-populations granulométriques échantillonnées sont donc les mêmes, seules leurs proportions (λ) varient d'un échantillon à l'autre. Les proportions des deux sous-populations les plus grossières (27-80 μm et 80-2500 μm) diminuent de l'amont vers l'aval et le pourcentage de particules fines est plus important à Creys et Jons qu'à Pougny et Seyssel. Lors de la première semaine de chasse, les particules collectées à Pougny (en amont du barrage de Génissiat) sont plus fines que les particules prélevées à Seyssel (aval du barrage). Les MES prélevées à Pougny en première semaine provenaient majoritairement de l'Arve, en crue à cette période et qui transporte en général des particules fines. En revanche, lors de la seconde semaine, le pourcentage de particules grossières est plus important à Pougny qu'à Seyssel. Les particules les plus grossières relarguées par le barrage de Verbois se sont en partie déposées entre les deux sites. De plus, les opérations de chasse n'ont entraîné aucune modification de la distribution granulométrique des MES échantillonnées à Jons par rapport au régime de base et aux crues.

Ainsi, l'abaissement des retenues de Génissiat et de Verbois a entraîné un apport de MES dont les teneurs en mercure, $\sum$PCBi et COP étaient plus faibles que celles circulant avant les opérations de chasses. Les plus faibles teneurs en COP mesurées lors des périodes de chasses indiquent que les particules mobilisées avaient une origine plus minérale que les particules échantillonnées avant les chasses. Le barrage de Verbois se situe à l'aval de la confluence entre le Rhône et l'Arve, principal contributeur en MES dans cette partie du bassin versant. Les particules accumulées dans la retenue de Verbois proviennent donc essentiellement de l'Arve, or les particules circulant dans l'Arve proviennent de l'altération des marnes qui composent son bassin versant. Les opérations de chasse des barrages ont donc remobilisé des particules provenant de l'Arve, dont la teneur en COP est plus faible que les particules habituellement observées dans le Rhône. Ce phénomène a dû être amplifié la première semaine des chasses de barrage, puisque l'Arve était alors en crue.

La granulométrie des particules remobilisées lors des chasses de barrage était plus grossière que celle des particules circulant dans le Rhône en temps normal. Toutefois, les particules grossières ont été mesurées seulement à l'amont, aux stations de Pougny et de Seyssel et n'ont pas atteint les stations de Creys et Jons, où la granulométrie n'a pas été modifiée par les chasses de barrage par rapport au régime de base et aux crues. Les particules grossières se sont donc déposées dans le réseau entre Seyssel et Pougny.

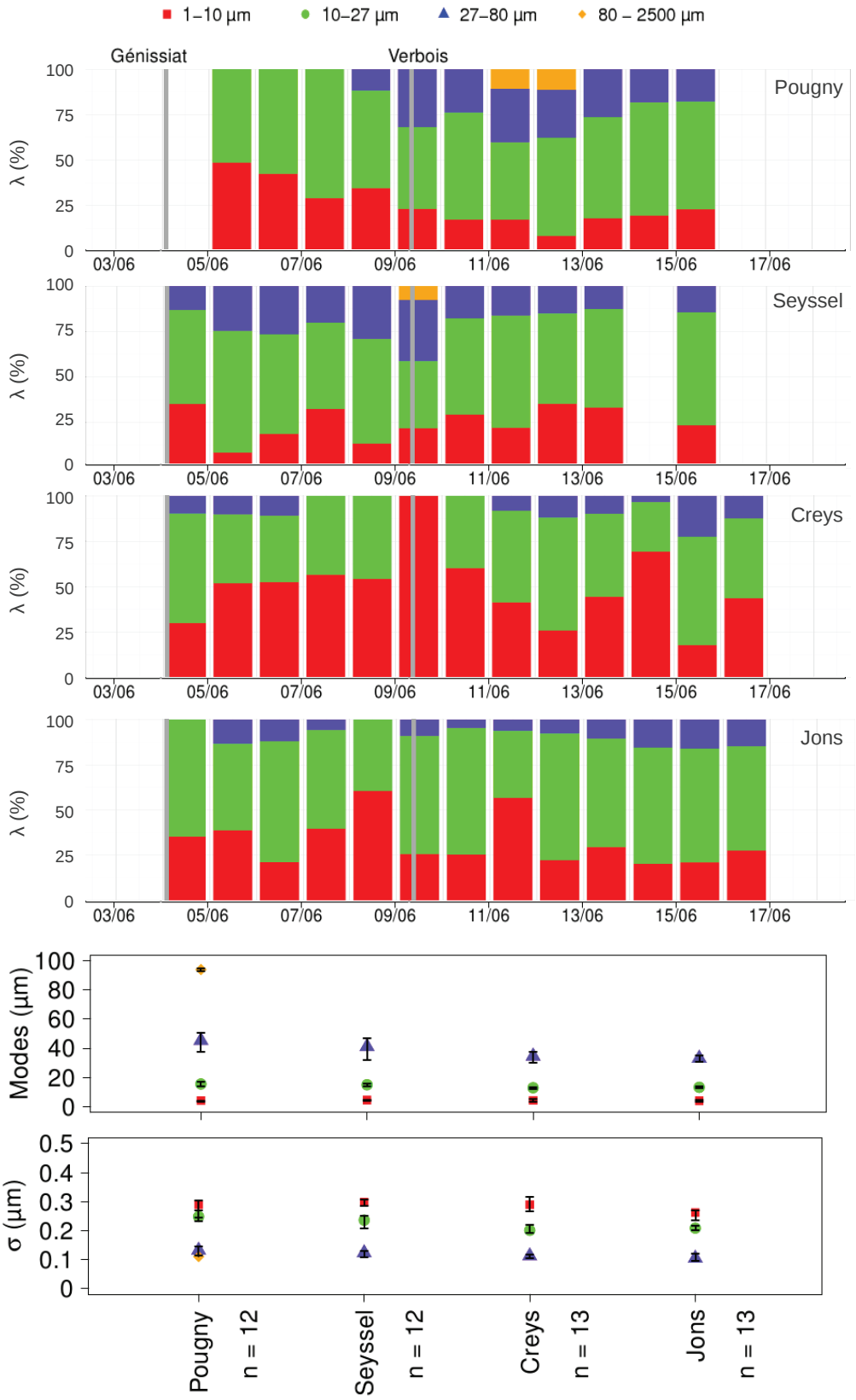


FIGURE 4.21 – Analyse granulométrique volumique (λ, Modes et σ) des MES échantillonnées manuellement (échantillons composites journaliers) à Pougny et Seyssel, et à la centrifugeuse à Creys et Jons lors des opérations de chasses de 2012.

Le fait que les teneurs en COP et en $\sum$PCBi des MES soient restées faibles pendant la période post chasse à Jons indique que les particules mobilisées pendant les chasses se sont probablement déposées dans le réseau hydrographique en amont de Jons et continuent de circuler dans le Haut-Rhône. Cette interprétation semble confirmée par la remontée des teneurs en $\sum$PCBi à Jons depuis mars 2013 (Cf. Fig. 4.18), comme si le stock de particules issues des chasses commençait à être évacué et que les particules circulant habituellement dans le Haut-Rhône recommençaient à être prédominantes. Toutefois, cette hypothèse ne permet pas d'expliquer pourquoi les teneurs en mercure après la chasse ne sont pas elles-aussi restées au niveau des teneurs mesurées pendant les chasses.

La compréhension de l'origine des contaminants qui ont transité dans le Rhône lors des chasses de juin 2012 doit prendre en compte de nombreux facteurs, tels que l'origine des MES et leurs caractéristiques. Cette compréhension est compliquée par la concomitance de crues sur les affluents du Rhône à cette période. Un modèle numérique reproduisant la dispersion des MES dans le réseau hydrographique du Rhône prend tout son intérêt dans cette étude de l'origine des particules et des contaminants lors des chasses. Ce modèle et les résultats de modélisation des chasses de 2012 sont présentés au Chap. 6.

4.4.1.3 Les flux de PCB et de mercure de 2011-2012

Bien que les teneurs en contaminants à Jons soient mesurées à une fréquence élevée, il ne s'agit pas de mesures en continu. Nous ne pouvons pas affirmer que les variations de teneurs en contaminants entre deux prélèvements sont négligeables, comme nous l'avions fait pour les C_s horaires mesurées sur l'Arve (Cf. §4.3.1.2).

Les trois méthodes d'interpolation utilisées dans la littérature (Cf. §1.4.1) pour le calcul de flux annuel de contaminants particulaires sont : A) la détermination d'une teneur moyenne annuelle de contaminant à partir des données collectées pendant l'année et sa multiplication par le flux de MES de l'année (F_A) ; B) la multiplication de la teneur mesurée lors d'un prélèvement par le flux de MES mesuré jusqu'au prélèvement suivant (F_B) ; et C) une interpolation linéaire des teneurs en contaminants entre deux prélèvements (F_C).

Nous proposons deux autres méthodes de calcul de flux de contaminants particulaires. La méthode D est basée sur l'observation de teneurs en contaminants variables entre les différents régimes hydrologique (Cf. Fig. 4.19). Dans cette méthode D, nous avons utilisé une teneur moyenne pour les 3 régimes hydrologiques : régime de base (Q<800 m^3/s), les périodes de crue (Q>800 m^3/s) et la période des chasses de barrage (Cf. Tab. 4.4.1.3).

Tableau 4.4 – Répartition des régimes hydrologiques et des flux de MES de l'année hydrologique 2011-2012 dans le Rhône à Jons.

	Durée (j)	Flux MES (Mt)
Année	366 (100 %)	0,69 (100 %)
Base	300 (82 %)	0,12 (18 %)
Crue	53 (14 %)	0,32 (46 %)
Chasse	13 (4 %)	0,25 (36 %)

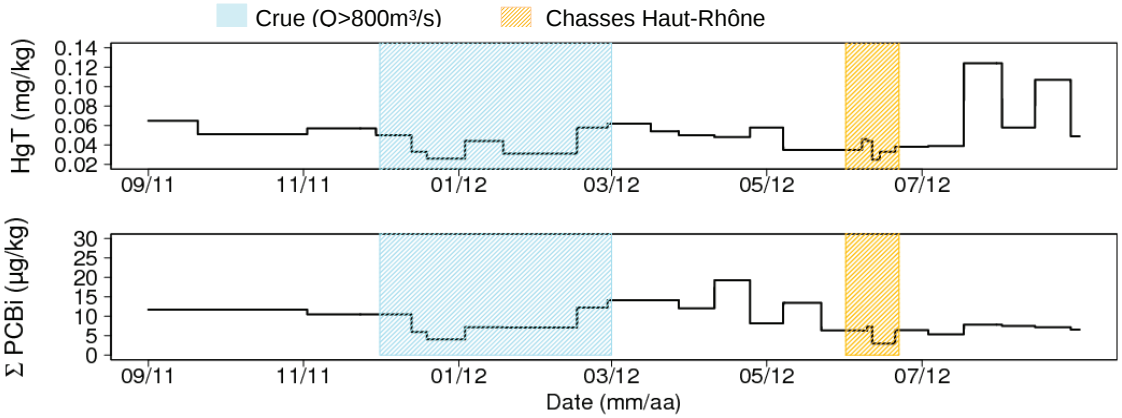
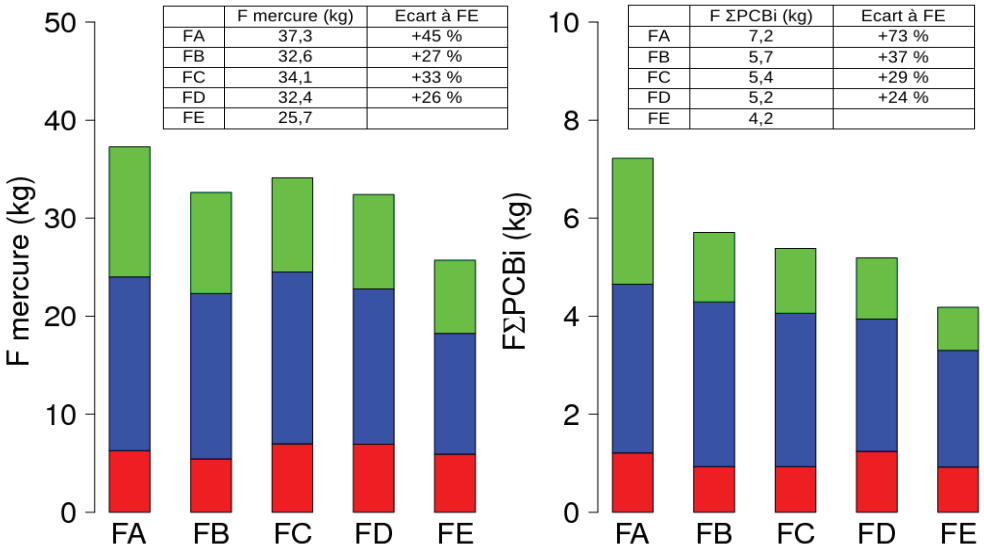


FIGURE 4.22 – Teneurs en mercure et en ∑PCBi des MES collectées dans les échantillons de piège à sédiments dans le Rhône à Jons en 2011-2012

La méthode E est basée sur l'utilisation des teneurs en mercure et en ∑PCBi mesurées dans les MES collectées avec le piège à sédiments installé à la station de Jons (Cf. §2.3.1.5 et §3.3.3). La teneur mesurée dans le piège est utilisée sur la période d'exposition du piège (Cf. Fig. 4.22).

Ces 5 méthodes ont été appliquées au suivi OSR à Jons pour l'année hydrologique 2011-2012, soit du 1er septembre 2011 au 31 août 2012. Les résultats obtenus sont présentés sur la Fig. 4.23. Pour le mercure et la ∑PCBi, le choix de la méthode de calcul a peu d'influence puisque les différences entre les résultats des différentes méthodes (au maximum d'un facteur 1,5 et 1,7 respectivement) restent très modestes par rapport à celles observés pour le flux de MES (Cf. §4.3).

Pour le mercure comme pour la ∑PCBi, la méthode A fournit les plus fortes valeurs de flux pour l'année hydrologique 2011-2012. C'est principalement le flux de contaminant des chasses de 2012 qui est responsable de la différence de flux entre les trois méthodes. En effet, si les chasses ne représentent que 4 % du temps sur l'année 2011-2012, leur flux de MES compte pour 36 % du flux de MES annuel (Cf. Tab. 4.4.1.3). Or, pendant la période des chasses, les teneurs en mercure et en ∑PCBi ont significativement diminué par rapport à la période avant les chasses (Cf. Fig. 4.19).



	F mercure (kg)	Ecart à FE
FA	37,3	+45 %
FB	32,6	+27 %
FC	34,1	+33 %
FD	32,4	+26 %
FE	25,7	

	F ΣPCBi (kg)	Ecart à FE
FA	7,2	+73 %
FB	5,7	+37 %
FC	5,4	+29 %
FD	5,2	+24 %
FE	4,2	

FIGURE 4.23 – Flux de mercure et somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) dans le Rhône à Jons pendant les périodes de régime de base, de crue et de chasse de l'année hydrologique 2011-2012, calculés selon les A, B, C, D et E.

Si les teneurs en contaminants n'avaient pas été mesurées pendant les chasses, les valeurs de flux de MES obtenues pour l'année 2011-2012 aurait été supérieures à celles obtenues d'un facteur 1,1 à 1,8, quelle que soit la méthode de calcul choisie, A, B ou C (Cf. Tab. 4.4.1.3). Par conséquent, il est important de tenir compte de la diminution de teneur mesurée pendant les chasses pour correctement estimer le flux de mercure et de $\sum$PCBi.

Les méthodes B et C présentent l'avantage de tenir compte des variations de teneurs d'un prélèvement à l'autre, tandis que dans la méthode A, les variations de teneurs sont lissées dans la moyenne. Cependant, bien que le suivi des contaminants ait été effectué à un pas de temps beaucoup fin que dans la plupart des suivis (de 15 jours en régime de base à 1 jour lors des chasse), il reste important. En effet, pour 15 jours de régime de base, le flux de MES est en moyenne de 6 000 t. Nous avons par ailleurs constaté au que les teneurs en mercure peuvent varier d'un facteur 2 en régime de base et la $\sum$PCBi d'un facteur 5, avec parfois des variations fortes entre deux prélèvements successifs (Cf. §4.4.1.2).

Tableau 4.5 – Flux de mercure et de $\sum$PCBi l'année 2011-2012 calculés par les méthodes A, B et C (Cf. §1.4.1) en utilisant ou non les teneurs mesurées pendant les chasses

	Flux Hg (kg) (Écart à FE)		Flux $\sum$PCBi (kg) (Écart à FE)	
Méthode	Avec Chasses	Sans Chasses	Avec Chasses	Sans Chasses
A	37,3 (+45%)	39,7 (+54%)	7,2 (+72%)	8,1 (+94%)
B	32,61 (+27%)	43,7 (+70%)	5,7 (+36%)	10,4 (+149%)
C	34,11 (+33%)	48,5 (+89%)	5,4 (+29%)	8,3 (+99%)

Les méthodes B et C sont toutes les deux concernées par le problème des fortes variations de teneurs entre deux échantillons éloignés dans le temps. Ce cas est particulièrement observé pour le prélèvement du 01/08/2012 pour lequel la teneur en mercure est la plus importante mesurée au cours de l'année 2011-2012 (0,11 μg/g de HgT). Ce prélèvement intervient un mois et demi après le dernier prélèvement (14/06/2012) pour lequel la teneur en mercure était de 0,03 μg/g. Les flux de mercure et de $\sum$PCBi pour cette période varient respectivement d'un facteur 2 et 1,3 selon la méthode utilisée pour le calcul, B ou C (Cf. Tab. 4.6).

Dans le cas de la méthode D, ce problème est partiellement résolu en prenant en compte les différences de teneurs en contaminants observées entre les régimes hydrologiques. Chaque régime hydrologique doit cependant être suffisamment caractérisé pour tenir compte des variations qui interviennent au cours des régimes.

La méthode E apparaît comme la meilleure alternative pour déterminer le calcul de flux de contaminants. En effet, les pièges à sédiments permettent d'intégrer les variations des teneurs en contaminants intervenant au cours de leur période d'exposition. Il faut toutefois veiller à les installer dans des conditions favorables pour qu'ils ne soient pas exposés à des particules grossières (Cf. §2.4.2) ; ce n'était pas le cas des échantillons collectés à Jons qui ne contenaient pas de particules grossières.

Tableau 4.6 – Flux de MES, de mercure et de $\sum$PCBi pour la période du 14/06/2012 au 01/08/2012 selon les méthodes de calcul A et B

Flux MES = 0,20 Mt		
Méthode	Flux Hg (kg)	Flux $\sum$PCBi (kg)
B	2,8	0,27
C	5,7	0,34
C/B	2	1,3

Pour conclure, les méthodes A, B et C de calcul de flux de contaminants particulaires présentent toutes les trois des inconvénients. Elles dépendent fortement de la fréquence d'échantillonnage et de la variabilité des teneurs échantillonnées. Il est difficile de choisir une méthode d'interpolation par rapport à l'autre sans avoir une meilleure connaissance des processus qui font varier les teneurs en contaminants des particules. La détermination de teneurs moyennes pour les 3 régimes hydrologiques observés permet de s'affranchir de principaux problèmes liés aux méthodes A, B et C. Pour les stations pour lesquels peu de données de contaminants sont disponibles, mais où une teneur différente est constatée entre les périodes de régime de base et les crues, il semble donc préférable d'appliquer cette méthode.

La meilleure technique pour calculer le flux de contaminants particulaires est toutefois d'installer un piège à sédiments qui intègre les variations de teneurs. Pour contrôler les conditions d'exposition du piège, des prélèvements ponctuels doivent être réalisés régulièrement et les particules collectées dans le piège doivent être caractérisées. Une fois ces contrôles effectués et l'éventuel biais granulométrique corrigé, les pièges représentent des outils très intéressants pour le suivi des flux de contaminants particulaires.

Dans le cas de Jons, et d'un suivi haute fréquence, les flux de mercure et de $\sum$PCBi de référence pour l'année hydrologique 2011-2012 sont ce obtenus par la méthode E. A Jons, si le choix de la méthode entraîne de fortes variations des résultats de flux pour de courtes périodes comme la chasse ou la période du 14/06 au 01/08, les flux à l'échelle annuelle obtenus sont en revanche peu variables d'une méthode à l'autre ; les écarts relatifs au flux de référence E des flux obtenus par les méthodes A à D sont au maximum de +45 % pour le mercure et de + 73 % pour la $\sum$PCBi (Cf. Fig. 4.23).

4.4.1.4 Effet de l'échantillonnage sur le flux de contaminant

Les données issues du réseau Eau et MES de l'AERMC ont été collectées avec une fréquence moyenne trimestrielle, en général entre 7 et 9h du matin (heure légale). Pour évaluer l'impact de cette fréquence d'échantillonnage sur le calcul de flux, nous avons sous-échantillonné le jeu de données obtenu de l'OSR pour l'année 2011-2012 (n=38) au pas de temps des prélèvements AERMC (90 jours). Pour effectuer cette étude, nous avons considéré que les teneurs mesurées dans le cadre du suivi l'OSR étaient constantes entre deux prélèvements. Nous avons alors constitué 90 sous-échantillons de 4 prélèvements à 8h et espacés de 90 j les uns des autres, chaque sous-échantillon commençant à une date différente. Les flux de mercure et de $\sum$PCBi calculés par les méthodes A, B et C (Cf. §4.4.1.3) pour chaque sous-échantillons sont comparés aux flux obtenus avec le jeu de données complet de l'OSR à Jons (Fig. 4.24).

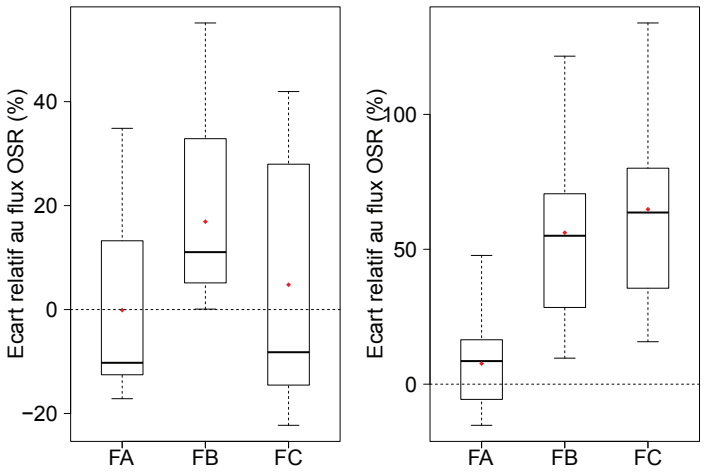


FIGURE 4.24 – Ecarts relatifs des flux de mercure (HgT) et de somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) calculés par les méthodes A, B et C à partir des 90 sous-échantillons issues du suivi OSR dégradé au pas de temps trimestriel (n=4), par rapport aux flux obtenus avec tout le jeu de données OSR, pour l'année 2011-2012 à Jons.

Les écarts relatifs extrêmes des flux sous-échantillonnés varient de -20 à +40 % pour le mercure et de -10 à +100 % pour la $\sum$PCBi. La grande variabilité des flux obtenus en reproduisant le pas de temps trimestriel du suivi AERMC montre que les flux calculés selon les 3 méthodes sont fortement influencés par la fréquence de l'échantillonnage. Une fréquence trimestrielle indépendante des régimes hydrologiques et des événements ne semble donc pas suffire pour estimer les flux de contaminants de façon robuste.

Les écarts relatifs des flux de mercure et de $\sum$PCBi obtenus avec les méthodes A à C sur la base d'un échantillonnage trimestriel par rapport au flux de référence FE pour l'année 2011-2012 sont de +10 à +100 % pour le mercure (médiane de 40 à 50 % selon la méthode) et de +40 à +200 % pour la $\sum$PCBi (médiane de 90 à 110 % selon la méthode). Le problème de l'échantillonnage temporel reste donc négligeable dans le cas du mercure par rapport aux erreurs entraînées par la méthode de calcul (écarts à Fe de +33 à +45 %, Cf. Fig. 4.23). Pour les PCB, le problème de l'échantillonnage vient augmenter l'erreur engendrée par le choix de la méthode (écarts à Fe de +29 à +73 %, Cf. Fig. 4.23).

4.4.1.5 Recherche des grandeurs d'influence de la teneur en contaminant

La recherche d'une relation entre la teneur en contaminants et une autre grandeur d'influence constitue une approche de modélisation de la teneur en contaminant (Cf. Chap. 2 et Meybeck (1992)) En effet, si une relation existe entre la teneur en contaminant et une grandeur d'influence mesurable en continu, la teneur en contaminant peut alors être reconstituée pour chaque pas de temps de

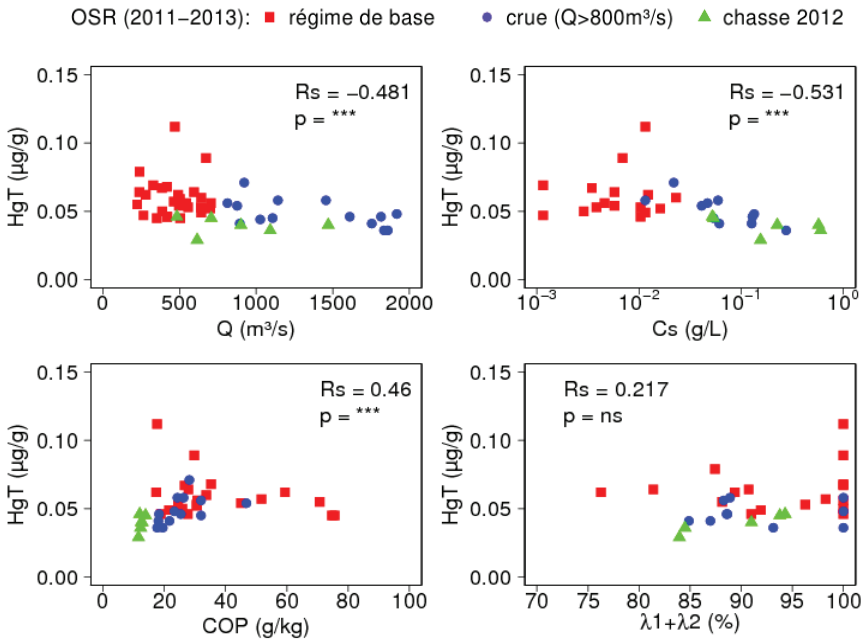
mesure du flux de MES. Les relations les plus couramment recherchées sont des relations puissance entre la teneur ou le flux de contaminants et le débit ou la C_s (Horowitz, 2008).

Nous disposons des données de débit pour les années 2000 à 2013 ; au cours desquelles les teneurs en contaminants ont été mesurées par l'AERMC et l'OSR. Les C_s ont été mesurées en continu entre 2010 et 2013 et dans le cadre du suivi OSR, nous disposons également des données de teneur en COP et de granulométrie pour lesquels il est intéressant de chercher à établir une relation avec la teneur en contaminants. En effet, bien que ces deux paramètres ne sont pas mesurables en continu, ils peuvent toutefois être mesurés plus facilement et de façon moins onéreuse que les PCB indicateurs.

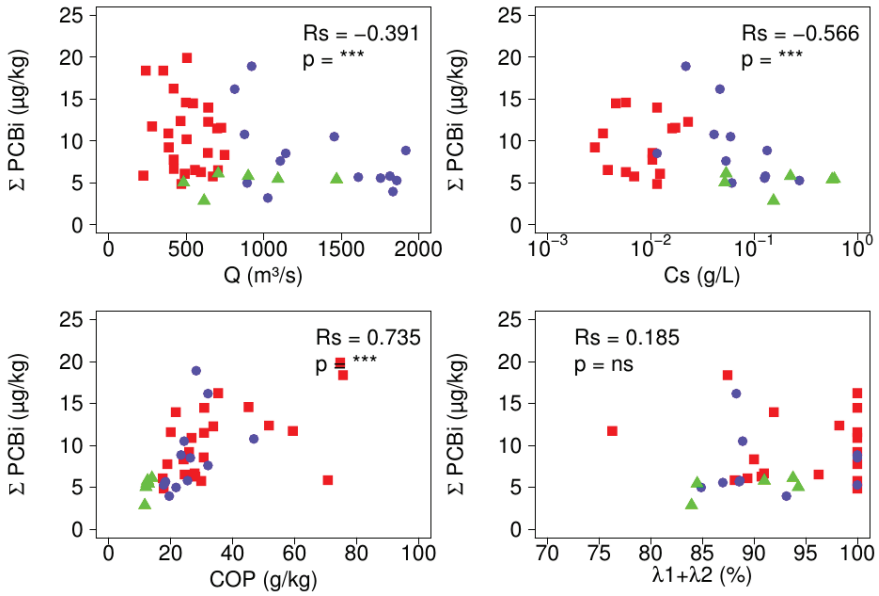
Le coefficient de Spearman (Rs) est utilisé comme indicateur de corrélation entre les deux variables mises en relation et le résultat du test de significativité de la corrélation est exprimé à l'aide de la p-value (p). La teneur en mercure des MES du Rhône à Jons ne montre pas de corrélation significative avec le débit, C_s , le COP et la proportion de particules fines dans les échantillons (Cf. Fig. 4.25a). Les $|Rs|$ sont inférieurs à 0,55, ce qui reste faible.

La $\sum$PCBi ne montre également pas de corrélation forte et significative avec le débit, la concentration en MES et la granulométrie (Cf. Fig. 4.25b). En revanche, une corrélation positive forte est obtenue avec le COP. Nous avions déjà observé cette corrélation au § 4.4.1.2, qui permettait d'expliquer les variations de $\sum$PCBi au cours des chasses 2012.

Minaudo (2011) et Dutordoir *et al.* (2012) ont observé pour plusieurs métaux analysés dans les MES de l'Isère, notamment au cours de la crue de mai 2008, que les teneurs se stabilisent autour d'une valeur appelée "minimum en crue" lorsque les concentrations en MES augmentent. Ils suggèrent que cette valeur caractérise le bruit de fond géochimique provenant de l'amont. Cette observation d'une valeur limite de dilution est également faite par Tronczynski et Héas-Moisan (1996) pour les teneurs en PCBi dans les MES du Rhône. Selon les auteurs, ceci indique que les particules transportées par les fortes crues méridionales contiennent une concentration relativement constante en PCB. Nous ne disposons pas d'assez de données en crue pour déduire une telle valeur, bien qu'une tendance à la stabilisation des teneurs pour des débits $>$ 1000 m^3/s et des concentrations en MES $>$ 0,1 g/L semble se dessiner.



(a)



(b)

FIGURE 4.25 – (a) Teneur en mercure total (HgT) et (b) somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) dans le Rhône à Jons en fonction du débit (Q), de la concentration en MES (Cs), de la teneur en carbone organique particulaire (COP) et de la proportion (λ) des sous-populations granulométriques fines (1-10 μm et 10-27 μm). Données issues des suivis OSR (2011-2013). Coefficient de corrélation de Spearman (Rs) et p-value (p)

Pour le mercure comme pour la $\sum$PCBi, nous obtenons une corrélation forte et significative entre la concentration en contaminant (exprimée en ng/L) et le débit, qui est principalement due

à la corrélation entre la concentration en MES et le débit discutée au §4.3. Ce type de corrélation a également été observé par Dutordoir *et al.* (2012) pour les métaux dans les MES de l'Isère, qui établissent une relation puissance entre la concentration en métaux et le débit.

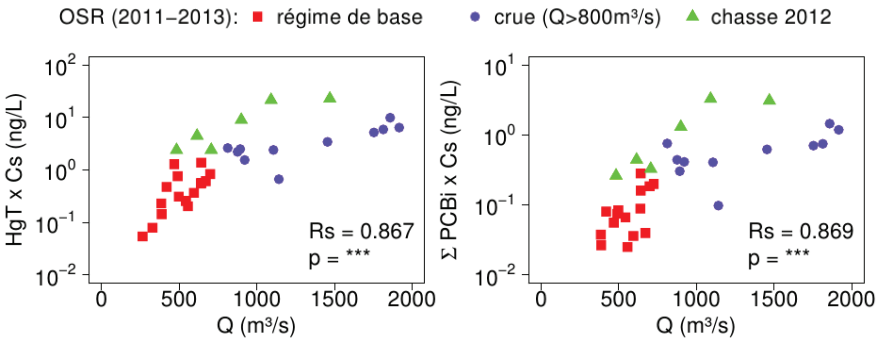


FIGURE 4.26 – (a) Concentration en mercure total (ng/L) et (b) concentration en ∑PCBi (ng/L) en fonction du débit (Q) dans le Rhône à Jons. Données issues du suivi OSR (2011-2013). Coefficient de corrélation de Spearman (Rs) et p-value (p)

Cette étude nous a permis de montrer qu'il n'existe pas de relation simple entre la teneur en contaminant particulaire et une grandeur d'influence, mesurable en continu telle que le débit ou la concentration en MES. Pour la ∑PCBi, une corrélation significative existe avec la teneur en COP, toutefois le COP n'étant pas mesuré en continu, cette corrélation ne permet pas de reconstituer une chronique continue de teneur en ∑PCBi.

Les données dispersées obtenues pour le régime de base confirment des comportements différents en période de régime de base (avant / après les chasses de 2012). La dispersion des données en crue pourrait être dû à des crues d'origine différentes, transportant des MES avec des contaminations différentes. L'identification et la prise en compte de l'origine des MES semble indispensable pour améliorer la reconstitution de la variabilité des teneurs en contaminants. De tels travaux sont en cours dans le cadre de l'OSR, où des marqueurs de l'origine des MES sont recherchés pour identifier la provenance des particules qui circulent dans le Rhône lors de différents événements hydrologiques (Piégay et *et al.*, 2008).

4.4.2 Choix d'une méthode de calcul pour les différentes stations

Nous disposons d'un moins grand nombre de données pour les affluents qu'à la station du Rhône à Jons ou à Arles. Dans le cas d'un suivi avec peu de données, la méthode de calcul des flux proposée pour limiter l'impact de l'échantillonnage est d'établir une moyenne propre aux régimes hydrologiques base, crue et chasse. En effet, nous avons mis en évidence qu'une différence de teneur était observée entre les périodes de régime de base et les périodes de crue sur les différents affluents

(Cf. §4.4.1.2 et Fig. 4.19). De plus, l'étude des données du réseau de l'AERMC a montré la relative stabilité des teneurs en mercure au cours de la période 2000-2007 ; c'est pourquoi nous faisons l'hypothèse que les teneurs moyennes propres aux régimes obtenues dans le cadre du suivi OSR sont applicables aux 10 dernières années pour le calcul de flux interannuel.

Pour l'Isère, nous ne disposons pas de données de contaminants issues du réseau OSR. Nous avons donc utilisé les données issues du suivi AERMC, entre 2007 et 2009 pour les PCB et entre 2000 et 2007 pour le mercure. Ces teneurs sont utilisées en considérant qu'elles peuvent varier d'un facteur 2 environ, sur la base des observations faites aux autres stations communes des suivis AERMC et OSR (Cf. §3.5.3.2).

4.5 Conclusion

Ce chapitre a permis d'appréhender la variabilité spatio-temporelle des trois paramètres du flux.

Parmi les trois paramètres du flux particulaire, la concentration en MES est celui qui varie le plus fortement. La prise en compte de ces variations est indispensable pour évaluer correctement les flux de MES et de contaminants particulaires. Cette prise en compte nécessite un suivi continu et des méthodes de reconstitution adaptées de la dynamique.

La variabilité temporelle de la teneur en contaminant au sein d'une station est liée à des changements de caractéristiques des particules porteuses, en termes de teneur en COP et de granulométrie, liées à leur origine sur le bassin versant. En fonction des événements hydrologiques, l'origine des particules transitant à une station peut en effet être différente. Nous avons observé que pour les affluents, les différences de teneurs en contaminants entre les crues et le régime de base sont atténuées une fois les teneurs en contaminant corrigées par les teneurs en COP.

Les différences de teneurs en contaminants entre les affluents en revanche ne sont pas uniquement liées à des différences de caractéristiques des particules, puisque la normalisation par les teneurs en COP ne permet par d'atténuer les différences observées entre les affluents. Ce sont donc les niveaux de contamination qui diffèrent d'un affluent à l'autre, et ceci est liée à des origines de contamination différentes et des niveaux d'imprégnation des bassins versants différents.

Nous avons mis en évidence l'intérêt majeur des pièges à sédiments pour le suivi des flux de contaminants. Installés dans des conditions permettant d'éviter une exposition aux particules grossière, ils permettent d'intégrer les teneurs en contaminants sur la période d'exposition. Ils évitent ainsi le problème de la méthode de reconstitution des teneurs rencontré avec les autres méthodes de calcul.

5 Les flux de MES, de PCB et de mercure dans le Rhône

5.1 Introduction

Ce chapitre présente les flux de MES et de contaminants calculés sur le Haut-Rhône et le Rhône et leurs principaux affluents, à l'échelle événementielle, annuelle et pluriannuelle. Les variations de ces flux en fonction de l'hydrologie, entre les périodes de régime de base et de crues notamment, sont présentées. On distingue la production "naturelle" des sous-bassins versants des affluents et les impacts des aménagements (éclusées, chasse, manœuvre d'ouvrages en crue). D'où viennent les MES et les contaminants associés qui transitent dans le Rhône, de quels affluents, de quelles parties du bassin versant ? Comment se déplacent les particules dans le réseau, où s'arrêtent-elles ?

Tout d'abord, l'impact sur les flux des manœuvres d'ouvrages lors d'événements exceptionnels est présenté à travers l'étude de l'événement hydrosédimentaire de mai-juin 2008 sur l'Isère, la Durance et le Rhône, et des opérations de chasse des barrages du Haut-Rhône de juin 2012.

Puis, les bilans de flux annuels et inter-événementiels établis par l'OSR en 2011-2012 et sur dix ans sont établis et discutés à l'échelle du réseau. Nous discutons alors la notion de flux moyens pluri-annuels. Ensuite, les flux moyens et les flux moyens spécifiques aux différentes stations du réseau sont présentés et comparés avec les valeurs de la littérature. Enfin, nous présentons les résultats des analyses spatiales quantitatives et qualitatives menée sur le bassin versant du Rhône et nous discutons les limites et les intérêts des deux approches.

Nos travaux précédents sur les incertitudes nous permettent de proposer des gammes d'incertitudes associées aux évaluations de flux, en fonction de la qualité et de la quantité des données disponibles (Cf. Chap. 3) et des méthodes de calculs (Cf. Chap. 4). Ainsi, l'incertitude estimée sur les flux est exprimée dans les figures et tableaux à l'aide des symboles :

- (-) : incertitude 20 à 30 %, flux mesuré ;

- (?) : incertitude 50 %, flux reconstitué à partir d'un nombre suffisant de données ;
- (? ?) : incertitude 100 %, flux reconstitué à partir d'un faible nombre de données.

5.2 Dynamique intra-événementielle

5.2.1 L'événement de mai-juin 2008 sur l'Isère, la Durance et le Rhône aval

Les données collectées quotidiennement à la station d'observation du Rhône à Arles (SORA) ont permis d'établir que le Rhône déverse en moyenne 6,74 Mt de MES par an dans la Méditerranée (Pont *et al.*, 2002; **?**). En décembre 2003, une crue de fréquence de retour supérieure à 50 ans (Q = 11 500 m^3/s) aurait produit près de 5 Mt de MES en 6 jours, selon Ollivier *et al.* (2010); Eyrolle *et al.* (2012). Entre le 26 mai et le 8 juin 2008, SORA a enregistré des flux de MES aussi importants que ceux observés pendant la crue de décembre 2003, alors que les débits sont restés à un niveau relativement modéré, au maximum à 5 000 m^3/s (Eyrolle *et al.*, 2012). La compréhension de l'origine de ces flux inhabituels est un enjeu pour la quantification des flux à la mer.

Les données de débits et de concentrations en MES collectées par la CNR, EDF et le LTHE sur le Rhône, l'Isère et la Durance au cours de cette période ont été regroupées dans le cadre de l'OSR (Cf. Chap. 3). A partir de ces données, les flux de MES de l'Isère, du Rhône et de la Durance ont été quantifiés et interprétés, en distinguant deux phases dans l'événement. Aucune donnée de contaminants n'ayant été collectées au cours de ces événements, les flux de contaminants particulaires ne sont pas étudiés dans cette section.

En première période (cf. Fig.5.1.a), le pic de MES à 30 g/L mesuré sur l'Arc le 29/05/2008 est enregistré à Grenoble, où il atteint environ 20 g/L, avec un jour de décalage. Le flux de MES de l'Arc associé à cet événement est de 1,0 Mt, ce qui correspond à 38 % du flux de MES passé pendant la même semaine à Grenoble. L'Isère à l'amont de la confluence avec l'Arc étant peu productif en MES, le reste du flux enregistré à Grenoble pourrait provenir de la remobilisation des sédiments déposés dans le lit entre Pontamafrey et Grenoble. Antoine (2013) a en effet montré que des remobilisations de sédiments du lit ont lieu pendant les événements de chasse.

L'augmentation du flux de MES entre Tullins et Grenoble est associée à la chasse du barrage de St Egrève qui a eu lieu au cours de la dernière semaine de mai. Le déstockage engendré par cette chasse est estimé à 1,1 Mt de MES, ce qui est cohérent avec l'estimation de Rieux (2008). Selon le flux estimé à Romans, au cours de la première semaine, un stockage de 0,7 à 1,9 Mt de MES pourrait avoir eu lieu dans les retenues de la basse Isère ; néanmoins ce stockage reste une hypothèse étant donnée l'incertitude importante (100 %) sur le flux de MES estimé à Romans.

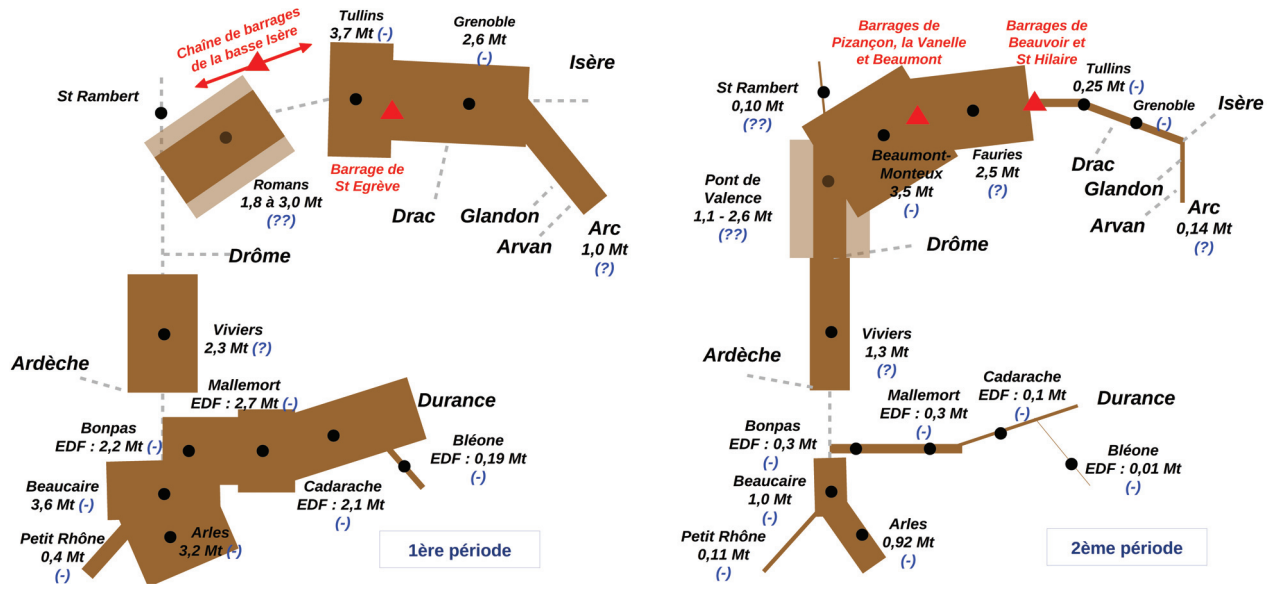


FIGURE 5.1 – Flux de MES (en Mt) dans le réseau hydrographique, pendant la crue du Rhône de mai-juin 2008 : (a) première phase du 26/05/08 au 03-05/06/08 et (b) deuxième phase du 03-05/06/08 au 10/06/08. Épaisseur des traits proportionnelle au flux de MES. (?) incertitude associée au flux (Cf. 5.1)

La somme des apports du Rhône à l'amont de la confluence (0,1 Mt, ce qui est négligeable) et de l'Isère (1,8 à 3,0 Mt) est du même ordre de grandeur que le flux calculé à Viviers (2,3 Mt). On peut donc considérer que la majeure partie du flux passant à Viviers pendant cette période vient de l'Isère. Le flux de la Durance estimé par EDF est de 2,2 Mt ± 30 %. Les calculs de flux sur l'Isère et à Viviers indiquent qu'une part importante des MES ayant transité à Beaucaire et à Arles en mai-juin 2008 provient de l'amont. L'écart entre la somme du flux de la Durance et du flux calculé à Viviers par rapport au flux obtenu à Beaucaire est de +20 %, ce qui est proche de l'incertitude associée à ces estimations de flux. La différence entre la somme des apports et le flux aval indique un faible stockage des MES entre Viviers et la zone deltaïque pour cet événement, que ce soit dans les retenues, Vieux-Rhône, marges ou annexes fluviales situés sur le bas-Rhône. Marion *et al.* (2010) ont fait l'hypothèse que la Durance était la principale source de MES pendant cette période. Cependant, le flux provient pour moitié de la Durance seulement et l'autre moitié vient du Rhône amont et de l'Isère.

La deuxième période (Cf. Fig. 5.1.b) correspond à la semaine de chasse des 5 barrages de la chaîne de barrages de la basse Isère situés entre Tullins et Beaumont-Monteux. Le flux de MES à Tullins est de 0,25 Mt, indiquant que la chasse du barrage de St Egrève était terminée. L'Arc contribue à 56 % du flux mesuré à Tullins, le reste provenant soit de l'Isère amont, soit du Drac ou de la remobilisation des sédiments du lit. La différence de flux entre Tullins, le pont de Fauries et

Beaumont-Monteux permet d'estimer que le déstockage associé à la chasse des barrages de Beauvoir et Saint Hilaire est de l'ordre de 2,2 Mt de MES et que la chasse des barrages de Pizançon, la Vanelle et Beaumont a produit 1,0 Mt supplémentaire. Le bilan de la chasse de la chaîne de barrages est donc de l'ordre de 3,2 Mt déstockées, alors que 1,9 Mt de MES avaient été stockées pendant la première période (venant de St Egrève et des apports amont). Ces valeurs de flux sont du même ordre de grandeur que celles calculées par EDF dans Rieux (2008).

La somme des flux du Rhône amont, toujours supposée négligeable, et de l'Isère est 2,8 fois supérieure au flux calculé à Viviers (1,3 Mt). Les MES en provenance de l'Isère auraient donc rapidement décanté dans le réseau entre Beaumont-Monteux et Viviers. Comme déjà discuté au Chap. 3, le flux du Rhône à Valence est délicat à estimer en raison du mauvais mélange au niveau de la confluence Isère/Rhône. Pour cette deuxième période, la valeur de flux au pont de Valence peut donc varier de 1,1 à 2,6 Mt selon l'hypothèse de mélange retenue. Cet ordre de grandeur de flux est confirmé par le flux de 1,3 Mt mesuré en aval à Viviers, compris dans la gamme de flux estimée à Valence. Une interception très importante du flux solide issu de l'Isère, de 0,90 à 2,2 Mt, semble donc avoir eu lieu dès l'aménagement de Bourg-lès-Valence et dans les aménagements aval du Rhône comme Beauchastel, Logis-Neuf et Montélimar, situés avant Viviers. Ces flux ne concernent que les MES, et ne prennent donc pas en compte le sable qui a pourtant été retrouvé dans les dépôts de Bourg-lès-Valence.

Le flux de la Durance pour cette deuxième période a été estimé à 0,30 Mt ± 30 % par EDF. L'écart entre la somme du flux de la Durance et du flux à Viviers par rapport au flux à Beaucaire est de +45 %. Cet écart suggère une décantation des MES entre la confluence de la Durance et du Rhône et Beaucaire. Cette décantation reste toutefois à nouveau peu significative eu égard aux incertitudes sur les flux. Durant cette deuxième période, le flux de la Durance représente environ 20 % des flux du Rhône à la confluence Durance/Rhône. Le flux mesuré à Beaucaire semble avoir été conservé à Arles et jusqu'au delta.

Pour l'ensemble de la période, du 26/05/08 et le 10/06/08, le flux de MES cumulé à Arles est de 4,1 Mt +/- 30 % de MES. Pour la période du 28/05/08 au 12/06/08 Eyrolle *et al.* (2012) estiment ce flux à 4,7 Mt +/- 30 %. Ces résultats sont du même ordre de grandeur mais la différence, significative, est sans doute liée au mode de calcul puisque nous avons utilisé les mêmes données. Eyrolle *et al.* (2012) font un calcul en journalier en dehors de la crue et moyenné sur le pas de temps de mesure pendant la crue. Notre calcul est basé sur une interpolation linéaire des concentrations en MES entre les mesures pour obtenir une chronique horaire à multiplier par le débit horaire.

Tableau 5.1 – Flux cumulés (en Mt) sur la totalité de l'événement de mai-juin 2008 aux points-clés du réseau hydrographique (* estimation réalisée sans mesure).

Flux de MES (Mt)					
	St-Rambert	Isère	Viviers	Durance	Beaucaire
phase 1	0,1*	1,8 à 3,0	2,3	2,2	3,7
phase 2	0,1	3,5	1,3	0,3	1,0
total	0,2	5,3 à 6,5	3,6	2,5	4,7

Le Tab. 5.2.1 détaille les flux cumulés obtenus aux points-clés du réseau hydrographique pour les deux phases et la totalité de l'événement. Les calculs de flux montrent que les flux de MES en sortie du système à Beaucaire sont constitués à 53 % d'apports en provenance de la Durance, le reste provenant essentiellement de l'Isère, dont une importante partie du flux (58 à 66 %) s'est déposée dans le réseau hydrographique avant d'atteindre Beaucaire.

Cette étude a permis de rassembler les données de débits et de concentration en MES en continu collectées par les différents producteurs et d'étudier les flux de MES en différentes stations-clés du réseau hydrographique. Les valeurs de flux obtenues apparaissent cohérentes entre elles, et les processus de production, propagation et stockage sédimentaires sont nettement visibles d'une semaine à l'autre et sur chaque tronçon documenté.

Comme le soulignent Eyrolle *et al.* (2012), la crue de 2008 présente un caractère exceptionnel, avec des flux de MES très importants qui s'expliquent par le caractère semi-artificiel de l'événement. A Arles, si le débit enregistré était bien moindre que lors de la crue centennale de 2003 (5 000 m^3/s contre 11 500 m^3/s), le flux de MES a été équivalent pour les deux événements. La gestion des ouvrages de la Durance pendant la crue de 2008 a en effet conduit à modérer les débits tout en laissant passer de grandes quantités de MES. Nos résultats permettent toutefois de relativiser la part de la Durance dans le transit sédimentaire au cours de cette période et de mettre en avant la part des affluents amont et notamment de l'Isère, sur laquelle les manœuvres d'ouvrage ont également joué un grand rôle sur le stockage et la production sédimentaire. Marion *et al.* (2010) supposaient que l'essentiel des sédiments transités et déposés sur le pro-delta du Grand-Rhône provenaient de la Durance, hypothèse qu'il convient donc de réviser.

On retiendra de cette étude que les flux de MES de l'Isère en début d'événement sont issus des affluents mais aussi du déstockage de sédiments consécutif à la chasse de St Egrève. Ils sont en partie décantés à l'aval de l'Isère. Le flux est ensuite conservé jusqu'à la confluence de la Durance qui fournit de l'ordre de 50 % des MES mesurées à Beaucaire pour cette première phase. La seconde

phase est marquée par la prépondérance des apports de l'Isère. Ceux-ci sont issus pour l'essentiel des chasses de barrage de la basse Isère. Les particules issues de l'Isère se sont alors stockées en bonne partie dans le réseau hydrographique entre l'aval de l'Isère et Viviers. En aval, les apports de la Durance représentent seulement un tiers du flux mesuré à Beaucaire, le reste provenant donc de l'amont et donc de l'Isère.

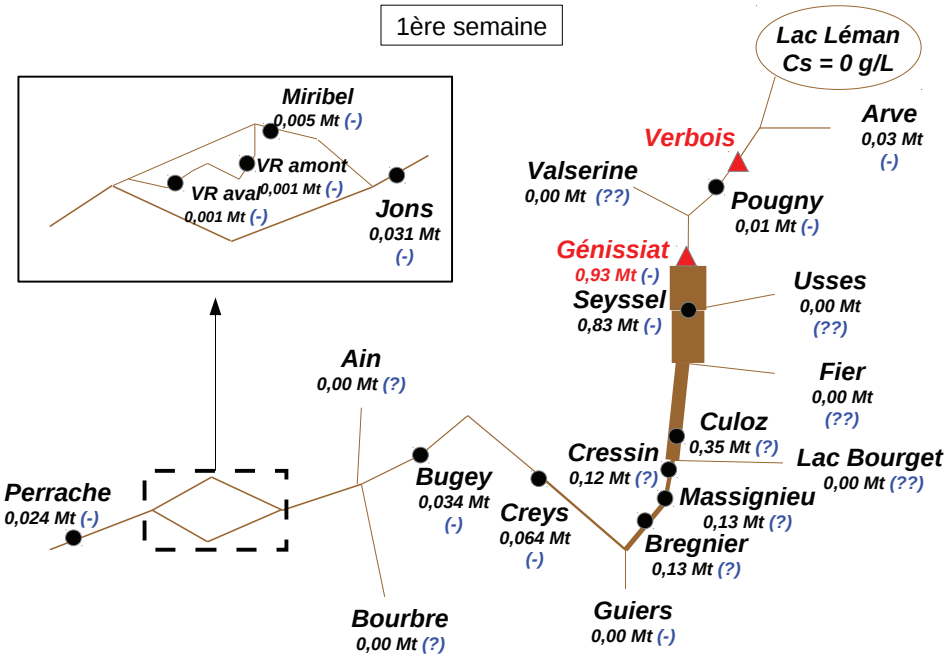
Cet événement hydro-sédimentaire bien documenté constitue un cas intéressant à modéliser à l'aide du modèle hydraulique-MES du Rhône (code MAGE ADIS-TS, Cf. Chap. 6). Le modèle est actuellement construit jusqu'à la mer et simuler l'événement de 2008 permettrait le paramétrage (notamment des aménagements) sur ce secteur allant de l'Isère à la mer.

5.2.2 Les chasses du Haut-Rhône 2012

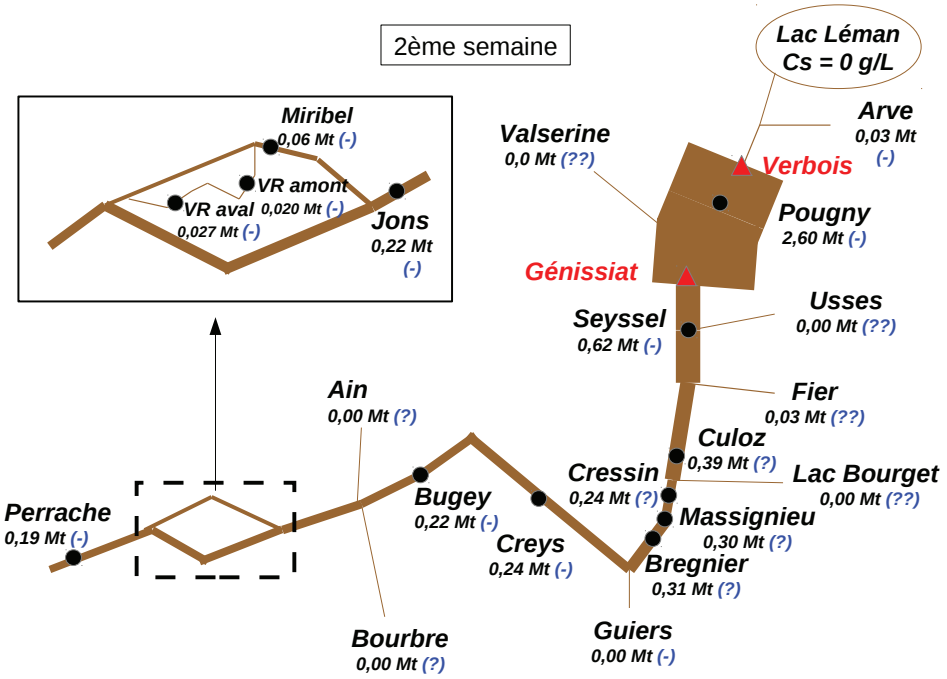
Les opérations de chasse du Haut-Rhône de 2012 se sont déroulées du 4 au 18 juin, avec l'abaissement de la retenue de Génissiat au cours de la première semaine (début le 4 juin) et l'abaissement de la retenue de Verbois la deuxième semaine (début le 9 juin). Le suivi effectué par les équipes de la CNR, d'EDF, de Véolia et d'IRSTEA au cours des deux semaines (Cf. Chap. 3 et Fig. 3.7) permet d'avoir une vision synoptique de la propagation sur l'ensemble du réseau hydrographique d'un gros stock de MES.

Les résultats des calculs de flux de MES sur le Haut-Rhône pour les deux semaines d'opérations de chasse sont présentés sur les Fig. 5.2.a et 5.2.b.

La première semaine (Cf. Fig. 5.2.a), l'Arve en crue a produit environ 0,032 M t de MES qui ont en partie été stockées derrière le barrage de Verbois, puisque seules 0,007 Mt ont été mesurées à Pougny. Ces quantités restent toutefois négligeables par rapport aux 0,930 Mt de MES libérées par Génissiat. Ces MES se sont rapidement déposées dans le réseau puisqu'une différence de 0,100 Mt est observée entre Génissiat et Seyssel. A Culoz, le flux mesuré correspond à seulement 40 % du flux de Génissiat. Les autres affluents n'ont pas produit de quantités significatives de MES au cours de cette semaine. Entre Culoz et Cressin, le flux diminue encore de moitié. En revanche, dans la zone entre Cressin, Massignieu et Brégnier, on observe une reprise locale de MES de 0,015 Mt. Le flux est ensuite divisé par deux entre Bregnier et Creys, puis entre Creys et Bugey. Le barrage de Villebois, situé entre ces deux stations, doit favoriser la retenue d'une partie des MES et créer une zone de dépôt.



(a)



(b)

FIGURE 5.2 – Flux de MES (en Mt) sur le Haut-Rhône : (a) semaine du 04/06/2012 au 10/06/2012 (abaissement de Génissiat) et (b) semaine du 10/06/2012 au 18/06/2012 (abaissement de Verbois).

A l'aval, 90 % du flux de Bugey est retrouvé à Jons. L'Ain n'étant pas en crue cette semaine là, la section du Rhône en amont de la diffluence de Jons devait être homogène et l'enregistrement de turbidité à Jons représentatif de l'ensemble du Rhône. Les concentrations en MES circulant dans le canal de Jonage devaient être équivalentes à celles du canal de Miribel. En faisant cette hypothèse d'homogénéité des concentrations, il est possible d'estimer le flux entrant dans le canal de Miribel au cours de la première semaine. En prenant le débit entrant dans le canal de Miribel (calculé à partir de la consigne de gestion du barrage de Jons) et en le multipliant par la concentration en MES mesurée à la station de Jons, on obtient un flux entrant dans le canal de Miribel de 0,010 Mt la première semaine. Le flux mesuré dans le canal de Miribel au niveau de la diffluence entre le canal et le Vieux-Rhône est de 0,005 Mt. Une décantation de 0,005 Mt aurait donc eu lieu dans le canal de Miribel amont. Entre Jons et Perrache, 0,007 Mt se sont déposées au total. Le canal de Miribel amont serait donc la zone la plus importante de dépôt entre ces deux stations. Un dépôt a également eu lieu dans le Vieux Rhône, puisqu'on observe une différence de flux de 500 t entre l'amont et l'aval.

Au cours de la seconde semaine (Cf Fig. 5.2.b), l'Arve, de nouveau en crue, a produit 0,026 Mt de MES. Ce flux ne représente toutefois que 1 % du flux libéré par le barrage de Verbois. En effet, 2,6 Mt de MES ont été enregistrées à Pougny. Environ 2,0 Mt se sont ensuite déposées entre Pougny et Seyssel. Entre Seyssel et Cressin, le Fier en crue a apporté environ 0,027 M t de MES. Le dépôt dans ce bief est donc de l'ordre de 0,400 Mt. Comme lors de la première semaine, une reprise est mesurée dans la zone entre Cressin et Brégnier. Cette reprise est de l'ordre de 0,050 Mt. Entre Brégnier et Creys, le Guiers en crue a apporté 0,003 Mt de MES supplémentaires. Le dépôt est donc de l'ordre de 0,073 Mt entre Brégnier et Creys. Entre Creys et Bugey, 0,025 Mt de MES se sont déposées.

Le flux mesuré à Jons est de 0,222 Mt. Cependant, cette valeur ne prend pas en compte l'hétérogénéité de la section constatée au niveau de Jons lorsque l'Ain est en crue. Pour obtenir cette valeur, la chronique de concentration mesurée à Jons est multipliée par la chronique de débit du Rhône total. Or, l'Ain était en crue pendant cette seconde semaine. La chronique de concentration en MES à Jons n'est donc pas représentative de l'ensemble de la section, mais seulement de ce qui passe dans le canal de Jonage. Le flux à Jons présenté sur la Fig. 5.2.b est donc probablement surestimé. En faisant l'hypothèse que les eaux de l'Ain et du Rhône ne sont pas du tout mélangées, on obtient un flux de 0,15 Mt pour cette période. Le flux de MES circulant à l'amont de la diffluence de Jons pendant cette période est compris entre ces deux valeurs extrêmes.

Le flux entrant dans le canal de Miribel doit donc également être estimé selon les deux hypothèses, soit en considérant que les eaux de l'Ain et du Rhône ne sont pas du tout mélangées (sous-estimation), soit en considérant qu'elles sont complètement mélangées et que la concentration

en MES mesurée à Jons est représentative de la section (surestimation). On obtient 45 000 t et 113 000 t, respectivement. Le flux enregistré dans le canal de Miribel juste avant la diffluence avec le Vieux Rhône est de 61 000 t. On peut supposer que puisque les débits étaient importants dans le canal de Miribel pendant la seconde semaine (jusqu'à 1 400 m^3/s), peu de dépôt a eu lieu dans ce tronçon. Dans le Vieux-Rhône, le flux mesuré à l'aval est supérieur au flux mesuré à l'amont, ce qui indique une reprise des MES dans ce bief. Ainsi, il semble que l'ouverture du barrage de Jons pour laisser passer les forts débits du Rhône a permis d'obtenir des vitesses suffisantes pour éviter le dépôt des MES dans le canal de Miribel et le Vieux-Rhône. Par ailleurs, le mauvais mélange des eaux de l'Ain peu chargées et du Rhône très chargées a permis de faire passer dans le canal de Miribel plutôt les eaux de l'Ain, ce qui a contribué à éviter un dépôt trop important dans la zone.

Le flux solide évalué à partir des mesures ADCP réalisées le 13/06/2012 dans la section de la Fig. 3.10b est de 560 kg/s, en estimant que la concentration en rive droite est de 200 mg/L. Le flux solide calculé à partir de la concentration en MES mesurée à la station de Jons (550 mg/L) et du débit du Rhône (1300 m^3/s) au moment des mesures ADCP est de 715 kg/s. Ce calcul surestime donc d'environ 30 % le flux mesuré ; ce qui confirme que dans ce cas particulier de la crue de l'Ain, la C_s mesurée à Jons n'est pas représentative de la concentration en MES sur la section. Le flux de MES du Rhône ne peut dans ce cas pas être calculé directement en appliquant la concentration en MES à Jons au débit du Rhône.

En faisant l'hypothèse extrême que les eaux de l'Ain et du Rhône amont ne sont pas du tout mélangées au niveau de la station de Jons, le flux de MES du Rhône au niveau de Jons $\phi(t)$ peut être calculé de la façon suivante :

$$\phi(t)_{\text{Jons}} = Cs_{\text{Ain}} Q_{\text{Ain}} + Cs_{\text{Rhône amont}}\, Q_{\text{Rhône amont}} \tag{5.1}$$

Les débits du canal de Jonage et du canal de Miribel mesurés à l'ADCP le 13/06/2012, étaient de 580 m^3/s et 720 m^3/s respectivement, et le débit de l'Ain était de 500 m^3/s. Puisque le débit de l'Ain était inférieur au débit du canal de Miribel, on peut considérer que toutes les eaux de l'Ain sont passées dans le canal de Miribel et que la station de Jons a mesuré la concentration des eaux venant du Rhône avant la confluence Ain-Rhône.

Pour le 10/06/2012, le flux du Rhône à Jons calculé à partir de l'Eq. 5.1 est de 470 kg/s. Le flux jaugé se situe donc dans la fourchette des flux calculés en faisant les deux hypothèses :

- pas de mélange des eaux du Rhône et de l'Ain et la concentration mesurée à Jons est celle du Rhône amont ;

– le mélange des eaux entre l'Ain et le Rhône est effectif et la concentration mesurée à Jons est représentative de la section.

Pour la semaine du 10 au 18 juin 2012, le flux de MES calculé à partir de la mesure horaire à Jons et du débit du Rhône total est de 0,22 Mt. Or, pendant cette semaine, l'Ain était en crue, la consigne d'exploitation de l'usine de Cusset était dépassée, et le débit dans le canal de Miribel était supérieur au débit de l'Ain. La station de Jons a probablement vu passer uniquement les concentrations en MES du Rhône amont et le flux calculé est donc surestimé. En faisant l'hypothèse que les eaux de l'Ain et du Rhône amont ne sont pas du tout mélangées, on obtient un flux de 0,15 Mt pour cette période. Le flux de MES circulant à l'amont de la diffluence de Jons pendant cette période est compris entre ces deux valeurs extrêmes (0,15 à 0,22 Mt).

Les flux et les teneurs moyennes de mercure et $\sum$PCBi mesurées aux stations de Pougny, de Seyssel, de Creys et de Jons au cours des deux semaines de chasse du Haut-Rhône de juin 2012 sont présentés dans le Tab. 5.2.2. Les teneurs moyennes observées pendant les deux semaines de chasse augmentent de l'amont vers l'aval environ d'un facteur 1,5 pour le mercure et d'un facteur 2 pour la $\sum$PCBi. Ces variations de teneurs sont faibles devant les variations de flux observées (d'un facteur 26 en 1ère semaine et 12 en 2ème semaine environ) de l'amont vers l'aval du réseau, qui sont principalement liées aux variations des concentrations en MES (d'un facteur 65 en 1ère semaine et 36 en 2ème semaine environ). Dans le cas particuliers des chasses de barrage, alors que la majeure partie des particules provient d'une même source (la retenue du barrage vidangé), les flux de contaminants sont donc principalement contrôlés par les flux de MES.

Le suivi des chasses des barrages à l'amont du Haut-Rhône a permis d'obtenir une vision à l'échelle du réseau hydrographique du transport d'une grande quantité de MES. Des zones de dépôt et de reprise de MES ont ainsi pu être identifiées (Cressin, amont de du barrage de Villebois, etc.). La compréhension de l'origine des MES et de leur propagation est complexifiée par les crues de la plupart des affluents du Haut-Rhône. La modélisation du réseau prenant en compte les apports des différents affluents devrait constituer une aide pour comprendre ces processus (Cf. 6).

Tableau 5.2 – Flux et concentrations moyennes pondérées de MES, de mercure et de somme des 7 PCB indicateurs (∑PCBi) à Pougny, Seyssel, Creys et Jons, lors des opérations de chasse du Haut-Rhône en juin 2012

	1ère semaine 01/06/2012 - 10/06/2012			2ème semaine 10/06/2012 - 22/06/2012		
Flux	MES (Mt)	Mercure (kg)	∑PCBi (kg)	MES (Mt)	Mercure (kg)	∑PCBi (kg)
Pougny	0,007	0,22	0,030	2,6	78,8	7,8
Seyssel	0,82	36,0	5,1	0,62	20,3	3,4
Creys	0,064	2,7	0,43	0,24	11,2	2,2
Jons	0,031	1,5	0,23	0,22	9,2	1,3
Concentration pondérée	MES (g/L)	Mercure (mg/kg)	∑PCBi (μg/kg)	MES (g/L)	Mercure (mg/kg)	∑PCBi (μg/kg)
Pougny	0,23	0,031	4,2	12,5	0,030	3,0
Seyssel	4,0	0,044	6,2	2,7	0,033	5,5
Creys	0,14	0,042	6,7	0,54	0,047	9,2
Jons	0,061	0,048	7,4	0,35	0,042	5,9

5.2.3 Conclusion

Le Rhône est un système complexe qui comprend de nombreux affluents et aménagements. Les affluents représentent des sources variées de particules et de contaminants associés et leur combinaison dans le Rhône au niveau des confluences pose des problèmes de quantification et d'interprétation des flux. D'un événement à l'autre, la nature des particules et les teneurs en contaminants transportées par un affluent sont susceptibles de varier, complexifiant encore l'interprétation de l'origine des particules. Chaque affluent devrait être étudié au cas par cas pour caractériser les particules qui en proviennent, en fonction des crues, et aussi en fonction des périodes hydrologiques (ex : fonte, rétention neigeuse).

Les aménagements hydro-électriques impactent aussi fortement la dynamique sédimentaire du Rhône, que ce soit en période de régime de base lorsqu'ils interrompent le continuum sédimentaire, en période de production électrique quand les éclusées énergétiques remettent les particules décantées en suspension, en crue, ou lors des chasses, quand les barrages sont ouverts pour laisser les particules transiter. Leur gestion impacte considérablement les flux de MES à l'échelle de l'événement. Cependant, nous verrons que leur effet est lissé à l'échelle annuelle ou pluriannuelle.

En termes de contaminants, les opérations de chasse de barrage sont un cas particulier, puisque les particules circulant dans le réseau proviennent majoritairement d'une seule source, qui est la retenue du barrage ouvert. Ce cas de figure est différent de celui observé par Cossa (2012) à la station d'Arles sur le Rhône en 2008. Cette étude montre en effet que les particules circulant à Arles lors des crues de 2008 proviennent de sources différentes et portent des niveaux de contamination en

mercure différents (Cf. Fig. 5.3). Cossa (2012) révèle ainsi une source de contamination mercurielle associée à la crue cévenole de novembre 2008. Dans le cas d'Arles, les flux de mercure ne sont donc pas uniquement contrôlés par les flux de MES, mais également par niveaux de contamination des particules très contrastés (facteur environ 6), associés à des origines des particules différentes.

De plus, l'analyse des teneurs en COP et des distributions granulométriques des MES échantillonnées pendant ces deux semaines ont montré que les MES ayant transité lors des opérations de chasses sont de nature différente de celles des MES transitant usuellement dans le Haut-Rhône (Cf. Chap.4).

La compréhension de la dynamique sédimentaire événementielle dans un système hydrosédimentaire aussi compliqué ne peut donc se faire qu'au cas par cas. Elle est toutefois nécessaire pour la quantification et l'interprétation des flux annuels et pluri-annuels et la modélisation peut constituer une aide intéressante pour sa compréhension et son interprétation (Cf. Chap.6).

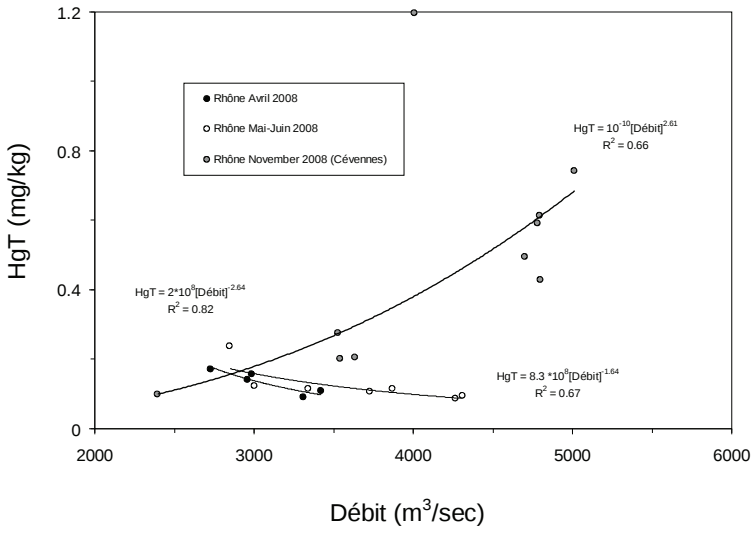


FIGURE 5.3 – Teneurs en mercure des MES échantillonnées à la station du Rhône à Arles lors des crues de 2008, en fonction du débit. Source : Cossa (2012)

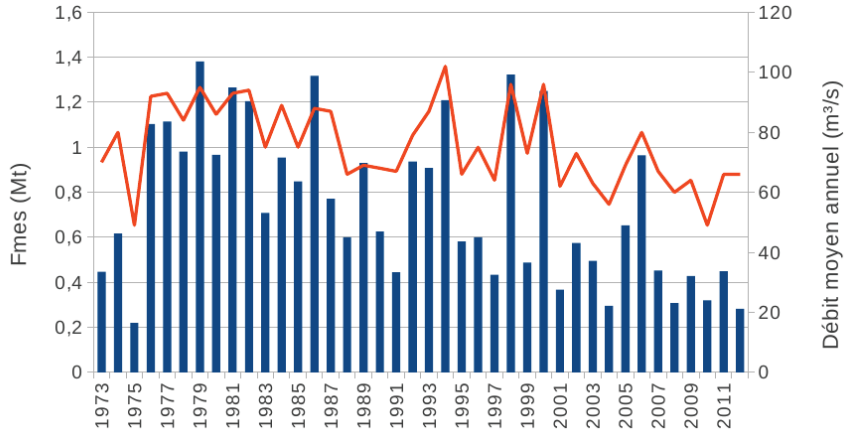
5.3 Bilans de flux annuels et inter-événementiels

5.3.1 La variabilité inter-annuelle des flux particulaires

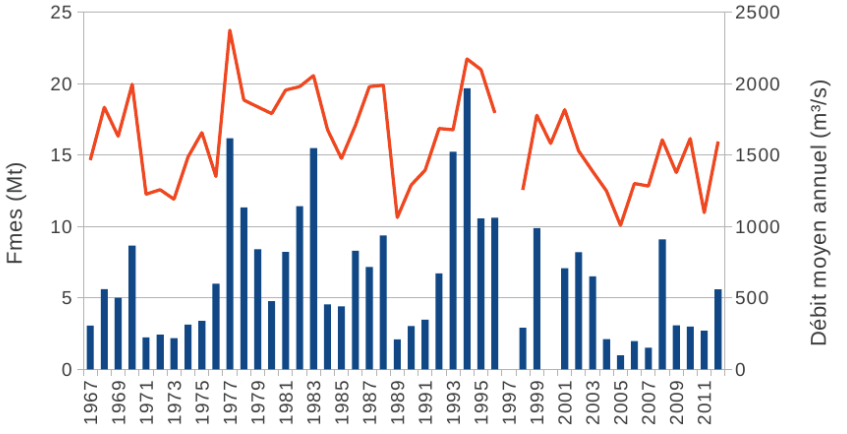
5.3.1.1 Flux de MES

Les flux de MES annuels de l'Arve à Genève Bout-du-Monde ont été calculés pour chaque année hydrologique à partir des données de MES mesurées entre 1974 et 2013 (Fig. 5.4.a et Tab. 5.3.1.1). Ils sont en moyenne de 0,78 Mt et varient entre 0,22 et 1,41 Mt. La période de fonte est en général la plus contributrice au flux de MES de l'Arve, avec une participation à hauteur de 68 % en moyenne. Le coefficient de variation des flux de MES annuels sur la période 1974-2013 est de 45 %, notamment à cause du caractère aléatoire de l'occurrence de crues et de précipitations neigeuses importantes en hiver. Il semble également qu'une tendance à la diminution des flux de MES annuels soit observée sur la période 1974-2013. Si certaines années (1998, 2000 ou 2006) présentent de très forts flux annuels, la moyenne des flux sur 10 ans diminue ; elle était de 0,96±0,35 Mt/an pour la période 1974-1984, et est de 0,50±0,20 Mt/an pour la période 2002-2012.

Les flux de MES par année civile à la station observatoire du Rhône à Arles (SORA) mesurés depuis 2005 et reconstitués depuis 1967 (Fig. 5.4,Antonelli, 2010), montrent également une grande variabilité d'une année à l'autre, variant de 1,0 à 19,7 Mt/an. En revanche, ils ne montrent pas de tendance à la diminution comme observé sur l'Arve.



(a)



(b)

FIGURE 5.4 – Flux de MES ($Fmes$ en Mt) annuels et débit moyens annuels (Q en m^3/s, en rouge) (a) de l'Arve à Genève Bout-du-Monde entre 1974 et 2012 (années hydrologiques), (b) du Rhône à Arles entre 1967 et 2012 (années civiles) ; compilation effectuée dans Antonelli (2010).

Tableau 5.3 – Débits moyens annuels, de fonte et de pluie et flux de MES annuels et pourcentage du flux de MES de fonte de l'Arve à Bout-du-Monde entre 1974 et 2013. En rouge, les trois valeurs les plus fortes de chaque colonne, en bleu les trois valeurs les plus faibles.

	Q (m^3/s)			Fmes	
	Annuel	Fonte	Pluie	Annuel (Mt)	Fonte (%)
1974 - 1975	80	94	65	0.62	67
1975 - 1976	**49**	**51**	47	**0.22**	**33**
1976 - 1977	92	120	62	1.12	72
1977 - 1978	93	128	58	1.13	83
1978 - 1979	84	113	55	1.00	72
1979 - 1980	95	126	64	**1.41**	79
1980 - 1981	86	112	59	0.98	79
1981 - 1982	93	105	**80**	1.29	49
1982 - 1983	94	116	71	1.23	64
1983 - 1984	75	93	57	0.72	57
1984 - 1985	89	113	64	0.97	72
1985 - 1986	75	115	34	0.86	**94**
1986 - 1987	88	**131**	45	**1.34**	**92**
1987 - 1988	87	114	59	0.78	80
1988 - 1989	66	80	51	0.61	39
1989 - 1990	69	95	42	0.95	62
1990 - 1991	68	77	60	0.64	51
1991 - 1992	67	87	47	0.45	74
1992 - 1993	79	82	76	0.95	**39**
1993 - 1994	87	98	**77**	0.92	48
1994 - 1995	**102**	119	**84**	1.23	60
1995 - 1996	66	86	46	0.59	76
1996 - 1997	75	95	55	0.61	78
1997 - 1998	64	75	52	0.44	51
1998 - 1999	**96**	**128**	62	**1.35**	80
1999 - 2000	73	87	58	0.49	61
2000 - 2001	**96**	**131**	60	1.27	85
2001 - 2002	62	83	42	0.37	81
2002 - 2003	73	74	72	0.58	**35**
2003 - 2004	63	76	50	0.50	49
2004 - 2005	**56**	75	**36**	**0.30**	79
2005 - 2006	69	108	30	0.66	**95**
2006 - 2007	80	112	48	0.98	90
2007 - 2008	67	93	41	0.46	85
2008 - 2009	60	**72**	47	**0.31**	58
2009 - 2010	64	84	42	0.43	78
2010 - 2011	**49**	**59**	39	0.33	58
2011 - 2012	66	89	42	0.42	79
Moyenne	**76**	**97**	**55**	**0.78**	**68**
Min	**49**	**51**	**30**	**0.22**	**33**
Max	**102**	**131**	**84**	**1.41**	**95**
CV (%)	**18**	**21**	**24**	**45**	**25**

Pour l'Arve à Genève Bout-du-Monde, la représentation en années civiles plutôt qu'en années hydrologiques ne permet pas d'observer la tendance à la diminution qui apparaît en années hydrologiques. L'intérêt d'estimer les flux de MES en années hydrologiques pour l'Arve réside dans la prise en compte au cours d'une même année de la période d'accumulation (de septembre à mars) dont l'intensité influence la période de fonte (d'avril à août) (Cf. §4.3.1). Pour le Rhône à Arles, il serait intéressant de représenter les flux de MES en années hydrologiques ; la différence entre années hydrologiques et années civiles serait sans soute moins marquée que dans le cas de l'Arve, puisqu'Arles se trouve à l'exutoire d'un grand bassin versant soumis à des régimes hydrologiques variés, sont les influences peuvent être difficiles à distinguer.

L'importante variabilité du flux annuel de MES et le contexte instationnaire observé nous amène à nous interroger sur la pertinence de calculer un flux moyen interannuel de MES pour un cours d'eau. Dans ses conclusions, Baëff (1891) relativise lui-même la notion de flux de MES moyen interannuel de l'Arve. En considérant l'exemple de la crue extrême du 2 au 4 octobre 1888, il calcule que pendant la seule journée du 3 octobre 1888, alors que le débit a atteint plus de 1 000 m^3/s, le volume d'eau écoulé a été de près de 10 Mm^3. Baëff (1891) calcule qu'avec une concentration de MES de 3 g/L, qu'il considère comme une sous-estimation, le flux de MES du 3 octobre 1888 est de 0,3 Mt. Cette crue aurait alors transporté en seulement 24 h entre le tiers et la moitié du flux moyen interannuel. La notion de flux moyen interannuel est donc bien sujette à discussion.

La convergence du flux moyen annuel de l'Arve en fonction du nombre d'années consécutives de suivi est représentée sur la Fig. 5.5. Il faut donc une dizaine d'années de mesure consécutives pour que la moyenne annuelle des flux calculés se stabilise dans une fourchette d'écarts entre +10 et -15 % par rapport au flux moyen interannuel.

Nous avons donc montré à travers quelques exemples, la forte variabilité des flux moyens annuels de MES transportés dans le Rhône et ses affluents. La variabilité interannuelle est souvent la première source d'incertitude sur le flux moyen interannuel de MES. Il semble qu'une dizaine d'années de mesure soit nécessaire au minimum pour appréhender cette variabilité qui dépend fortement des crues (exemple de 2002-2003 dans le Rhône à Arles), mais aussi des impacts anthropiques : travaux dans le lit, chasses et manœuvres d'aménagements hydro-électriques. A la variabilité annuelle des flux peut parfois s'ajouter un contexte d'instationnarité, comme dans le cas de l'Arve, rendant encore plus compliquée la définition d'une moyenne interannuelle. Afin de pallier à ces difficultés et d'exprimer la variabilité du flux de MES, nous proposons d'utiliser l'écart-type interannuel pour évaluer l'incertitude sur le flux interannuel de MES.

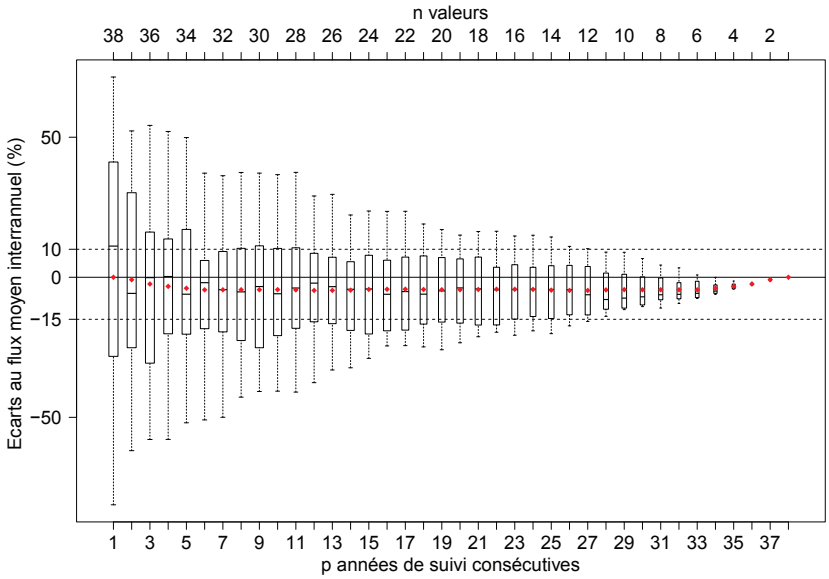


FIGURE 5.5 – Écarts des flux annuels moyens de MES calculés sur p années de suivi consécutives au flux moyen annuel de MES calculé sur la période 1974-2013 pour l'Arve à la station Bout-du-Monde.

5.3.1.2 Flux de contaminants particulaires

Nous avons montré que le calcul des flux de contaminants particulaires à partir de suivis discrets et à large pas de temps des teneurs en contaminants repose sur la détermination d'une teneur moyenne par régime hydrologique, si possible, ou d'une teneur moyenne annuelle si les différents régimes hydrologiques ne sont pas caractérisés (Cf. Chap. 4). Les suivis à haut fréquence récents dans le Rhône à Arles et à Jons nous ont permis d'établir des teneurs en contaminants représentatives des variations de ce paramètre et de proposer des moyennes robustes de teneurs en contaminants pour l'année 2011-2012. Nous cherchons désormais à établir des flux de contaminants particulaires à l'échelle décennale ou à plus long terme ; il faut par conséquent évaluer l'évolution temporelle des teneurs en contaminant sur ces périodes et évaluer si les teneurs moyennes déterminées pour l'année 2011-2012 sont utilisables pour les calculs de flux à plus long terme.

Les données du réseau AERMC semblent montrer que les données de mercure étaient stables entre 2001 et 2007. En revanche, la variabilité des données AERMC n'est pas interprétable pour les PCB (Cf. Chap. 3).

Les études menées en 1994-1995 par Tronczynski et Héas-Moisan (1996), en 2009-2010 par Castelle (2010) et en 2010-2011 par Cossa (2012) fournissent des données de teneurs en mercure et en PCB des MES du Rhône à Arles. Castelle (2010) a montré que les teneurs en mercure dans les MES du Rhône à Arles ont diminué d'un facteur 3 en 15 ans, passant de 0,481±0,399 mg/kg en

1994-95 à 0,180±0,151 mg/kg en 2009-10. Cossa (2012) indique que la concentration moyenne en mercure pour la période 2010-2011 (0,13±0,05 mg/kg) est similaire à celle du suivi 2009-2010. Elle est également similaire à celle que nous obtenons à Arles pour l'année 2011-2012 (0,140±0,069 mg/kg). Ainsi, cette étude ne confirme pas la stabilité des teneurs en mercure au cours de la dernière décennie suggérée par le suivi AERMC. Cossa (2012) a également mis en évidence la très grande variabilité des teneurs en mercure du Rhône à Arles en fonction des événements hydrologiques. Il met en cause les forts niveaux de contamination des affluents cévenols. Aussi, l'utilisation des teneurs en mercure mesurées depuis 2009 dans le Rhône à Arles entraîne probablement une forte incertitude dans le calcul des flux de mercure sur les 10 dernières années et a fortiori à plus long terme.

Selon Tronczynski et Tixier (2012) et Cossa (2012), les teneurs moyennes en $\sum$PCBi dans les MES du Rhône à Arles pour les années 2009-2010 et 2010-2011 sont de 36,1±16,7 et 15,0±11,5 μg/kg. En 2011-2012 à Arles, nous obtenons une teneur moyenne intermédiare de $\sum$PCBi de 23,2±10,9 μg/kg. Cossa (2012) a montré, en comparant des teneurs mesurées entre 1994 et 2009, qu'elles n'ont pas varié au cours de cette période. Il semble donc possible d'utiliser les teneurs en $\sum$PCBi mesurées à Arles en 2009-2012 pour estimer les flux de $\sum$PCBi sur les dix dernières années.

A plus long terme, il apparaît indispensable d'évaluer l'évolution temporelle des teneurs en PCB. Les PCB ont en effet commencé à être produits dans les années 30 et la pointe de consommation de PCB dans les pays de l'OCDE se situe en 1970 (Breivik, 2002). A partir des teneurs mesurées dans les MES à la station du Rhône à Arles, Reynaud (2013, communication personnelle) estime que la teneur moyenne en $\sum$PCBi des MES à Arles est stable depuis 2007 à 24 μg/kg. A partir de teneurs mesurées dans les carottes sédimentaires dans les Vieux-Rhône de Péage de Roussillon et Donzère, il observe que la teneur en $\sum$PCBi aurait été divisée par 3 entre 2000 (60 μg/kg) et 2007 et par 5 entre 1988 (300 μg/kg) et 2000. Le maximum de teneurs en $\sum$PCBi aurait été atteint en 1976 (avec 460 μg/kg dans les sédiments). Les teneurs en $\sum$PCBi pour les 40 dernières années seraient donc bien plus fortes que celles mesurées depuis 2007 dans le Rhône à Arles.

A partir de ces différentes observations, il apparaît que les variations de teneurs en mercure et en PCB observées au cours des 10 dernières années sont au maximum d'un facteur 3. En utilisant les teneurs en mercure et PCB déterminées à partir du suivi de l'année 2011-2012 pour déterminer les flux de mercure et de $\sum$PCBi sur 10 ans, nous augmentons donc l'incertitude associée. Pour le calcul à plus long terme, l'utilisation des données issues des carottes sédimentaires est une perspective intéressante, à condition de tenir compte de la différence de granulométrie entre les sédiments des carottes et les MES, notamment à l'aide de l'outil d'interprétation de la granulométrie présenté au Chap. 2.

5.3.2 Bilans de flux dans le Haut-Rhône

A partir des flux mesurés au cours de l'année hydrologique 2011-2012 et reconstitués pour la période 2001-2012, il est possible d'établir des bilans de masse à l'échelle du bassin-versant du Haut-Rhône. Les bilans de masses des flux sont exprimés en déterminant l'écart relatif entre les flux mesurés à la station du Rhône à Jons, qui constitue l'exutoire du Haut-Rhône, et les flux apportés par les affluents (Cf. Tab. 5.4). Ce bilan représente donc la part de flux qui est produite (si $< 0\%$) ou stockée (si $> 0\%$) par le réseau hydrographique qui n'est pas mesuré par les stations considérées.

5.3.2.1 Les flux mesurés en 2011-2012

Les affluents considérés sont le Léman, l'Arve, la Valserine, les Usses, le Fier, le Guiers, l'Ain et la Bourbre ; seulement 17 % de la surface du bassin versant du Rhône à Jons n'est pas couverte par les bassins versants de ces affluents. Cette surface non jaugée, qui se situe principalement en plaine, a probablement un faible débit spécifique moyen et une faible sensibilité à l'érosion. L'écart de -13 % dans le bilan d'eau pour l'année 2011-2012 (Cf. Tab. 5.4) s'explique donc par la surface de bassin versant qui n'est pas prise en compte dans la somme des apports. Nous pouvons donc considérer que ce bilan d'eau est équilibré pour l'année période 2011-2012. Le principal apport en eau du Haut-Rhône est constitué par le Léman qui représente 46 % du flux d'eau pour la période 2011-2012 (Cf. Fig. 5.6). Le Léman permettant la décantation des particules, le flux de MES à sa sortie est considéré comme négligeable.

Les affluents peuvent être regroupés en trois ensembles selon leur dynamique sédimentaire : les affluents alpins avec une forte production sédimentaire et des flux de MES spécifiques très importants ; les affluents de plaine avec une production sédimentaire moins importante, des concentrations en MES moyenne 3 à 12 fois plus faibles que les affluents alpins ; et l'affluent jurassique (la Valserine) dont la production sédimentaire est également moins importante que les affluents alpins.

Tableau 5.4 – Bilan des flux d'eau, de MES, de mercure et de somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) mesurés dans le Haut-Rhône. Réseau = Écart relatif entre les flux du Rhône à Jons et la somme des apports des affluents.

	Léman	Arve	Valserine	Usses	Fier	Guiers	Ain	Bourbre	Jons	L+A+V+U+F+G+A+B	Réseau (Σ-J)/J
Surface drainée (km²)	8011	1976	395	182	1260	585	3765	703	20300	16877	-17%
Année 2011-2012											
Flux eau (10^9 m³/an)	7,5	2,1	0,4	0,1	1,0	0,5	3,6	0,2	17,6	15,4	-13%
Flux MES [Mt/an]	0,00	0,35	0,03	0,05	0,20	0,07	0,06	0,02	0,44	0,77	76%
Incertitude d'estimation du flux	*20%*	*20%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*	*50%*	*50%*	*20%*		
concentration moyenne [g/L]	*0,000*	*0,168*	*0,070*	*0,454*	*0,204*	*0,132*	*0,017*	*0,074*	*0,025*		
flux spécifique [t/an/km²]	*0,0*	*177,1*	*75,9*	*269,2*	*157,1*	*119,7*	*15,9*	*22,8*	*21,7*		
Flux mercure [kg/an]	0,0	20,6	1,7	4,1	28,4	2,9	3,3	1,4	34,9	62,4	79%
concentration moyenne [µg/kg]	*0*	*59*	*55*	*84*	*143*	*42*	*55*	*88*	*79*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*20%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*	*50%*	*50%*	*20%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*0*	*10*	*4*	*23*	*23*	*5*	*1*	*2*	*2*		
Flux ΣPCBi [kg/an]	0,0	5,6	0,2	1,4	10,8	0,2	0,4	0,8	6,0	19,4	222%
concentration moyenne [µg/kg]	*0,0*	*16,0*	*6,7*	*28,0*	*54,3*	*3,0*	*6,7*	*51,4*	*13,7*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*20%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*	*50%*	*50%*	*20%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*0,0*	*2,8*	*0,5*	*7,5*	*8,5*	*0,4*	*0,1*	*1,2*	*0,3*		
Années 2001-2011											
Flux eau (10^9 m³/an)	7,2	2,0	0,4	0,1	1,0	0,5	3,3	0,2	17,1	14,7	-14%
Flux MES [Mt/an]	0,00	0,49	0,03	0,04	0,18	0,07	0,05	0,01	0,61	0,87	43%
Min – Max	***0,0 – 0,0***	***0,30 – 0,96***	***0,02 – 0,04***	***0,01 – 0,07***	***0,11 – 0,31***	***0,03 – 0,24***	***0,03 – 0,09***	***0,01 – 0,02%***	***0,28 – 1,36***		
Écart-type interannuel	*0%*	*41%*	*26%*	*37%*	*34%*	*84%*	*38%*	*28%*	*52%*		
Incertitude d'estimation de la moyenne	*0%*	*26%*	*16%*	*23%*	*22%*	*53%*	*24%*	*18%*	*33%*		
concentration moyenne [g/L]	*0,000*	*0,245*	*0,075*	*0,400*	*0,180*	*0,140*	*0,015*	*0,050*	*0,036*		
flux spécifique [t/an/km²]	*0,0*	*61,2*	*15,2*	*101,3*	*989,0*	*55,6*	*85,5*	*2,7*	*30,0*		
Flux mercure [kg/an]	0	22	1,7	3,4	26,3	2,9	2,7	1,3	30	60,2	101%
Min – Max	***0,0 – 0,0***	***14 – 44***	***1,1 – 2,2***	***0,1 – 5,5***	***15,2 – 43,7***	***1,3 – 10,1***	***1,3 – 5,0***	***0,7 – 2,7%***	***14 – 67***		
concentration moyenne [µg/kg]	*0,0*	*45*	*55*	*84*	*146*	*42*	*54*	*130*	*49*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*50%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*0,0*	*3*	*1*	*8*	*145*	*2*	*5*	*0*	*1*		
Flux ΣPCBi [kg/an]	0	6,0	0,0	1,1	10,0	0,0	0,3	0,8	5,2	18,2	252%
Min – Max	***0,0 – 0,0***	***2,0 – 40,4***	***0,0 – 0,0***	***0,3 – 1,8***	***5,7 – 16,5***	***0,0 – 0,0***	***0,2 – 0,6***	***0,5 – 1,3***	***2,4 – 11,5***		
concentration moyenne [µg/kg]	*0,0*	*12,2*	*0,2*	*28,3*	*55,6*	*0,2*	*6,0*	*75,0*	*8,5*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*50%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*0,0*	*0,7*	*0,0*	*2,9*	*54,9*	*0,0*	*0,5*	*0,2*	*0,3*		

Les apports en MES des affluents (0,77 Mt/an) sont supérieurs aux flux mesurés dans le Rhône à Jons (0,44 Mt/an), et le bilan de masse de MES est donc excédentaire (Cf. Tab. 5.4). Cet écart peut signifier que des dépôts de MES ont eu lieu dans le réseau hydrographique, à l'échelle annuelle.

Le stock de MES à l'échelle du réseau est d'autant plus important que les apports de MES liés aux chasses de juin 2012 n'est pas pris en compte dans ce bilan. En prenant en compte les 3,4 Mt de MES libérées dans le réseau hydrographique par l'abaissement des retenues de Génissiat et de Verbois en juin 2012(Cf. Fig. 5.2), le stock de particules dans le réseau en 2011-2012 est de à 3,3 à 3,6 Mt (Cf. Tab. 5.5). Exceptionnellement lors des deux semaines de chasse de juin 2012, les Vieux-Rhône du Haut-Rhône étaient fermés pour les protéger du flux de MES. Cette mesure d'accompagnement n'a pas été appliquée lors des précédentes chasses. Les MES libérées par les barrages en 2012 n'ont donc pas pu ce stocker dans les Vieux-Rhône au cours des deux semaines. Les MES issues du barrage de Génissiat lors de la première semaine des opérations se sont stockées dans le réseau avant d'atteindre Jons. En deuxième semaine, les MES issues de Verbois sont stockées massivement dans la retenue de Génissiat.

Tableau 5.5 – Bilan des flux de MES du Haut-Rhône entre septembre 2011 et décembre 2012, en distinguant les périodes avant, pendant et après les chasses de juin 2012.

	Flux MES [Mt/an]				
	Arve	Autres Affluents	Barrages	Stock	Jons
Avant les chasses (01/09/2011 -04/06/2012)	0,08	0,19 à 0,46	0,00	-0,06 à +0,21	0,33
Pendant les chasses (04/06/2012-18/06/2012)	0,06	0,02 à 0,06	3,40	+3,23 à +3,27	0,25
Après les chasses (18/06/2012 – 31/08/2012)	0,21	0,04 à 0,06	0,00	+0,14 à +0,16	0,11
Année 2011-2012 (01/09/2011 – 31/08/2012)	0,35	0,25 à 0,58	3,40	+3,31 à +3,64	0,69

Au cours des périodes avant et après chasse, le stock de MES dans le réseau est du même ordre de grandeur que les apports de MES de l'Arve. Il est probable que les MES issues de l'Arve se stockent majoritairement dans la retenue du barrage de Verbois. L'installation d'une station de suivi des flux à Pougny, à l'aval de Verbois, permettrait de confirmer cette hypothèse.

Les mesures effectuées sur les affluents ont permis de calculer les flux de mercure et de $\sum$PCBi pour l'année 2011-2012. Le bilan de flux de contaminants à l'échelle annuelle est excédentaire pour le mercure et les $\sum$PCBi, ce qui est en cohérence avec les flux de MES. Le flux de $\sum$PCBi provenant des affluents (19 kg/an) est largement supérieur au flux mesuré à Jons (6 kg/an), et cette différence ne s'explique pas seulement par le bilan de MES. Toutefois, il faut considérer que les données collectées sur les affluents sont peu nombreuses et ne sont pas toujours représentatives des différents régimes hydrologiques (crues et régime de base). Il est également possible qu'une partie du flux de $\sum$PCBi apporté par les affluents ne soit pas mesurée à Jons.

C'est probablement le cas de la Bourbre, dont la teneur moyenne en $\sum$PCBi est 6 fois plus importante qu'à Jons et dont la contamination aux PCB est avérée (Babut et Miège, 2007). La Bourbre se situe 10 km en amont de la station de Jons et rejoint le Rhône en rive gauche, tandis que la station de Jons est au centre du Rhône. Même en cas de forte crue de la Bourbre, il est probable que ses MES circulent majoritairement dans la partie gauche de l'écoulement et n'atteignent pas la station de Jons. Ainsi, lors de la crue de période de retour 5 ans survenue sur la Bourbre en novembre 2012 ($Q_{Bourbre}$ = 37,4 m^3/s et Q_{Jons} = 1200 m^3/s le 29/11/2012), les profils de PCB mesurés dans le Rhône à Jons ne varient pas (environ 30 % de PCB légers), alors que le profil de PCBi mesuré le 29/11/2012 dans la Bourbre présente environ 50 % de PCB légers (Fig. 4.8). Le flux de PCB mesuré à Jons ne prend donc probablement pas en compte le flux de PCB de la Bourbre. Le cas de la Bourbre, dont les flux de MES et de PCB restent faibles (4 % et 13 % des flux à Jons respectivement), n'explique toutefois pas le mauvais bilan que nous obtenons sur les PCBi (+222 %) en 2011-2012.

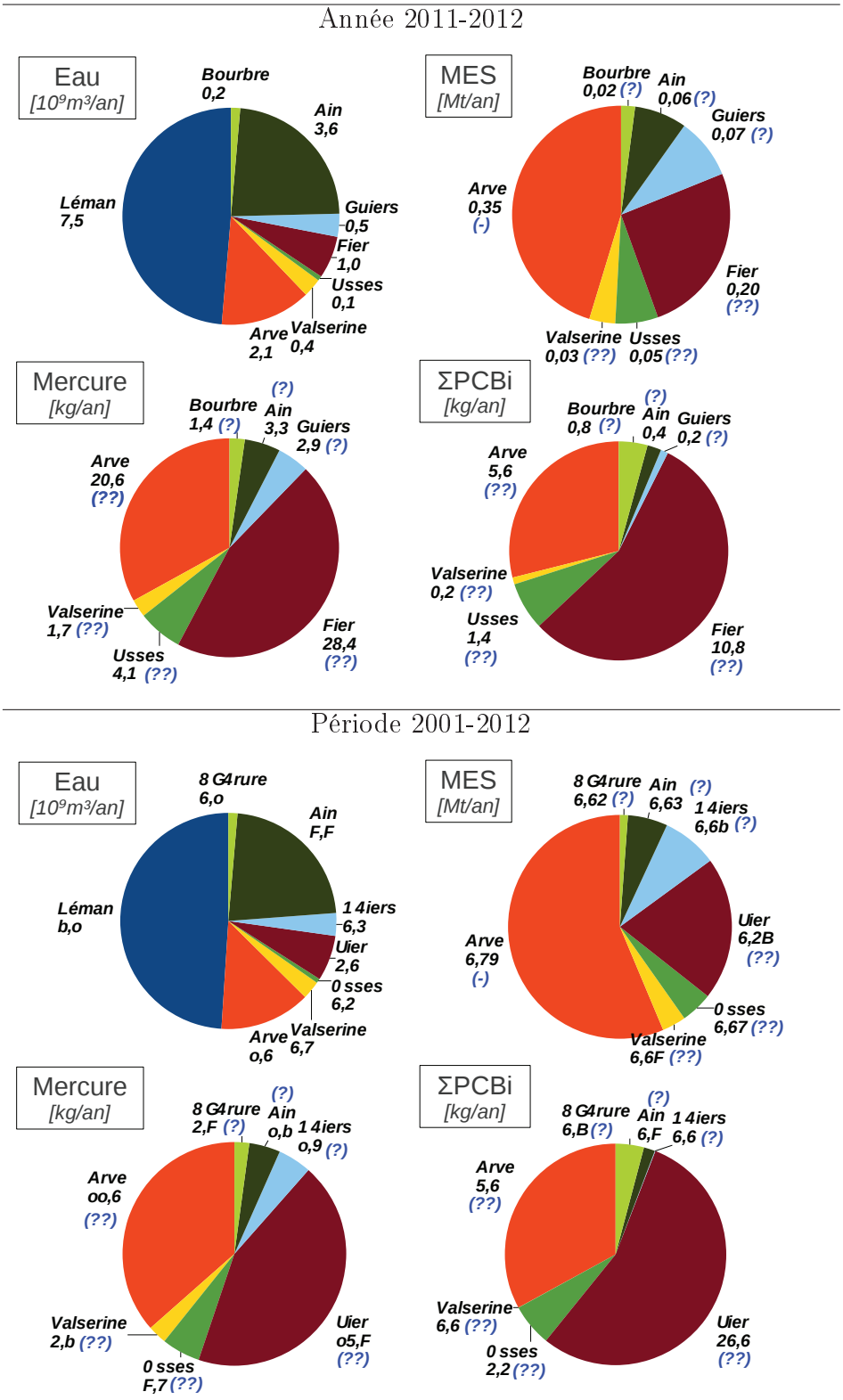


FIGURE 5.6 – Bilan des contributions en eau, MES, mercure et somme des 7 PCB indicateurs ($\sum$PCBi) des affluents au Haut-Rhône en 2011-2012 et sur 10 ans (2001-2012)

Les contributions de l'Arve et du Fier aux flux de contaminants semblent très importantes (33 et 46 % des apports des affluents pour le mercure et 29 et 56 % pour la $\sum$PCBi) et résultent des flux de MES très élevés de ces affluents (45 et 26 % des apports des affluents). Les teneurs moyennes en mercure et en $\sum$PCBi de l'Arve sont en effet proches de celle obtenue à Jons (0,059 et 0,079 mg/kg respectivement pour le mercure et 16 et 13,7 μg/kg respectivement pour la $\sum$PCBi). Ces résultats sont à considérer avec précautions puisque nous ne disposons que de 3 valeurs de teneurs en contaminant mesurées en régime de base dans l'Arve.

Pour le Fier, le flux de MES de l'année 2011-2012 n'est pas mesuré, mais reconstitué (Cf. §4.3.2) et la relation CsQ a été établie à partir de 22 valeurs de concentrations en MES. L'incertitude sur le flux de MES du Fier est donc importante et nous l'estimons à 100%. De plus, nous ne disposons que d'une seule mesure de teneur en contaminant, en régime de base, pour établir les flux. Les résultats de flux particulaires du Fier sont donc très incertains. Vue l'importance des flux en jeu, cet affluent devrait faire l'objet d'un suivi plus précis des concentrations en MES et des teneurs en contaminant.

En considérant les incertitudes sur les flux de MES du Fier et sur les flux de contaminants particulaires de l'Arve et du Fier, les bilans de masses de MES et de contaminants en 2011-2012 à l'échelle du Haut-Rhône sont à peu près équilibrés.

5.3.2.2 Comparaison des flux inter-événementiels avant et après la chasse de 2012

Les flux de MES et de contaminants particulaires à Jons sont suivis depuis septembre 2010 pour les MES et depuis septembre 2011 pour les contaminants. Le Tab. 5.3.2.2 présente les flux calculés pour chaque année hydrologique (de septembre à août) et pour différents événements producteurs de flux de MES. Les flux écoulés au cours des périodes de crue de ces deux années hydrologiques et au cours des deux semaines de la période de chasse de juin 2012 sont présentés à part pour mesurer l'importance de ces événements par rapport au flux annuel. Nous avons également indiqué les flux obtenus pour la crue de la fin de l'année 2012 qui intervient après les chasses de juin 2012 et dont le débit de pointe, le débit moyen et la durée sont du même ordre de grandeur que ceux de la crue de fin 2011 (débits de pointe à 2 000 m^3/s, débits moyens de 970 et 875 m^3/s respectivement et hautes eaux pendant deux mois).

Tableau 5.6 – Flux de MES, de mercure et de ∑PCBi quantifiés à Jons, par année hydrologique (2010-2012), lors des opérations de chasse du Haut-Rhône et lors de différents événements de crue

	Date de début	Date de fin	Flux MES (Mt)	Flux Hg (kg)	Flux ∑PCBi (kg)
2010 - 2011	01/09/2010	31/08/2011	0,29	14,6	2,5
2011 - 2012	01/09/2011	31/08/2012	0,69	34,9	6,0
Crue de fin 2010 - début 2011	01/12/2010	31/01/2011	0,20	9,8	1,7
Crue de fin 2011 - début 2012	01/12/2011	31/01/2012	0,25	12,5	2,1
Crue de fin 2012	01/11/2012	30/12/2012	0,29	14,1	2,4
Chasse 2012 *1ère semaine*	01/06/2012	10/06/2012	0,031	1,5	0,23
Chasse 2012 *2ème semaine*	10/06/2012	22/06/2012	0,22	9,2	1,3

L'année hydrologique 2010-11 a vu passer un flux de MES, de mercure (Hg) et de somme des 7 PCB indicateurs (∑PCBi) à Jons deux fois plus faible que celui de l'année 2012. Cet écart est principalement dû aux deux semaines de chasse de barrages de juin 2012 qui représentent 36 % du flux de MES, 30 % du flux de mercure et 24 % du flux de PCB de l'année 2011-12. Le flux de MES pour les deux semaines de chasse est équivalent au flux de MES de la crue de fin 2011. En revanche, les flux de mercure et de PCB sont 1,3 et 1,6 fois plus faibles pendant les chasses que pendant la crue de fin 2011, à cause de la dilution des teneurs observées pendant la période de chasse (Cf. Chap. 3). Cette observation, ainsi que l'analyse des teneurs en COP et des distributions granulométriques des MES collectées au cours des chasses de juin 2012 (Cf. Chap. 4), confirment que les particules qui ont circulé au cours de la chasse ont une origine différente de celle des MES transitant usuellement dans le Haut-Rhône . La crue de fin 2011 à Jons a été provoquée par des crues sur l'ensemble des affluents amont, tandis que lors des chasses de 2012, les particules provenaient majoritairement des retenues des barrages de Génissiat et de Verbois, principalement soumises aux apports de l'Arve.

Le suivi des flux de MES à Jons met en évidence que les chasses de barrage ont modifié considérablement le flux annuel. En revanche, les chasses de juin 2012 ne semblent pas avoir eu d'impact significatif sur les événements de crue postérieurs, puisque les crues de fin 2010, fin 2011 et fin 2012 ont produit des flux de MES, de PCB et de mercure équivalents. Pour l'année 2010-11, l'épisode de fin 2011 représente 70 % des flux de MES, de PCB et de mercure, cette année hydrologique étant par ailleurs pauvre en événements de crue importants. En dehors des opérations de chasses, les crues sont donc bien les principales productrices de flux de MES, de PCB et de mercure.

5.3.2.3 Les flux reconstitués de 2001 à 2012

La contribution moyenne des affluents du Rhône au flux annuel d'eau a été évaluée sur la période de 2001 à 2012. Pour le Haut-Rhône à Lyon, ce bilan indique que 25 % de l'eau provient du Léman, 46 % de la Saône, 10 % de l'Ain et 7 % de l'Arve (Cf. Fig. 5.7.a). Les débits spécifiques des affluents qui drainent les Alpes (Arve, Usses, Fier, Guiers, Isère) ou le Jura (Valserine et Ain) présentent des débits spécifiques forts, souvent supérieurs à 30 L/s/km^2 et caractéristiques de cours d'eau de montagne (Pardé, 1925). La Bourbre, la Saône et la Durance présentent des débits spécifiques de cours d'eau de plaine, de 10 à 20 L/s/km^2. Les débits spécifiques des affluents et du Rhône aux différentes stations ont tendance à diminuer de l'amont vers l'aval.

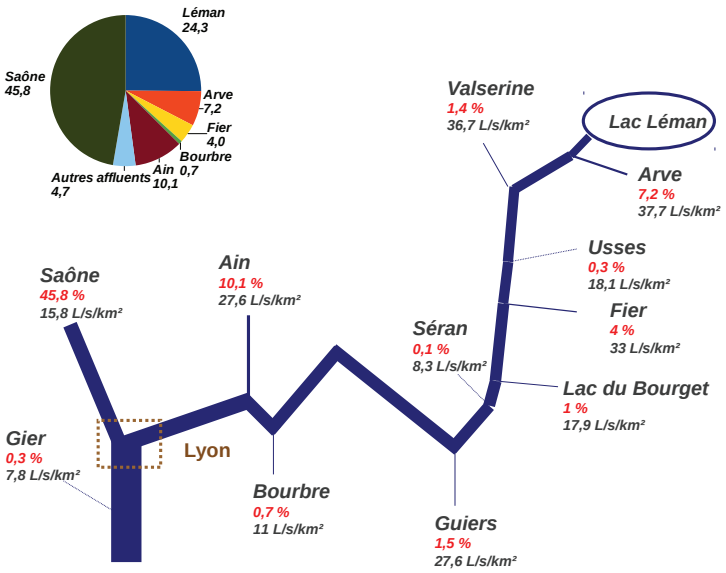


FIGURE 5.7 – Contributions relatives sur la période 2001-2012 des affluents aux apports hydrique du Rhône à l'aval de la confluence Rhône-Saône

Les données de MES réunies pour le Haut-Rhône ont permis d'établir des bilans de MES entre les apports par les affluents et l'exutoire du Haut-Rhône à Jons pour les années 1998 à 2012 (Cf. Fig. 5.8, le détail des bilans, secteur par secteur est fourni en Annexe K). Les flux du Rhône à Jons et de l'Arve à Genève ont été mesurés en continu depuis septembre 2010 pour Jons et depuis mars 2012 pour l'Arve. Pour les périodes antérieures à ces dates et pour les affluents, les flux sont estimés à partir d'une reconstitution à l'aide d'une relation débit-concentration en MES (Cf. §4.3). Les relations obtenues pour les affluents à Jons ayant donné des résultats en accord avec les suivis ponctuels menés sur les affluents, nous estimons que les flux estimés sont fiables. A Jons, la relation utilisée donne également de bons résultats pour estimer les flux annuels de MES en années normales. En revanche, les années de chasses de barrage, la relation entre le débit et la concentration en MES

à Jons peut être différente. Il faut donc tenir compte d'une forte incertitude pour les flux estimés à Jons pour les années 1999-2000 et 2002-2003, au cours desquelles ont eu lieu des chasses de barrage.

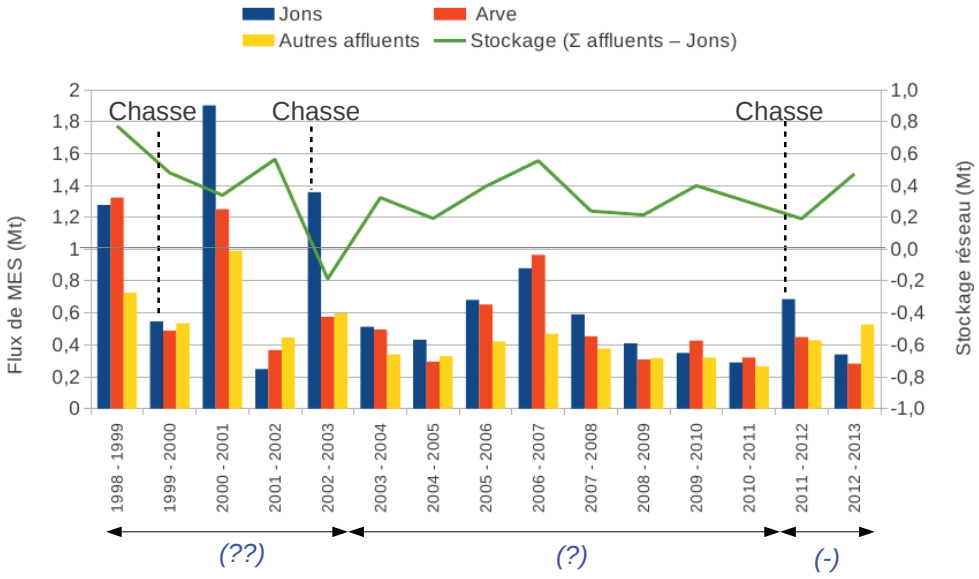


FIGURE 5.8 – Flux de MES (Mt) mesurés et reconstitués du Haut-Rhône entre 1998 et 2012. Stockage annuel de MES (Mt) dans le réseau hydrographique.

Les apports de MES de l'Arve sont en moyenne de 0,58 Mt ce qui correspond à 82 % du flux de MES mesuré à Jons. Les autres affluents apportent en moyenne 0,47 Mt au Haut-Rhône. En années normales, la différence entre les apports en MES des affluents et le flux de MES à Jons est donc positive et un stockage moyen de 0,2 à 0,5 Mt de MES se produit dans le Haut-Rhône chaque année.

Lors des chasses, tout en considérant l'incertitude sur le flux mesuré à Jons, un destockage important semble s'être produit en 2002-2003 et un stockage plus important que les années normales en 1999-2000. En 2011-2012, 0,2 Mt de MES se sont stockées dans le réseau, malgré les chasses de barrage. La différence de comportement entre la chasse de 2003 et la chasse de 2012 vient probablement de la gestion du barrage de Génissiat lors des chasses. En 2012, le relèvement de la retenue de Génissiat s'est produit alors que les chasses du barrage de Verbois étaient toujours en cours. Une importante quantité de MES en provenance de Verbois s'est donc stoppée dans la retenue de Génissiat (Cf. §5.2.2).

Lors des années normales, le comblement moyen annuel de la retenue de Verbois est estimé à 360 000 m^3/an par les SIG qui réalisent depuis 2004 des mesures bathymétriques de la retenue une fois tous les trois ans. Ces dépôts présentent une granulométrie fine, par conséquent ils ne sont pas uniquement constitués par le piégeage de la suspension de sables, mais aussi en partie par de la suspension fine (MES). En 2009, des carottes de sédiment ont été prélevées dans 4 zones de l'amont à

l'aval de la retenue de Verbois, dans des dépôts remobilisables par les chasses (Loizeau, 2009). L'analyse granulométrique des matériaux indique un fort gradient longitudinal, avec un taux de particules de diamètre supérieur à 63 μm égal à 9 %, 49 %, 77 % et 84 % pour les 4 zones de l'amont vers l'aval.

Convertir les volumes de dépôt en masses de sédiment sec nécessite de connaître la densité des matériaux en place. Les densités de matériau sec des carottes prélevées par l'institut Forel (Loizeau, 2009) présentent une décroissance de l'amont vers l'aval de la retenue : 1400, 1315, 1365, 1200 kg/m^3, avec une moyenne de 1320 kg/m^3. Ces valeurs sont cohérentes avec celles classiquement indiquées pour des sédiments de retenue immergés en permanence, notamment par le Erosion and Sedimentation Manual (USDI, 2006), voir Tab.J.1. En considérant les valeurs minimale, maximale et moyenne des densités observées, la masse stockée annuellement dans Verbois serait donc comprise entre 0,43 Mt et 0,50 Mt, avec une valeur la plus probable de 0,47 Mt/an.

Tableau 5.7 – Densité des sédiments (W en kg/m^3) en fonction de leur classe granulométrique, issu du Erosion and Sedimentation Manual (USDI, 2006)

	W (kg/m^3)
Argiles (d<4 μm)	416
Limons (4<d<62 μm)	1200
Sables (d>62 μm)	1500

En faisant l'hypothèse, pas si irréaliste, que la totalité du sable issu de l'Arve est piégée dans la retenue de Verbois, et en considérant que la moitié voire les trois quarts de ces 0,45 Mt/an sont constitués de MES fines, on aboutit à un flux d'Arve de 0,11 à 0,22 Mt de sables, pour 0,64 à 0,78 Mt de MES, dont seulement 0,22 à 0,33 Mt, soit du quart à la moitié, seraient arrêtées dans la retenue de Verbois. De telles estimations du flux de MES et du taux de dépôt dans la retenue de Verbois restent très incertaines, et appelleraient des observations plus détaillées ; ces résultats sont néanmoins cohérents avec le stockage annuel estimé à l'échelle du bassin versant du Haut-Rhône. La question du sable pour la comparaison entre les dépôts dans les retenues et les flux de MES est également discuté en Annexe J.

Ces bilans confirment que l'Arve contribue fortement au flux de MES du Haut-Rhône. Ses flux sont stockés en partie dans la retenue de Verbois, contribuant chaque année à ce que le bilan de masse de MES à l'échelle du Haut-Rhône ne soit pas équilibré. La retenue de Verbois étant régulièrement dégravée, les MES se dépose probablement ailleurs dans le réseau (marges, lônes, Vieux Rhône, cf. thèse Riquier, 2013)

5.3.3 Bilans de flux dans l'ensemble du Rhône

Pour le Rhône du Léman à la mer, les bilans de flux sont exprimés en déterminant l'écart relatif entre les apports du Haut-Rhône et des principaux affluents, la Saône, l'Isère et la Durance, et le flux à l'exutoire du bassin versant, à Beaucaire (Cf. Tab. 5.8). Le flux à Beaucaire est déterminé à partir des mesures de concentration en MES et de teneurs en contaminants à Arles et du débit à Beaucaire.

5.3.3.1 Les flux mesurés en 2011-2012

Les affluents considérés couvrent près de 60 % de la surface du bassin versant, et contribuent majoritairement aux apports en eaux et en MES du bassin versant (Cf. Tab. 5.8). En effet, les bilans hydrique et sédimentaire pour l'année hydrologique 2011-2012 en considérant seulement ces apports sont de -21 % et -4 % respectivement. Les apports en MES des affluents sont légèrement inférieurs aux flux mesurés à Beaucaire. Aux incertitudes de mesure près, le bilan entre les apports en MES des affluents et ceux du Rhône total peut être considéré comme équilibré pour 2011-2012.

Comme observé sur le Haut-Rhône, les affluents alpins (Isère et Durance) présentent des flux spécifiques de MES jusqu'à 20 fois supérieurs à celui de la Saône (Cf. Tab. 5.8). Les affluents alpins (Arve et Isère) ont des concentrations moyennes en MES 3 à 5 fois plus élevées que les concentrations en MES moyennes de la Saône (affluent de plaine) et du Rhône à Jons et Arles. La concentration moyenne en MES est particulièrement élevée pour la Durance, qui a connu une crue très importante en novembre 2011, avec des concentrations en MES atteignant 20 g/L au pic de crue. Les apports en MES de la Durance sont d'ailleurs exceptionnels pour l'année 2011-2012 et représentent près de 50 % des apports des affluents, alors que ses apports en eau ne sont que de 3 % (Cf. Fig. 5.10). En revanche, le Haut-Rhône, qui contribue à 47 % aux apports hydriques, ne représente que 20 % des apports en MES pour cette année. Un quart des apports en MES sont assurés par l'Isère.

Les mesures de teneurs en contaminants dans le Haut-Rhône à Jons, dans la Saône et dans la Durance réalisées en 2011-2012 permettent d'évaluer les flux de mercure et de $\sum$PCBi pour l'année 2011-2012 (Cf. Tab. 5.8). Les apports des affluents viennent principalement de l'Isère pour la $\sum$PCBi (60 % des apports des affluents) et de la Durance et de l'Isère pour le mercure (37 et 39 % des apports des affluents respectivement, cf. Fig. 5.10).

Tableau 5.8 – Bilan des flux d'eau, de MES, de mercure et de somme des 7 PCB indicateurs (∑PCBi) mesurés dans l'ensemble du Rhône, et concentrations moyennes pondérées de MES, mercure et ∑PCBi

	Arve	Haut-Rhône	Saône	Isère	Durance	Beaucaire	J+S+I+D	Réseau (Σ-A)/A
Surface drainée (km²)	**1976**	**20300**	**29908**	**5720**	**14225**	**120000**	**70153**	**-42%**
Année 2011-2012								
Flux eau (10^9 m³/an)	**2,1**	**17,6**	**8,2**	**9,8**	**1,4**	**47,0**	**37,0**	**-21%**
Flux MES [Mt/an]	**0,35**	**0,69**	**0,27**	**1,08**	**2,10**	**4,31**	**4,14**	**-4%**
Incertitude d'estimation du flux	*20%*	*20%*	*20%*	*20%*	*20%*	*20%*		
concentration moyenne [g/L]	*0,168*	*0,039*	*0,033*	*0,110*	*1,544*	*0,092*		
flux spécifique [t/an/km²]	*177,1*	*34,0*	*9,0*	*188,8*	*147,6*	*35,9*		
Flux mercure [kg/an]	**20,6**	**34,9**	**59,9**	**161,5**	**151,2**	**666,4**	**407,50**	**-39%**
concentration moyenne [µg/kg]	*59*	*51*	*222*	*150*	*72*	*155*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*100%*	*20%*	*50%*	*100%*	*100%*	*20%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*10*	*2*	*2*	*28*	*11*	*6*		
Flux ΣPCBi [kg/an]	**5,6**	**6,0**	**4,4**	**28,4**	**8,7**	**63,6**	**47,54**	**-25%**
concentration moyenne [µg/kg]	*16,0*	*8,7*	*16,4*	*26,3*	*4,1*	*14,8*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*100%*	*20%*	*50%*	*100%*	*100%*	*20%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*2,8*	*0,3*	*0,1*	*5,0*	*0,6*	*0,5*		
Années 2001-2011								
Flux eau (10^9 m³/an)	**2,0**	**17,1**	**12,9**	**9,0**	**1,5**	**47,0**	**40,5**	**-14%**
Flux MES [Mt/an]	**0,49**	**0,61**	**0,39**	**2,29**	**1,65**	**4,70**	**4,94**	**5%**
Incertitude d'estimation du flux	*50%*	*50%*	*50%*	*50%*	*50%*	*50%*		
Min – Max	***0,30 – 0,96***	***0,28 – 1,36***	***0,30 – 0,52***	***0,82 – 8,1***	***0,60 – 3,2***	***1,1 – 10,2***		
Écart-type interannuel	*41%*	*52%*	*17%*	*94%*	*56%*	*69%*		
Incertitude d'estimation de la moyenne	*26%*	*33%*	*11%*	*60%*	*35%*	*44%*		
concentration moyenne [g/L]	*0,245*	*0,036*	*0,030*	*0,254*	*1,100*	*0,100*		
flux spécifique [t/an/km²]	*248,0*	*30,0*	*13,0*	*400,3*	*116,0*	*39,2*		
Flux mercure [kg/an]	**22**	**30**	**84**	**342**	**119**	**666**	**575**	**-14%**
Min – Max	***14 – 44***	***14 – 67***	***59 – 117***	***123 – 1215***	***43 – 230***	***170 – 1580***		
concentration moyenne [µg/kg]	*45*	*49*	*216*	*150*	*72*	*142*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*100%*	*50%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*11*	*1*	*3*	*60*	*8*	*6*		
Flux ΣPCBi [kg/an]	**6,0**	**5,2**	**6,5**	**60,2**	**1,7**	**63,6**	**73,6**	**16%**
Min – Max	***2,0 – 40,4***	***2,4 – 11,5***	***4,4 – 8,4***	***21,5 – 213,0***	***0,01 – 8,7***	***16,2 – 150,9***		
concentration moyenne [µg/kg]	*12,2*	*8,5*	*16,6*	*26,3*	*1,0*	*13,5*		
Incertitude d'estimation de la teneur	*100%*	*50%*	*100%*	*100%*	*100%*	*50%*		
flux spécifique [g/an/km²]	*3,0*	*0,3*	*0,2*	*10,5*	*0,1*	*0,5*		
Pluriannuel								
	1974-2012	**1993-2012**	**1982-2012**	**1995-2008**		**1967-2012**		
Flux MES [Mt/an]	**0,78**	**0,80**	**0,45**	**1,90**	**?**	**7,55**	**3,15**	**-58%**
Min – Max	***0,22 – 1,4***	***0,25 – 2,0***	***0,07 – 1,1***	***0,82 – 8,1***		***1,1 – 22,4***		
Écart-type interannuel	*47%*	*58%*	*20%*	*94%*		*80%*		
Incertitude d'estimation de la moyenne	*30%*	*37%*	*13%*	*60%*		*51%*		
concentration moyenne [g/L]	*0,390*	*0,047*	*0,035*	*0,211*		*0,160*		
Etude Globale Rhône 2003								
Flux MES EGR min [Mt/an]	**1,00**	**1,40**	**1,50**	**3,50**	**0,10**	**7,40**	**6,50**	**-2%**
concentration moyenne [g/L]	*0,500*	*0,082*	*0,116*	*0,389*	*0,067*	*0,159*		
Flux MES EGR max [Mt/an]	**3,6**	**4,1**	**3**	**3,5**	**1,8**	**11,2**	**12**	**23%**
concentration moyenne [g/L]	*1,800*	*0,240*	*0,233*	*0,389*	*1,200*	*0,238*		

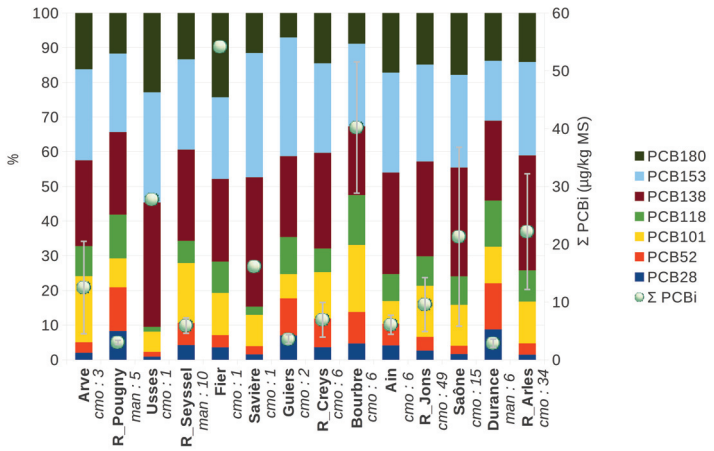


FIGURE 5.9 – Pourcentages moyens en PCB indicateurs des MES échantillonnées à la centrifugeuse ou manuellement dans le cadre du suivi de l'OSR (septembre 2011-février 2013) : Proportion de la teneur moyenne en PCBi par rapport à la teneur moyenne de la somme des PCB indicateurs. Nombre de prélèvements par centrifugation (cmo) ; par prélèvements manuels (man)

Les teneurs moyennes en $\sum$PCBi varient de 4,1 à 26,3 μg/kg entre les stations (Cf. Tab. 5.8). La plus forte teneur est obtenue dans l'Isère et la plus faible dans la Durance. La $\sum$PCBi des stations situées sur le Rhône augmente de l'amont vers l'aval ; la teneur mesurée à Beaucaire est ainsi 1,7 fois plus importante que dans le Rhône amont à Jons. Pour toutes les stations à l'exception de la Bourbre (Cf. §5.3.2.1) et de la Durance, les PCB 138, 153 et 180 prédominent, représentant plus de 50 % de la contamination totale (Cf. Fig. 5.9). Les PCB les plus fréquemment quantifiés dans le Rhône et ses affluents sont donc ceux dont le coefficient de partage octanol/eau (log Kow) est le plus élevé (Cf. Annexe A). Dargnat et Fisson (2010) indiquent qu'une prédominance des PCB légers au sein des échantillons révèle la présence de sources d'apports locaux, puisque les PCB légers sont moins stables dans l'environnement que les PCB lourds. Les profils obtenus dans le bassin versant du Rhône suggèrent que la contamination des MES par les PCB se fait principalement par des sources diffuses, et que des sources locales de contamination pourraient exister sur la Durance. Sur le bassin versant de la Durance se trouve l'usine Arkema de Saint-Auban, condamnée pour la pollution de la Durance au mercure, au chlore et aux solvants chlorés, de 2003 à 2005, et l'abandon de déchets dans les eaux (Alpes-de-Haute-Provence) [1] ; cette usine est actuellement en cours de démantèlement, mais la pollution de la Durance reste avérée. Toutefois, cette usine se trouve en amont des Mées, et est donc très éloignée de l'exutoire du bassin où ont été effectuées les mesures. Outre cet éloignement, les très faibles teneurs en $\sum$ PCBi sur la Durance peuvent également être dues au fait que les prélèvements ont été effectués en crue, et qu'une teneur plus faible en crue qu'en régime de base a été constatée pour d'autres stations du bassin versant (jusqu'à un facteur 2).

1. http ://www.journaldelenvironnement.net/article/arkema-condamnee-pour-pollution-de-la-durance,27989

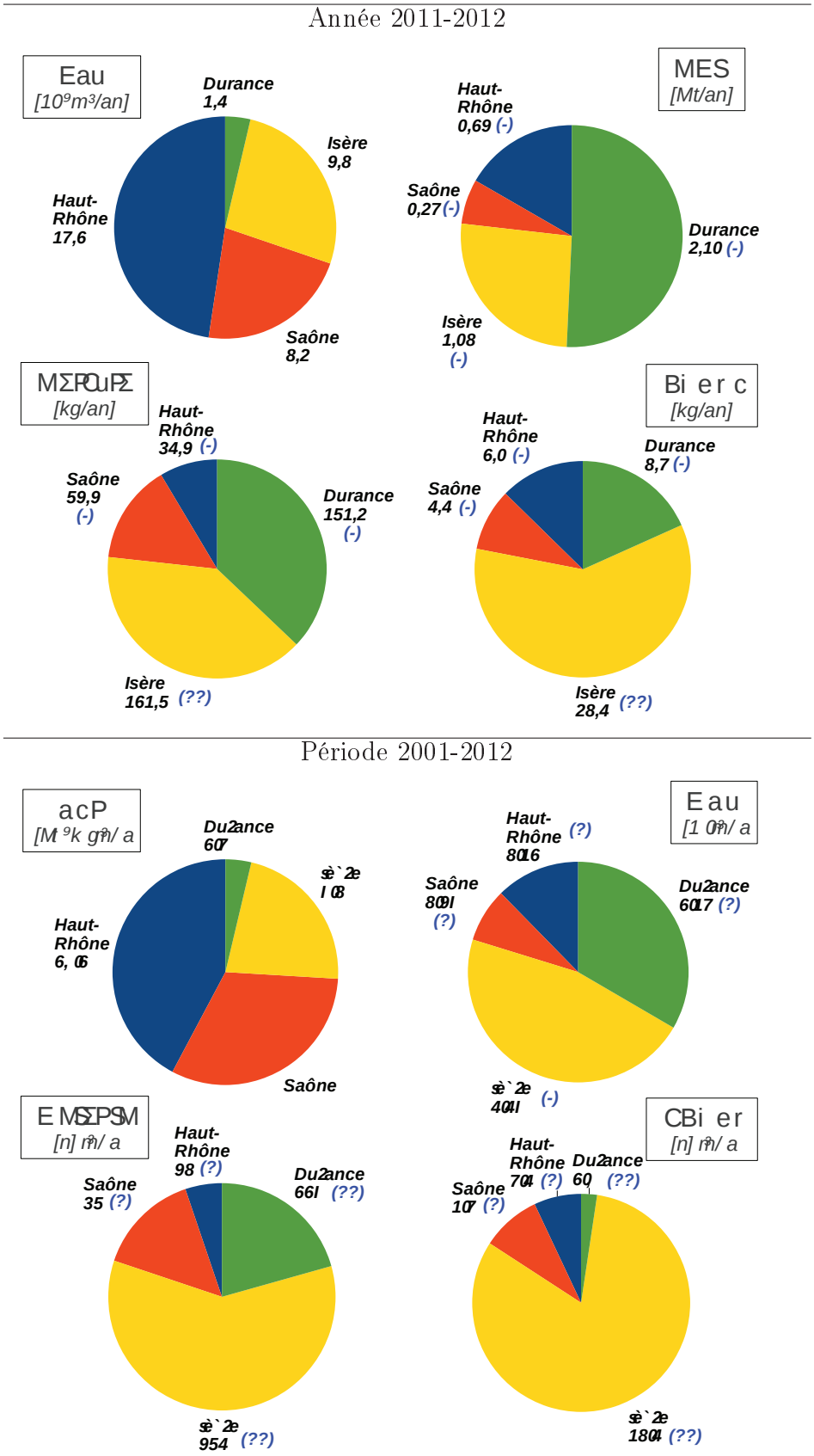


FIGURE 5.10 – Bilan des contributions en eau, MES, mercure et somme des 7 PCB indicateurs (∑PCBi) des affluents au Rhône aval en 2011-2012 et sur 10 ans (2001-2012)

Les teneurs moyennes en mercure des MES pour les différents affluents varient de 0,051 à 0,222 mg/kg (Cf. Tab. 5.8). Les teneurs en mercure à Arles sont en moyenne 3 fois plus élevées que sur le Haut-Rhône ; et la Saône et l'Isère présentent des teneurs élevées en mercure (0,222 et 0,150 mg/kg respectivement) par rapport au Haut-Rhône et à la Durance (0,051 et 0,072 mg/kg respectivement), supérieures au fond géochimique que peuvent contenir naturellement les sols, de 0,030 à 0,150 mg/kg de mercure selon le type de roche mère (Coquery, 1994; UNEP/MAP/MED, 2003; Thomassin et Touzé, 2003), et qui indiquent une contamination de ces cours d'eau. La forte teneur moyenne en mercure de la Saône est cohérente avec les observations faites par Santiago *et al.* (1993) et Sonney *et al.* (2005b) quant à la présence probable d'une source de mercure anthropique industrielle sur le bassin versant de la Saône.

Pour l'Isère, les teneurs en mercure utilisées pour le calcul des flux sont issues du réseau Eau et MES de l'AERMC pour la période 2000-2007 pour le mercure (0,083±0,097 mg/kg, n=32). Au regard des observations aux autres stations, ces teneurs en contaminants sont susceptibles de varier d'un facteur 2 à 3 (Cf. §3.5.3.2). Des sources de mercure industriel sont documentées sur le bassin de l'Isère. C'est le cas de l'usine Arkema à Jarrie située à proximité du Drac, dont la confluence avec l'Isère est localisée entre les stations de l'Isère à Grenoble et de l'Isère à Chateauneuf. Elle fait partie des sites identifiés par l'association France Nature Environnement (FNE[2]) comme source de mercure dans le bassin versant du Rhône.

Les bilans en contaminants pour l'année 2011-2012 sont déficitaires pour le mercure (-32 %) et la $\sum$PCBi (-16 %) (Cf. Tab. 5.8). Les affluents considérés étant les principaux contributeurs au flux de MES, nous pouvons estimer que les bilans en contaminants particulaires devraient être équilibrés au même niveau que le bilan de MES. L'Isère étant le seul affluent pour lequel les teneurs en contaminants relèvent d'estimation et non de mesures pour l'année 2011-2012, nous avons réévalué les flux de l'Isère afin que les bilans de mercure et de $\sum$PCBi bouclent à -4 %. Les flux ainsi obtenus sont de 394 kg pour le mercure et de 42 kg pour la $\sum$PCBi. Les teneurs moyennes pondérées en contaminant calculées à partir de ces flux sont de 0,365 mg/kg pour le mercure et de 38,8 μg/kg pour la $\sum$PCBi et diffèrent donc d'un facteur 2,4 et 1,5 respectivement des teneurs moyennes du suivi AERMC. Cet écart est du même ordre de grandeur que les écarts observés entre les données issues des suivi OSR et AERMC pour les stations communes aux deux suivis (i.e. Jons et Arles). Des données de teneurs en contaminants mesurées dans l'Isère sont indispensables pour améliorer les bilans de contaminants particulaires. Il pourrait être intéressant de comparer ces estimations avec celles de Dutordoir, 2014 (thèse LTHE sur les flux de contaminants de l'Isère).

2. http ://www.fne.asso.fr

Au regard des incertitudes de mesure évoquées, les bilans de contaminants particulaires pour le Rhône total en 2011-2012 peuvent être considérés comme équilibrés. Les écarts relatifs dans les bilans de contaminants peuvent également être dûs à des apports de contaminants par d'autres sources que les affluents. Les zones industrielles situées le long du corridor rhodanien (vallée de la chimie en aval de la confluence Rhône-Saône par exemple) peuvent représenter des apports de contaminants qui ne sont pas pris en compte dans les bilans présentés ici.

Entre les stations de Jons et d'Arles sur le Rhône, les flux de MES sont multipliés par un facteur 13 à 6 pour les années civiles 2011 et 2012 (Cf. Tab.5.3.3.1). Les flux de mercure et de ∑PCBi augmentent d'un facteur 12 à 23 entre les deux stations et les teneurs en contaminants sont multipliées par 2 entre Jons et Arles. Les flux de MES et de contaminants sont 6 fois plus importants en 2012 qu'en 2011 à Jons, notamment à cause de la période des chasse, et parce que les apports en MES sont particulièrement faibles en 2011. Néanmoins, les teneurs moyennes en contaminants sont similaires en 2011 et en 2012. La différence de flux est donc principalement liée à l'augmentation des concentrations en MES (Cf. Tab.5.3.3.1). A Arles, les flux de MES sont deux fois plus élevés en 2012 qu'en 2011. La forte augmentation des apports de MES du Haut-Rhône est donc atténuée à Arles.

Le flux de mercure particulaire du Rhône à Arles pour l'année 2009 est estimé à 144 kg/an sur la base de concentrations bimensuelles (Castelle, 2010). Ce flux est 2 fois plus faible que le flux que nous avons obtenu pour l'année 2011 (300 kg/an) et 3 fois plus faible qu'en 2012 (610 kg/an). Ces différence de flux de mercure ne sont pas expliquées par les flux de mercure, puisqu'en 2009, le flux de MES est d'environ 3 Mt, comme en 2011 (Cf. Fig. 5.4). Il y a donc une différence de teneur en mercure des MES entre ces deux années, qui peut être liée à des apports d'origine différentes (affluents cévenols vs affluents alpins par exemple, Cf. Fig. 5.3).

Pour la ∑PCBi, le flux du Rhône à Arles est estimé à 290 kg/an en 1994 par Tronczynski et Héas-Moisan (1996) et à 87,3 kg/an en 2010 par Tronczynski et Tixier (2012). Nous obtenons 30 kg/an de ∑PCBi en 2011 et 80 kg/an de ∑PCBi en 2012. En 1994, le flux de MES était d'environ 7 Mt, contre 3 Mt en 2010. Les différences de flux de ∑PCBi entre les différentes années ne sont donc pas complètement expliqués par les flux de MES. Les teneurs moyennes pondérées en ∑PCBi des années 1994 et 2010 sont plus importantes d'un facteur 3,5 et 2 respectivement à celles des années 2011 et 2012. Ces résultats sont en accords avec les observations faites au §5.3.1 sur une diminution des teneurs en PCB au cours des dix et vingt dernières années.

La seule étude existant à notre connaissance sur les flux de ∑PCBi dans le Haut-Rhône a été réalisée par Fruget *et al.* (2010) en 2008-2009. Ils ont montré que le flux de PCB circulant dans le Rhône en aval du rejet de l'usine Trédi, située en amont de la confluence entre le Rhône et l'Ain, est compris entre 3 et 12 kg/an. Les flux que nous obtenons à la station du Rhône à Jons sont compris dans cette estimation.

Tableau 5.9 – Flux et concentrations moyennes pondérées de MES, de mercure et de ∑PCBi à Jons et à Arles pour les années civiles 2011 et 2012

	Flux					
	MES (Mt/an)		Mercure (kg/an)		∑PCBi (kg/an)	
Station	Arles	Jons	Arles	Jons	Arles	Jons
Année 2011	2,7	0,21	300	13	30	1,4
Année 2012	5,6	0,89	610	47	80	6,2
	Concentration moyenne pondérée					
	MES (g/L)		Mercure (mg/kg)		∑PCBi (μg/kg)	
Station	Arles	Jons	Arles	Jons	Arles	Jons
Année 2011	0,078	0,011	0,111	0,062	11,1	6,7
Année 2012	0,111	0,039	0,109	0,053	14,3	7,0

5.3.3.2 Les flux reconstitués de 2001 à 2012

Sur la période 2001-2012, les apports d'eau pour l'ensemble du Rhône proviennent à 42 % du Haut-Rhône, à 32 % de la Saône et à 22 % de l'Isère (Cf. Fig. 5.10). La Durance ne représente que 4 % des apports hydriques sur la période 2001-2012. Le bilan hydrique est est déficitaire à -14 %, ce qui s'explique par la surface de bassin versant qui n'est pas drainée par les affluents considérés.

Le bilan de MES à l'échelle de l'ensemble du Rhône sur la période de 10 ans de 2001 à 2011 est excédentaire à + 5 % près (Cf. Tab. **??**). Au regard des incertitudes associées à la méthode de reconstitution des flux (relation CsQ), on peut estimer que ce bilan à 10 ans est bouclé [3]. De plus, les concentrations en MES moyennes obtenues sur les 10 années et à plus long terme sont très proches des concentrations en MES mesurées au cours de l'année 2011-2012, ce qui permet de valider les méthodes de reconstitution utilisées. Les écart-types interannuels varient fortement traduisant la dynamique différente des affluents. La Saône, avec l'écart-type interannuel le plus faible, présente une dynamique sédimentaire "molle" et très constante d'une année à l'autre. L'Isère en revanche a

3. Pour l'Isère, les flux 10 ans et long-terme sont mesurés à Grenoble-Campus. Pour EGR flux Arles, on a considéré 90 % de Beaucaire. La moyenne 10 ans sur la Durance est établie à partir des années civiles 2002-2003-2008-2009-2011-2012 (données EDF).

une grande variabilité de flux de MES annuels et sa concentration en MES moyenne, du même ordre que celle de l'Arve, est 2,5 fois plus importante que la concentration en MES moyenne du Rhône à Arles.

Les flux de MES que nous avons calculé à l'échelle décennale et à plus long terme sont également relativement constants (Cf. Fig.5.11). En revanche, les flux de MES moyens interannuels de l'Etude Globale Rhône (Hydratec, 2003) apparaissent fortement surestimés par rapport à nos résultats (Cf. Tab. 5.8). Cette surestimation est confirmée par les concentrations en MES moyennes obtenues à partir des flux de l'EGR, largement supérieures aux concentrations mesurées et irréalistes pour la Saône et le Haut-Rhône. Ainsi, les mesures quasi-continu sur la période 2011-2012, ont permis une reconstitution fiable des flux de MES sur les 10 dernières années, et offrent une nouvelle vision des flux de MES à l'échelle du Rhône par rapport à celle de l'Etude Globale Rhône (Hydratec, 2003). Les bilans de contaminants sur 10 ans sont équilibrés à ± 20 %, ce qui, au regard des incertitudes dans le calcul des flux, est faible. Les flux sont très fortement associés aux flux de MES et nous observons les mêmes écart-types interannuels pour les MES et les contaminants.

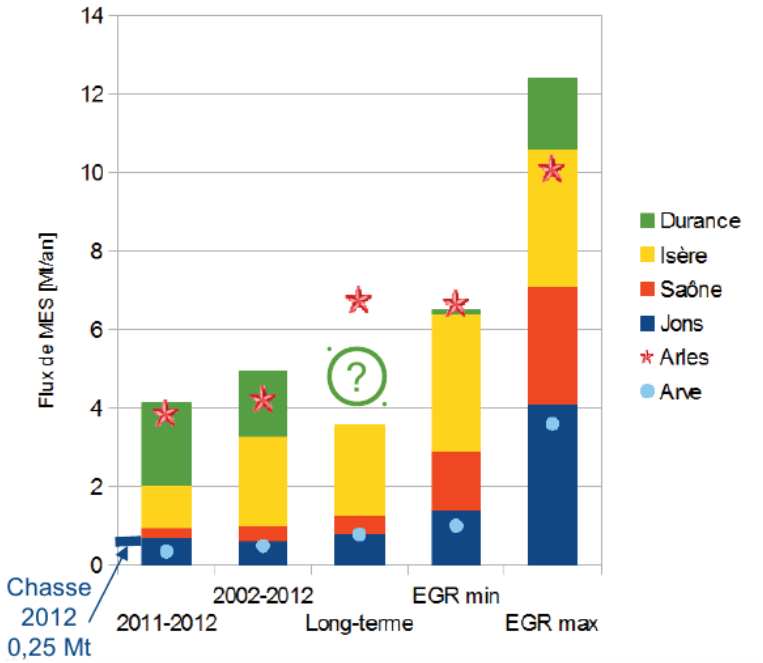


FIGURE 5.11 – Contribution des affluents au flux de MES du Rhône total

5.4 Analyse spatiale du Haut-Rhône et de la Saône

Plusieurs modèles pour quantifier les flux de MES à l'aide de systèmes d'informations géographiques existent (Cf. Chap. 1). Nous avons appliqué le modèle de Delmas *et al.* (2009) sur le

bassin versant du Haut-Rhône. Nous avons également appliqué la méthode qualitative de Bertrand (2009) pour identifier les zones de production des MES en définissant la sensibilité à l'érosion des versants.

5.4.1 Application de la méthode PESERA

Delmas *et al.* (2009) proposent de faire une somme pondérée de 4 indicateurs qui décrivent les processus majeurs de production et de transfert des sédiments au sein des bassins versants : l'érosion moyenne (HE), la mise en mouvement des particules (MM), le transfert par les cours d'eau décrit par la densité du réseau de drainage (DD) et le dépôt des particules sur les versants (D). A partir de résultats obtenus sur 29 bassins versants européens et comparés avec des flux mesurés Delmas *et al.* (2009), propose l'équation empirique suivante, pour déterminer le flux de sédiment exporté par un bassin versant (SSY) :

$$Ln(SSY) = 0.034HE + 0.047MM + 0.061DD - 0.045D - 0.8648 \tag{5.2}$$

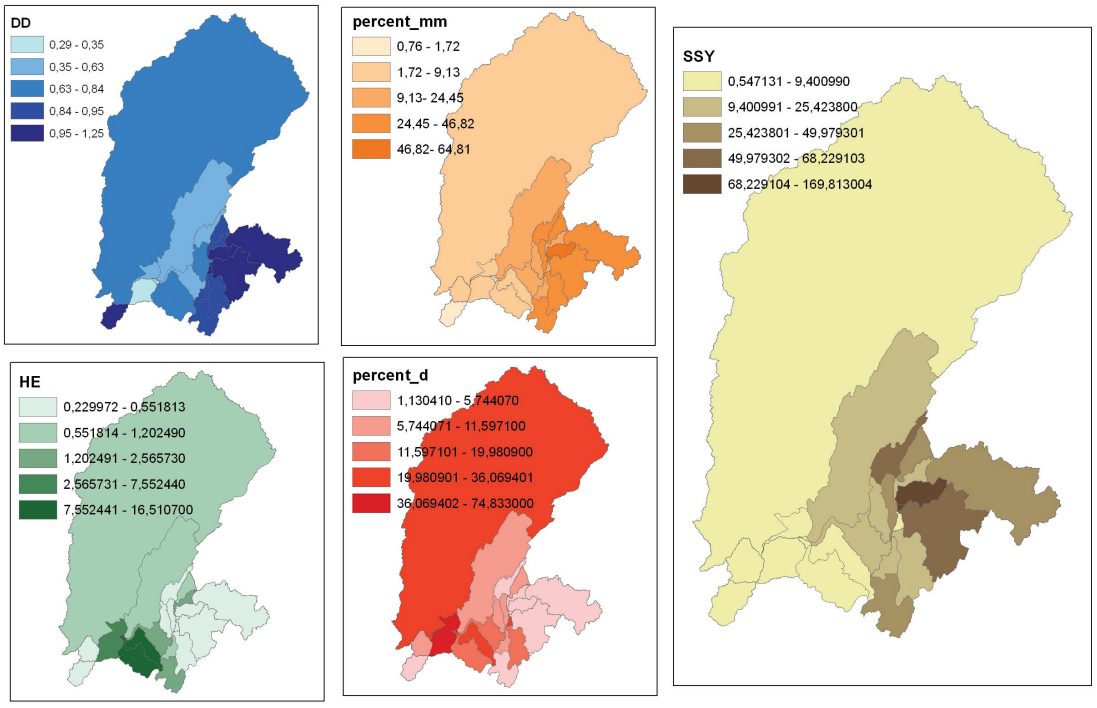


FIGURE 5.12 – Couches raster des 4 indices HE, MM, DD et D proposés par Delmas *et al.* (2009) et estimation des exports de sédiments à l'exutoire SSY des bassins versants du Haut-Rhône et de ses affluents (Source : G. Fantino, 2013)

Les données que nous avons utilisées pour déterminer HE, MM, DD et D sur la zone d'étude sont :

- HE : cet indice a été évalué pour tout le territoire européen dans le cadre du programme PESERA (Pan European Soil Erosion Risk Assessment) en croisant des couches d'information spatiale sur la topographie, l'utilisation des sols, la pédologie et le climat. Les données d'entrée de ce modèle sont un modèle numérique de terrain (MNT), la base de données Corine Land Cover pour l'occupation des sols, des informations issues du European Soil Database, et des informations climatiques issues du MARS Project. La résolution spatiale de la couche de données est un maillage de 1 km de coté. Une reclassification des valeurs est opérée pour avoir une valeur moyenne de classe par pixel, puis un calcul de moyenne zonale est réalisé pour avoir une valeur moyenne par sous-bassin versant. La carte présentant les résultats en t/ha/an de cette étude est disponible sur internet[1] pour être utilisée dans un système d'information géographique.
- MM : le pourcentage de l'aire du bassin versant permettant la mise en mouvement des particules est calculé en croisant les données de pente et de matériau composant le sol. Les données utilisées sont le MNT de la BD Alti de l'IGN (résolution spatiale 25 m) et la carte lithologique simplifiée au 1/1 000 000e du BRGM. Le croisement des couches permet d'identifier les surfaces répondant aux critères listés dans la Fig. 1.3, correspondant aux zones potentielles de mise en mouvement des particules et de calculer leur emprise au sein de chaque sous-bassin versant.
- DD : la densité de drainage est obtenue en divisant la longueur totale des cours d'eau présents par la surface du bassin versant. Elle est calculée à partir de la couche "tronçon hydrographique" de la BD Carthage.
- D : Le dépôt des particules sur les versants est obtenu par analyse de la BD Alti de l'IGN.

La Fig. 5.12 présente les couches raster des 4 indicateurs obtenus pour les bassins versants du Haut-Rhône.

Pour la Bourbre, la Valserine, les Usses, le Guiers et l'Ain, dont les flux de MES moyens annuels et décennaux sont plutôt faibles par comparaison avec les autres affluents, les flux obtenus par analyse spatiale sont très proches des flux mesurés et reconstitués (Cf. Fig. 5.13). En revanche, pour le Fier, la Saône, l'Arve et le Rhône à Jons les flux des MES issus de l'analyse spatiale sont très inférieurs aux flux moyens, d'un facteur 2 à 7. L'analyse spatiale conduite ne permet donc pas de reproduire les flux de MES que nous avons mesuré ou calculé en 2011-2012 et à l'échelle décennale pour les principaux affluents contributeurs au flux de MES.

1. http ://eusoils.jrc.ec.europa.eu/ESDB_Archive/pesera

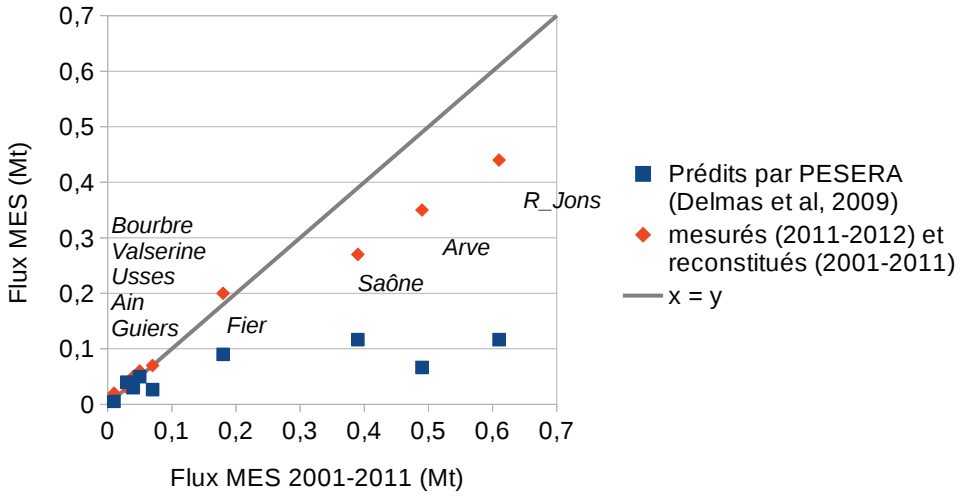


FIGURE 5.13 – Flux de MES mesurés (2011-2012), reconstitués (2001-2011) et estimés par la méthode PESERA (Delmas *et al.*, 2009)

5.4.2 Sensibilité à l'érosion des bassins versants

La méthode qualitative s'appuie sur la méthode de Bertrand (2009) pour identifier les zones de sensibilité à l'érosion. Pour le bassin versant du Rhône, les données cartographiques disponibles pour effectuer cette analyse cartographique sont issues de la BD Alti 25m de l'IGN pour les pentes et courbures, de la base de données Corine Land Cover pour l'occupation des sols, et de la carte lithologique simplifiée au 1/1 000 000e du BRGM.

La Fig. 5.14 présente la carte de la sensibilité à l'érosion des bassins versants du Haut-Rhône. Les zones en rouge indiquent une forte sensibilité à l'érosion, et donc une production de MES potentiellement importante. Cette carte de sensibilité représente bien la hiérarchie sédimentaire des bassins versants que nous avons observé à partir des flux spécifiques de MES. Les bassins versants alpins, comme l'Arve, qui présentent des flux spécifiques très importants (248 t/an/km^2 pour l'Arve), sont en majorité en jaune et rouge. Le bassin versant de la Saône au contraire est majoritairement vert, avec peu de zones sensibles à l'érosion, ce qui est cohérent avec son flux spécifique en MES faible (13 t/an/km^2).

Cette carte fournit donc une information géographique qui permet de hiérarchiser les bassins versants en termes de production sédimentaire. Il serait utile de calculer un indicateur moyen pour chaque sous-bassin versant. En reliant cet indicateur au flux de MES spécifique pour les bassins versants pour lesquels les flux de MES sont mesurés ; nous pourrions alors effectuer une analogie pour les bassins versants pour lesquels on ne dispose pas de données.

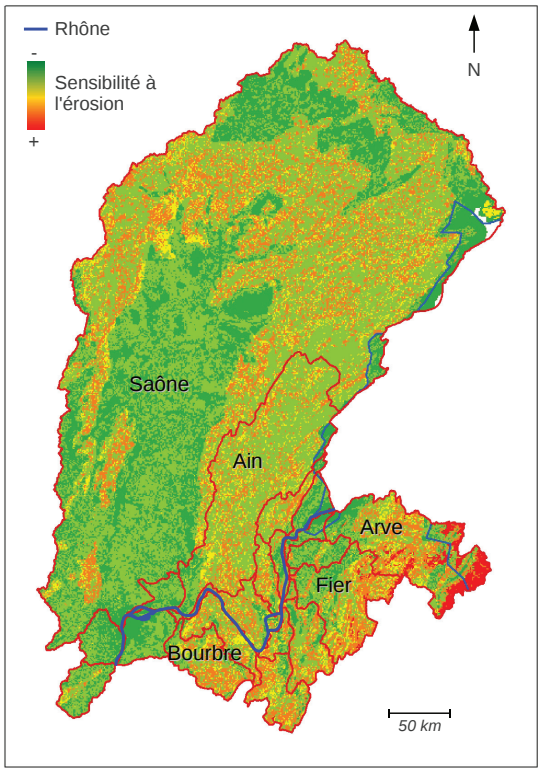


FIGURE 5.14 – Sensibilité à l'érosion définie suivant la méthode décrite dans Bertrand (2009) pour les bassins versants de la Saône, du Haut-Rhône et de ses affluents.

L'analyse de la sensibilité à l'érosion n'est toutefois pas toujours suffisante pour expliquer les flux de MES aux exutoires des bassins versants. Dans le cas de l'Ain, par exemple, le bassin versant est principalement composé de zones assez sensibles à l'érosion (vert clair à orange), pourtant le flux de MES moyen annuel de l'Ain est faible (0,05 Mt/an). Une importante part des MES est probablement stockée dans le réseau hydrographique en amont de la basse vallée de l'Ain, dans la chaîne de barrages de Vouglans (5 retenues). Pour compléter l'analyse des flux de MES produits par les bassins versants, il est donc primordial de tenir compte de la connectivité du réseau hydrographique pour déterminer comment les particules érodées peuvent se déplacer ou se stocker dans le réseau. L'étape suivante est l'ajout d'un forçage hydro-climatique pour tenir compte des précipitations sur les zones de sensibilité à l'érosion. Cette démarche constitue les prémisses d'une modélisation hydrologique à l'échelle du bassin versant. Au niveau des contaminants, la prise en compte des informations spatiales concernant les sources de contamination connues dans cet outil géographique permettrait également une interprétation des origines et des flux de contaminants particulaires.

5.5 Conclusion

La dynamique sédimentaire à l'échelle d'un événement comme les crues ou les chasses de barrage sur un réseau hydro-sédimentaire compliqué comme le Rhône nécessite d'être étudiée au cas par cas.

Les bilans de MES réalisés à l'échelle du bassin versant du Haut-Rhône à l'échelle événementielle, annuelle et décennale montrent un stockage annuel des MES de 0,2 à 0,6 Mt/an dans le réseau hydrographique (retenues, marges). A l'échelle de l'ensemble du Rhône, l'analyse des flux menée à partir des mesures quasi-continues sur la période 2011-2012, qui permettent une reconstitution fiable des flux de MES sur les 10 dernières années, et conduit à une nouvelle vision des flux de MES à l'échelle du Rhône par rapport à celle de l'Etude Globale Rhône (Hydratec, 2003). Les flux calculés à l'échelle décennale et sur du plus long terme (15 à 40 ans selon les affluents) sont en moyenne 3 fois plus faibles que ceux proposés dans l'EGR pour les affluents majeurs. Le flux de MES annuel moyen enregistré à Arles est de 6,74 Mt de MES. Il est donc 5 fois plus important que la somme des flux du Rhône à Jons et de la Saône à Lyon.

Les bilans en contaminants, à l'échelle de l'ensemble du Rhône démontrent la nécessité de poursuivre les mesures. Les apports en MES prédominants de l'Arve au Haut-Rhône incitent à intensifier la caractérisation des teneurs en contaminants de cet affluent, pour améliorer la quantification des apports en mercure et PCB. Les flux de MES du Fier apparaissent également non négligeables pour le Haut-Rhône, et les teneurs en contaminants très élevées que nous avons déterminé sur 1 seul échantillon sont à confirmer. Le même constat est fait pour l'Isère lors des bilans à l'échelle du Rhône du Léman à la mer. Dans le cadre de l'OSR, cet affluent, localisé en position intermédiaire dans le bassin versant, a été peu étudié par les équipes concentrées sur le Haut-Rhône et le Rhône aval ; aussi de grosses incertitudes subsistent sur les teneurs en mercure et en PCB de l'Isère. Cependant, une étude sur les contaminants dans les MES de l'Isère est en cours (thèse de S. Dutordoir, 2014). Il apparaît donc nécessaire d'associer ces travaux à ceux de l'OSR pour améliorer la quantification des apports en contaminants de l'Isère. De façon générale, l'effort de quantification des contaminants doit donc se poursuivre sur les affluents du Rhône et du Haut-Rhône pour confirmer les bilans proposés dans ce chapitre.

Les systèmes d'informations géographiques permettent de quantifier les flux de matières exportés par les bassins versants. Cependant, la quantification des flux de MES par l'analyse spatiale reste imparfaite puisque les résultats obtenus ne sont pas cohérents avec les mesures effectuées en 2011-2012. L'amélioration de cet outil pour la quantification des flux nécessite une approche la modélisation hydrologique spatialisée. En revanche, cet outil spatial est intéressant pour l'interprétation et la compréhension de l'origine des flux de MES. En croisant les informations sur les zones productrices

de MES avec la localisation des sources connues de contaminants, cet outil pourrait également se révéler très utile pour l'étude des sources de contaminants particulaires.

La modélisation peut constituer une aide intéressante pour sa compréhension et son interprétation.

6 Contribution à la modélisation des processus hydro-sédimentaires dans le Rhône

6.1 Introduction

Ce dernier chapitre présente le modèle hydro-sédimentaire développé sur le Rhône. Cet un outil numérique a pour finalité d'analyser le transport de sédiments sur le Rhône de la frontière franco-suisse à la mer Méditerranée. Ses capacités à reproduire les flux de contaminants particulaires sont évaluées à travers la modélisation de la chasse des barrages de juin 2012. Les avancées obtenues sont présentées et les améliorations futures à mettre en place sont pointées.

La modélisation du flux sédimentaire en MES sur le réseau hydrographique du Rhône entre le Lac Léman et la station hydrométrique de Lyon-Perrache a été réalisée à l'aide d'un modèle 1D. Pour cela, un logiciel de simulation hydraulique (Code de calcul MAGE, Irstea, 2009) couplé à un modèle d'advection-dispersion pour simuler le transport des sédiments (Code de calcul Adis-TS, Irstea 2012) a été utilisé.

La création du modèle a une visée clairement opérationnelle. Les informations prédictives qu'il peut apporter peuvent servir directement pour la gestion du fleuve, en particulier dans le cadre d'opérations ponctuelles de remobilisation artificielle des sédiments (dragages, chasses d'ouvrage) afin d'organiser ces opérations au regard de différents scénarios et de connaître par exemple leurs impacts potentiels.

Pour le cas des opérations de chasse 2012, l'objectif est dans un premier temps l'amélioration du modèle afin de représenter correctement les conditions hydrauliques qui se caractérisent principalement par l'abaissement des retenues de Verbois et de Génissiat et par l'accompagnement de la chasse par l'abaissement des retenues sur le Haut-Rhône français. Dans un deuxième temps, il s'agit de reproduire correctement les flux en MES engendrés par la reprise de dépôts sédimentaires et de la décantation de MES le long du réseau, au cours de la période. Le modèle doit être fiable et robuste.

Le modèle a été construit selon les étapes suivantes :

- Recueil des données : recueil de données topographiques supplémentaires par rapport au modèle existant pour représenter plus précisément les possibles zones de dépôt et d'érosion ; recueil de données hydrologiques pour le Rhône et chacun des affluents majeurs (hydrogrammes et cotes des retenues) ; recueil de données sédimentaires (concentration en MES et granulométrie) ;
- Mise en place du modèle hydraulique : paramétrage et calage du modèle hydraulique pour s'approcher au plus près du fonctionnement effectif du Rhône et de ses aménagements en respectant les consignes d'exploitation et la gestion spécifique pendant la chasse ;
- Mise en place du modèle sédimentaire : paramétrage et calage du modèle sédimentaire pour représenter le plus correctement possible le transport des MES ainsi que leurs zones d'érosion et de dépôt.

6.2 Les codes de simulation numérique : MAGE et ADIS-TS

L'outil numérique développé à Irstea repose sur une modélisation hydraulique et sédimentaire multibiefs du Rhône. La modélisation hydraulique est réalisée à l'aide d'un logiciel de simulation hydraulique monodimensionnelle d'écoulement en rivière (Code de calcul MAGE, Cemagref 2009) couplé à un modèle d'advection-dispersion pour simuler le transport de sédiments (Code de calcul ADIS-TS, Irstea 2012). Ces modèles présentent l'avantage d'une résolution rapide ce qui permet de simuler des événements de longues durées (plusieurs années et dizaines d'années) sur un long bief (plusieurs centaines de kilomètres). Les informations sur les équations des deux modèles numériques sont issues des rapports Andries *et al.* (2012a) et Andries *et al.* (2012b).

6.2.1 Le modèle hydraulique 1D : MAGE

6.2.1.1 Présentation et équations

MAGE est un logiciel de simulation mono-dimensionnelle (1D) d'écoulement en rivière en régime transitoire. Son domaine d'application privilégié est la simulation des crues et des zones inondées. Les équations utilisées sont les équations de Barré de Saint-Venant unidimensionnelles avec la formule de perte de charge de Manning-Strickler :

Conservation de la masse
$$\frac{\partial S}{\partial t} + \frac{\partial Q}{\partial x} = q_{lat}$$

Equation dynamique
$$\frac{\partial Q}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}\left(\beta \frac{Q^2}{S}\right) + qS\frac{\partial z}{\partial x} = -gS(J + J_s) + kq_{lat}V$$

Avec t le temps, x l'abscisse en long, S la section mouillée, Q le débit, Z la cote de la surface libre, V la vitesse moyenne ($V = Q/S$), β le coefficient de quantité de mouvement (Boussinesq), g la gravité, J les pertes de charge linéaires par frottement, J_s pertes de charge singulières (élargissement ou rétrécissement brusques), q les pertes ou apports latéraux par unité de longueur (en m^2/s : ruissellement, pluie, déversements, échanges avec le lit majeur) et k un coefficient dépendant du signe de q_{lat} ($k = 1$ si $q_{lat} < 0$, $k = 0$ si $q_{lat} \geq 0$).

MAGE prend en compte la géométrie réelle du lit de la rivière définie par des profils en travers et utilise une modélisation géométrique de la rivière en lit composé (mineur, moyen et majeur de stockage) avec calcul de la répartition des débits en utilisant les équations de Debord (Nicollet et Uan, 1979) avec différentes valeurs du coefficient de Strickler $K_{m/M}$ possibles pour le chenal (lit mineur) et le lit moyen, respectivement. Il est également possible de définir des casiers de stockage pour modéliser des plaines d'inondations où la vitesse de l'écoulement est supposée négligeable, ce qui permet la modélisation des échanges entre zones d'écoulement et zones de stockage. La topologie du réseau peut être maillée ce qui permet de représenter des confluences, des diffluences (îles) et des conditions aval multiples (deltas). La discrétisation des équations de Barré de Saint-Venant est faite selon un schéma aux différences finies semi-implicite à quatre points (schéma de Preissmann).

6.2.2 Le modèle 1D d'advection-diffusion : ADIS-TS

6.2.2.1 Présentation et équations

ADIS-TS résout l'équation 1D d'advection-dispersion :

$$\frac{\partial SC}{\partial t} + \frac{\partial CQ}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial x}\left(SD_L\frac{\partial C}{\partial x}\right) + (P - d)W + q_{lat}C_{lat} \tag{6.1}$$

avec D_L le coefficient de dispersion longitudinal, P le taux de reprise, D le taux de dépôt, W la largeur de la rivière en eau, et C_{lat} la concentration de sédiments fins si $q_{lat} > 0$. L'équation de conservation de la masse permet de calculer la masse $M_{fs} = \rho_s(1 - p)S_{fs}L$ de sédiments fins disponible dans la section et sa distribution à travers la section ($\rho_s = 2650$ g/L est la masse volumique des sédiments, S_{fs} est la section en travers du dépôt de sédiment, p la porosité du dépôt et L la longueur de la section). Ce dépôt est hypothétique étant donné que le modèle ne prend pas en compte l'évolution du fond du lit. La description ci-dessus est faite pour une classe de dépôt avec des caractéristiques fixes (la taille de grain, la vitesse, ...). Le modèle peut prendre en compte un mélange de plusieurs classes.

Plusieurs paramètres permettent le calage des processus sédimentaires :

– Le coefficient de dispersion ;

- Le coefficient a_{pd}, permettant le calage de l'intensité des processus de dépôt et d'érosion ;
- Le coefficient a_c, permettant le calage de la concentration d'équilibre ;
- L'exposant b_c, permettant le calage de la concentration d'équilibre (choisi égal à 1).

6.2.2.2 Les conditions limites et données d'entrée sédimentaires

Les conditions aux limites amont dans le modèle Adis-TS sont définies soit par des courbes de concentration en MES soit par un débit massique. Des concentrations en MES ne peuvent être injectées qu'à un nœud amont du modèle (Cf. Fig. 6.1). Des débits massiques peuvent être injectés aux nœuds intermédiaires.

Une chronique continue de concentrations en MES a été élaborée pour chaque station de suivi pendant la chasse (Cf. §3.3.2). Les résultats de ces mesures servent de données d'entrée pour le modèle sédimentaire.

Quand le calage sédimentaire du modèle permet de représenter correctement les processus d'érosion et de dépôt, il suffit d'injecter uniquement les courbes de concentration pour les affluents (Arve et Guiers), la grande partie des MES étant mobilisée dans la zone d'étude. La représentation de la mobilisation des MES dans la retenue de Verbois durant la chasse posant des problèmes actuellement, l'injection d'un débit massique au niveau de Chancy-Pougny sert de solution intermédiaire.

Le modèle Adis-TS ne nécessite pas de définition de la condition limite aval qui est de type sortie libre (Neumann homogène).

Outre la concentration en MES amont, il est nécessaire d'indiquer quelques caractéristiques sédimentaires, dont :

- le type de MES (par exemple sable naturel ou limon) ;
- la taille caractéristique des particules ;
- la masse volumique (choisie à 2650 kg/m^3) ;
- la porosité (choisie à 50 %).

L'analyse des données granulométriques a montré l'existence de quatre sous-populations de particules définies par leur mode d, leur écart-type σ et leur poids λ (Cf. Chap 2). Les résultats de cette analyse servent de données d'entrée pour la taille caractéristique des particules.

6.3 Le modèle du Rhône

6.3.0.3 Le réseau

Le modèle couvre le linéaire du Rhône entre le Lac Léman et Lyon-Perrache, ainsi que les tronçons des deux principaux affluents entre leur dernière station hydrométrique et leur embouchure dans le Rhône, à savoir l'Arve et l'Ain. Le réseau du modèle est représenté en Fig. 6.1.

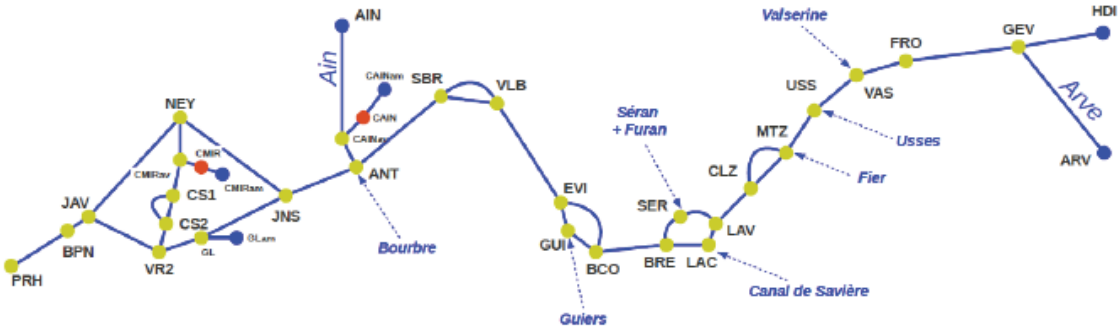


FIGURE 6.1 – Réseau du modèle 1D hydro-sédimentaire utilisé pour simuler les flux hydro-sédimentaires pendant les opérations de chasse de juin 2012 sur le Haut-Rhône.

Les points jaunes dans le réseau représentent des nœuds qui permettent de relier les différents biefs représentés en bleu. Les points bleus représentent les nœuds en limite amont du modèle, les points verts représentent les nœuds en limite aval. Les biefs sont délimités par l'arrivée d'un affluent ou par un branchement du réseau. La topologie du réseau peut être maillée ce qui permet de représenter des confluences, des diffluences et des conditions aval multiples.

Des annexes hydrauliques ont été modélisées plus précisément à trois endroits, en vue de mieux reproduire leur impact hydraulique et sédimentaire :

- Des annexes hydrauliques représentant le lit majeur devenant actif à partir d'une certaine cote et ayant une capacité de stockage d'eau importante ont été modélisées avec des casiers (points oranges, Cf. Fig. 6.1) sur le Vieux-Rhône du secteur Miribel-Jonage et sur la partie aval de l'Ain ;
- Une annexe hydraulique représentant un bassin ayant une connexion permanente avec le cours d'eau a été modélisée sur le canal de Jonage avec un bief ayant un débit entrant de zéro.

6.3.0.4 La géométrie

La géométrie du lit est définie par des profils en travers. MAGE permet la modélisation d'un lit composé d'un lit mineur, d'un lit moyen (ce qui correspond au lit majeur avec écoulement actif)

et d'un lit majeur (ce qui correspond au lit majeur de stockage). La répartition des débits entre ces différents lits devient possible par l'utilisation des équations Debord avec la prise en compte de différents coefficients de Strickler pour le lit mineur et le lit moyen.

Pour une grande partie de la géométrie du lit, nous avons utilisé les données issues de la Banque de Données Topographiques Rhône (BDT Rhône) de l'IGN. Localement le modèle a également pu être précisé grâce à des données de la CNR (aux environs du barrage de Génissiat par exemple), ou encore grâce à des données internes Irstea issues de précédentes études (le Rhône de Sault-Brénaz à Lyon, équipe Dynam). Des données topographiques sur le secteur suisse ont été mises à disposition par la cellule Environnement Rhône du Service Industriel de Genève (SIG).

Les profils en travers disponibles couvrent le lit mineur et ont dû être complétés à quelques endroits avec des données de terrain. Un MNT avec une résolution d'un mètre a été utilisé dans cette intention pour le secteur suisse. Sur le territoire français, des points cotés du réseau géodésique d'IGN sont disponibles dans la BDT Rhône.

6.3.0.5 La représentation des ouvrages

De nombreux aménagements hydrauliques sont présents sur la zone d'étude. On y trouve les ouvrages-types suivants :

- le barrage usine ;
- le barrage de retenue sur le Vieux-Rhône ;
- l'usine sur le canal d'amenée, encore appelé Rhône aménagé ;
- ainsi que quelques seuils naturels ou artificiels.

Pour chaque aménagement hydro-électrique, une consigne d'exploitation normale et en crue permet de respecter :

- la répartition de débits entre usines et barrages ;
- un niveau d'eau dans la retenue en fonction du débit entrant.

Les barrages assurent la répartition du débit entre le Vieux-Rhône, pour lequel au moins un débit réservé ($Qres$) doit être assuré, et le Rhône aménagé, pour lequel le débit est limité par le débit turbinable maximum ($Qmax$). Il est important de noter que les débits réels peuvent être différents des valeurs théoriques, comme nous avons pu l'observer pour l'aménagement de Miribel-Jonage (Cf. §3.2.2.2).

Une loi niveau-débit, appelée consigne d'exploitation, est définie en un ou deux points précis de la retenue, appelés points de réglage. La régulation du plan d'eau est assurée par l'usine tant que le débit du Rhône est inférieur à son débit d'équipement. Au-delà, c'est le barrage qui s'ouvre progressivement et assure ainsi la continuité de la régulation.

Dans le modèle, les barrages et les usines sont représentés par des orifices rectangulaires dont l'ouverture est modifiée par le modèle afin de respecter les consignes d'exploitation. Pour ce faire, des lois ont été associées à chaque orifice :

- une loi de type répartition des débits $Qmax/Qres$ aux orifices représentant les barrages ;
- une loi de type Z(Q) aux orifices représentant les usines et les barrages-usines.

Pour la reproduction d'un fonctionnement exceptionnel tel que l'abaissement des retenues lors de l'accompagnement des chasses suisses, la loi Z(Q) associée aux usines n'est plus valide. Dans ce cas, l'orifice représentant les usines est réglé par une loi Z(T) : l'utilisateur doit lui-même indiquer l'abaissement de la cote au point de réglage en fonction du temps. Un abaissement exceptionnel des retenues a été effectué lors des chasses suisses en 2012 sur le Haut-Rhône de l'aménagement de Verbois jusqu'à l'aménagement de Sault-Brénaz. Les Fig. 6.2 et 6.3 montrent les cotes mesurées qui ont été ensuite intégrées au modèle.

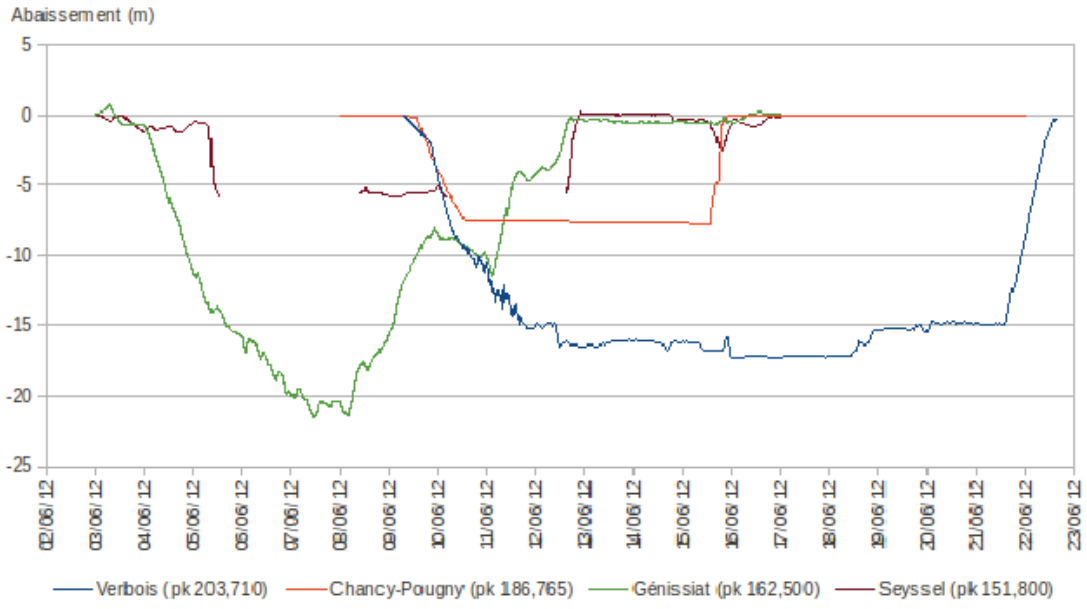


FIGURE 6.2 – Abaissement des aménagements de Verbois, de Chancy-Pougny, de Génissiat et de Seyssel mesuré pendant la chasse 2012 (relativement à la cote du 03/06/12 00 :00).

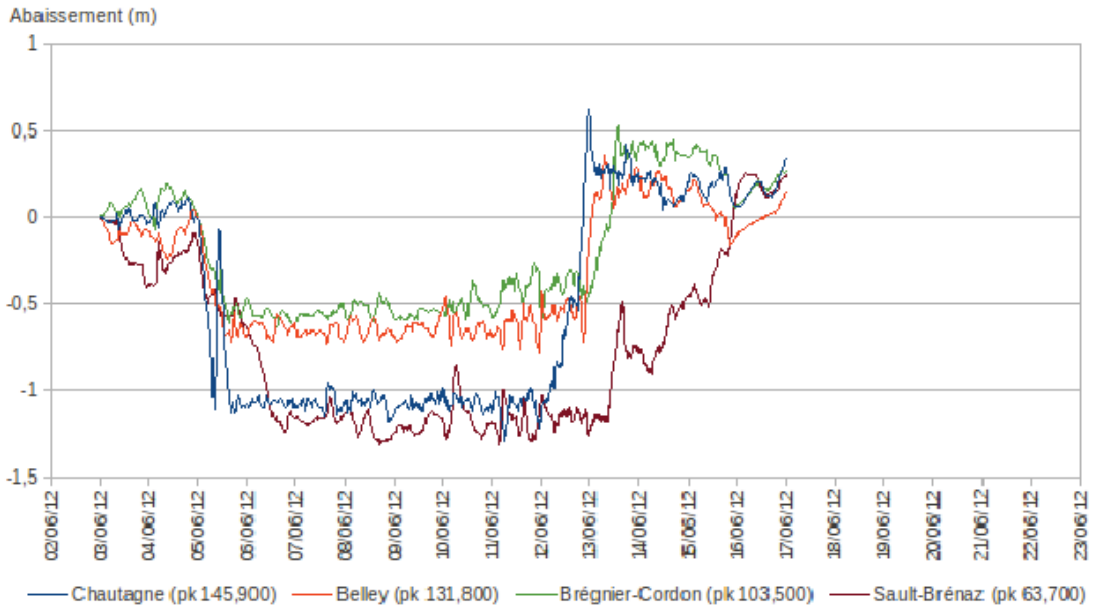


Figure 46 : Abaissement des aménagements de Chautagne, de Belley, de Brégnier-Cordon et de Sault-Brénaz mesuré pendant la chasse 2012 (relativement à la cote du 03/06/12 00:00).

FIGURE 6.3 – Abaissement des aménagements de Chautagne, de Belley, de Brégnier-Cordon et de Sault-Brénaz mesuré pendant la chasse 2012 (relativement à la cote du 03/06/12 00 :00).

Si possible, les points de réglage utilisés pour la modélisation correspondent aux points de réglage réels indiqués dans les règlements d'eau des aménagements hydro-électriques. Pour quelques retenues, le point de réglage est trop éloigné de l'usine. Le réglage de l'usine étant instantané en fonction des conditions hydrauliques au point de réglage, le décalage temporel jusqu'à l'arrivée de ces conditions hydrauliques au niveau de l'usine n'est actuellement pas encore pris en compte et de grandes instabilités peuvent émerger. Dans ce cas, une consigne d'exploitation a été établie à proximité directe de l'usine.

6.3.0.6 Les conditions limites et données d'entrée hydrauliques

Les conditions aux limites amont sont définies par des hydrogrammes injectés dans le modèle.

Lorsque les informations topographiques sur les affluents ne sont pas disponibles, ceux-ci sont représentés sous la forme d'apport ponctuel. Les apports ponctuels se définissent au niveau des nœuds du réseau.

Le Furan, confluant avec le Rhône au niveau de Brens, ne dispose pas d'un suivi hydrométrique horaire. Par conséquent, son module inter-annuel a été utilisé en tant qu'apport ponctuel au lieu de l'hydrogramme.

La condition à la limite aval est la relation niveau-débit qui est connue pour le seuil de Villeurbanne (Etude Burgeap).

6.4 Avancées sur les principaux verrous scientifiques identifiés

6.4.1 Calage hydraulique : aménagements et coefficients de Strickler

6.4.1.1 Calage hydraulique

Le calage hydraulique a été effectué tronçon par tronçon entre une station hydrométrique, pour laquelle on dispose de l'hydrogramme, et un point de réglage, pour lequel soit la loi Z(Q) soit la cote en fonction du temps Z(T) est connue.

Le paramètre de calage hydraulique est le coefficient de Strickler qui est défini pour le lit mineur et le lit moyen en fonction du pk. Le coefficient de Strickler permet de définir la résistance à l'écoulement (perte de charge) ainsi que la rugosité du lit d'une rivière en fonction de sa nature (gravier, herbe, béton, ...). La valeur de ce coefficient a une influence importante sur la vitesse, les hauteurs d'eau et le débit, notamment là où il y a plusieurs bras, et donc sur la répartition de débits entre les bras. Le coefficient de Strickler a aussi un impact sur l'estimation du coefficient de dispersion et donc sur la dynamique du transport des MES. L'étape de calage du coefficient de Strickler est donc une étape importante.

Des coefficients de Strickler en fonction de la nature du lit de la rivière se trouvent dans la littérature scientifique. Pourtant, le choix de ces valeurs est souvent subjectif. De plus, ce paramètre englobe aussi des pertes de charges singulières qui ne sont pas directement liées à la nature du lit. Il est donc préférable de caler et valider les coefficients à l'aide de lignes d'eau mesurées pour un débit connu.

Les raisons permettant ce choix sont dans l'ordre de préférence :
- L'ordre de grandeur du débit correspondant au débit moyen durant la chasse 2012 ;
- La date la plus actuelle, si la géométrie n'est pas susceptible d'avoir changé depuis le relevé de la ligne d'eau ;
- La date correspondant à la date de la géométrie du modèle, si la géométrie est susceptible d'avoir changé depuis le relevé de la ligne d'eau.

Les lignes d'eau qui n'ont pas été utilisées pour le calage des coefficients de Strickler servent à la validation de celui-ci.

La Fig. 6.4 montre à titre d'exemple le résultat du calage pour le secteur entre Sault-Brénaz et le barrage de Jons pour un débit de 525 m^3/s. Les coefficients de Strickler issus de ce calage ont été validés avec trois autres lignes d'eau (Cf. Fig. 6.5).

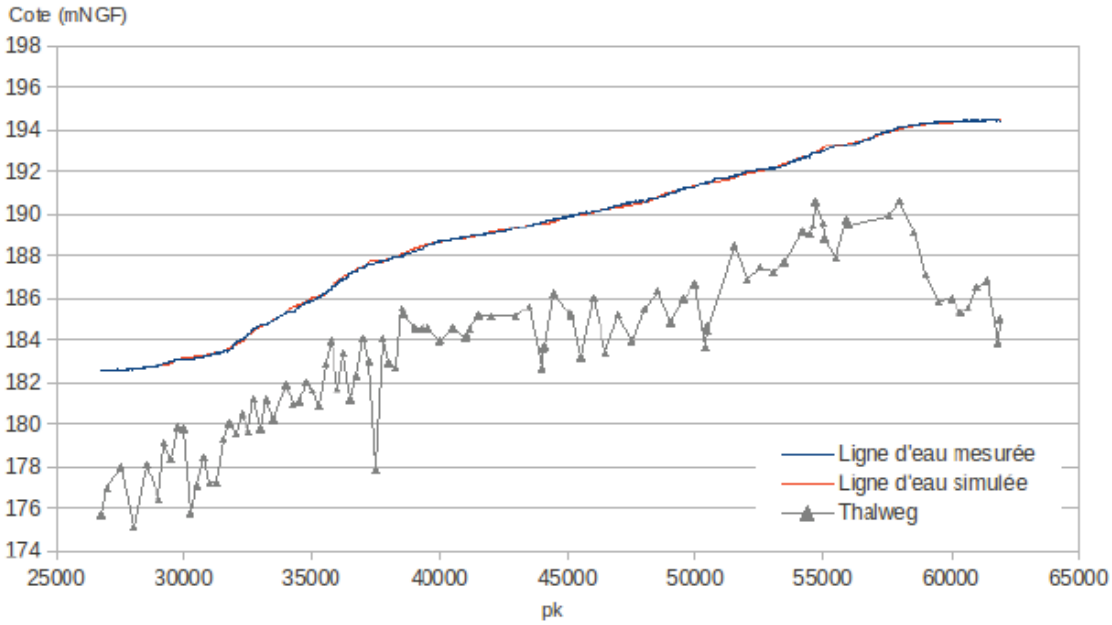


FIGURE 6.4 – Calage des coefficients de Strickler avec la ligne d'eau du 24/03/2009 entre Sault-Brénaz et le barrage de Jons pour Q = 525 m^3/s.

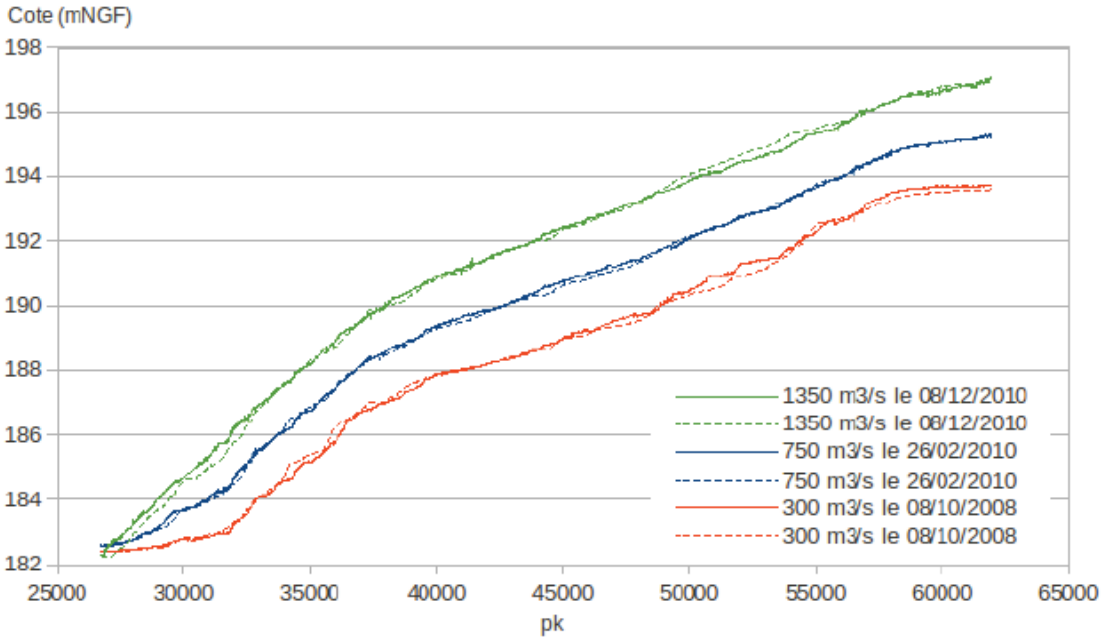


FIGURE 6.5 – Validation des coefficients de Strickler entre Sault-Brénaz et le barrage de Jons (ligne continue : ligne d'eau mesurée ; ligne discontinue : ligne d'eau simulée).

Pour trois secteurs, on ne dispose pas de lignes d'eau permettant le calage des coefficients de Strickler : le secteur suisse, la retenue de Chautagne et le secteur de Miribel-Jonage.

Pour le secteur suisse, les SIG ont commandé en 2004 une étude hydraulique et géomorphologique au bureau d'études AquaVision (engineering Sarl, 2004). Dans le cadre de cette étude, AquaVision a élaboré un modèle 1D du Rhône entre Le Seujet et Chancy-Pougny et de l'Arve entre Bout du Monde et la confluence avec le Rhône. Ce modèle ressemble au modèle présenté ici en ce qui concerne l'espacement des profils en travers et l'hydraulique. La gamme des valeurs des coefficients de Strickler allant de 30 $m^{1/3}/s$ à 40 $m^{1/3}/s$ correspond également bien à nos résultats de calage sur les autres tronçons du modèle. On a donc pu utiliser les coefficients de Strickler listés dans l'étude d'AquaVision pour notre modèle.

Pour la retenue de Chautagne, on ne dispose que de lignes d'eau datant de 1984 à 1993. Le calage avec la ligne d'eau la plus actuelle (de 1993) donne des valeurs de Strickler de 45 $m^{1/3}/s$. Cette valeur est plus importante que l'ensemble des valeurs de Strickler sur le reste du Haut-Rhône issues de calages avec des lignes d'eau plus actuelles. Vu la date de la ligne d'eau, il semble possible que la géométrie du lit ait changé, ce qui rend ces lignes d'eau obsolètes. Un coefficient de Strickler de 35 $m^{1/3}/s$ correspondant aux résultats de calage pour des tronçons comparables a donc été choisi.

Pour le secteur de Miribel-Jonage, le bureau d'étude Burgeap a effectué un travail de calage des coefficients de Strickler. Le calage a été fait à bas débit et les valeurs couvrent une gamme allant de 13 $m^{1/3}/s$ à 20 $m^{1/3}/s$. Correspondant au cas d'étiage, ces coefficients ne représentent pas les conditions hydrauliques pendant la chasse en 2012 et n'ont pour cela pas pu être utilisés. Nous nous sommes basés sur des valeurs issues de la littérature que nous avons ensuite légèrement modifiées pour atteindre une bonne répartition des débits au niveau des diffluences naturelles.

La Fig. 6.6 présente une comparaison de l'hydrogramme mesuré à Anthon (station hydrométrique de la CNR) avec l'hydrogramme simulé pour une simulation entre Groslée et le barrage de Jons. La figure atteste de la bonne qualité de la représentation des ouvrages hydro-électriques et du calage des coefficients des Strickler obtenue par le modèle.

6.4.1.2 Crues et éclusées : exemple de l'aménagement de Sault-Brénaz

L'aménagement de Sault-Brénaz est construit sur le modèle classique des aménagements CNR de basse chute avec dérivation. Il est composé d'un canal de dérivation menant à l'usine hydroélectrique

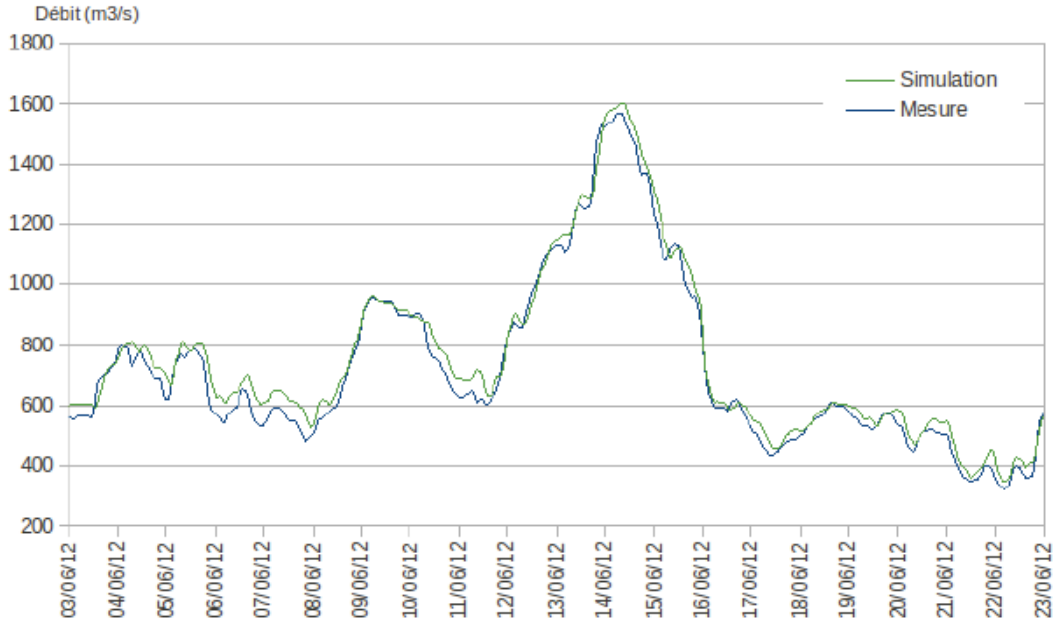


Figure 49 : Hydrogramme mesuré et simulé (simulation entre Groslée et Jons) pour la chasse 2012 à Anthon, station hydrométrique de la CNR.

FIGURE 6.6 – Hydrogramme mesuré et simulé (simulation entre Groslée et Jons) pour la chasse 2012 à Anthon, station hydrométrique de la CNR.

et d'un bras secondaire sur lequel se trouve le barrage de retenue de Villebois (cf Fig. 3.6 (b)). L'usine de Sault-Brénaz est une centrale au fil de l'eau qui utilise le débit du fleuve tel qu'il se présente, sans capacité significative de modulation par stockage.

La proximité des stations EDF de mesure turbidimétrique de Creys (en amont) et de Bugey (en aval, cf Fig. 3.6 (a)) rend l'étude de la propagation des MES à travers l'aménagement possible.

La période du 09 au 23/01/2011 permet d'observer la dynamique des flux de MES et de contaminants particulaires au cours d'une période de régime de base (du 17 au 24/01/2011) et au cours d'une petite crue du Rhône (du 09 au 17/01/2011) (cf Fig. 6.7).

En régime de base, le débit à Creys, Bugey et Jons montre des pics de concentration en MES journaliers, qui correspondent aux éclusées hydroélectriques du barrage de Génissiat. La concentration en MES enregistrée à Creys ne présente pas de variations pendant la période de régime de base. En revanche, à Bugey, en aval de l'aménagement de Sault-Brénaz, des pics de concentration en MES sont observés conjointement aux pics de débit. Les variations du débit associées à la production électrique semblent donc remettre en suspension des particules accumulées entre Creys et Bugey, probablement dans la retenue du barrage de Villebois. Ces reprises de MES quotidiennes ont un impact important sur les flux de MES et de contaminants particulaires puisque pour la semaine de régime de base, les flux enregistrés à Bugey sont près de trois fois plus importants que ceux enregistrés à Creys pour les MES, le mercure et la $\sum$PCBi.

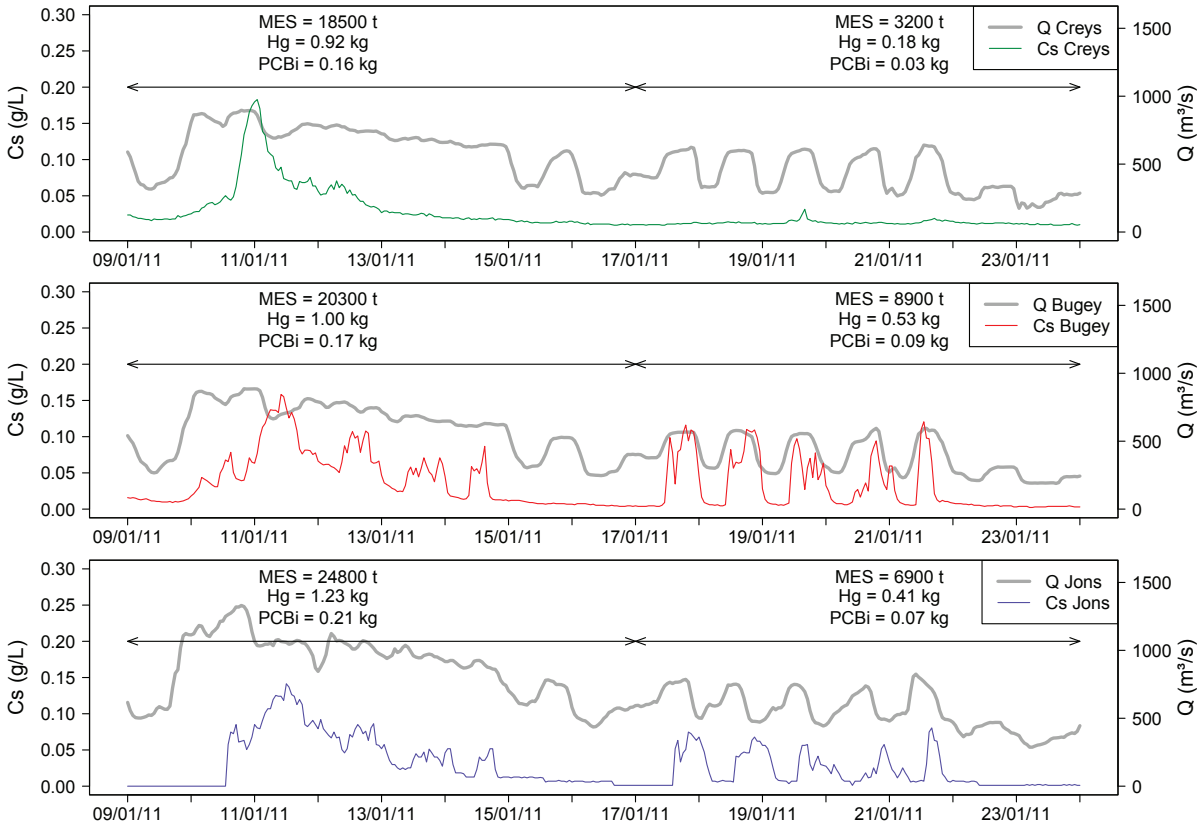


FIGURE 6.7 – Chroniques de concentrations en MES et de débits enregistrées à Creys, Bugey et Jons, du 9 au 23 janvier 2011. Flux de MES, de mercure (Hg) et de somme des PCB indicateurs (PCBi) du 09 au 17/01/2011 et du 17 au 24/01/2011.

Le pic de MES quotidien se propage jusqu'à Jons en s'atténuant. Ainsi pour des concentrations maximales de 0,1 g/L enregistrées à Bugey, les concentrations maximales sont de 0,05 g/L à Jons. Cette diminution peut être à la fois due à des dépôts de particules entre Bugey et Jons et à la dilution de l'eau du Rhône par les eaux de l'Ain et de la Bourbre ; la différence de débit entre Bugey et Jons est de l'ordre de 200 m^3/s pour la semaine du 17 au 24/01/2011. Le flux de MES enregistré à Jons est plus faible que celui de Bugey, avec près de 2 000 t de MES en moins pour cette semaine.

Lors de la période de crue (du 09 au 17/01/2011), un pic de concentration en MES à 0,2 g/L venant de l'amont est enregistré à Creys. Ce pic de concentration est retrouvé quasiment avec la même intensité à Bugey. En cas de crue, en effet, le barrage de Villebois s'ouvre progressivement, laissant passer l'eau et les MES, pour protéger la centrale hydroélectrique. Les particules ne sont donc pas stoppées dans la retenue du barrage. Le pic de MES de crue est accompagné de pics de MES journaliers, indiquant que les éclusées énergétiques à l'amont avaient également lieu pendant cette période. Le flux de MES pour cette semaine de crue à Creys est de l'ordre de 18 500 t et de

20 300 t à Bugey. Environ 2 000 t de MES ont donc été remises en suspension par les éclusées qui avaient lieu en parallèle de la crue. A Jons, le flux de 24 800 t enregistré pour la même période semble indiquer un apport de MES de l'Ain, dont le débit a présenté un petit pic à 400 m^3/s pendant cette période, ou une reprise de MES sur le tronçon entre Bugey et Jons.

e phénomène de reprise des MES dans la retenue de l'aménagement en période de turbinage a été observé seulement au cours des quatre semaines de janvier pour l'année hydrologique 2010-2011. Il est donc de faible importance dans le calcul du flux annuel de MES et de contaminants particulaires. Ainsi, pour l'année hydrologique 2010-2011, le flux de MES à Creys est de 0,29 Mt tandis qu'il est seulement de 0,23 Mt à Bugey, indiquant que sur l'année le dépôt sur ce tronçon est bien plus important que les phénomènes de reprise observés pour la période de janvier.

Cet exemple montre que sur le tronçon du Rhône situé entre Creys et Jons, des processus de dépôt et d'érosion liés à la gestion de l'aménagement du Sault-Brénaz sont à l'œuvre. Bien qu'à l'échelle annuel Ces processus, dont l'impact sur le flux de MES à l'échelle annuelle est réduit, peuvent produire d'importants écarts de flux de MES et de contaminants particulaires à l'échelle de l'événement hydrologique. Leur importance est faible à l'échelle annuelle mais doivent être pris en compte pour interpréter les flux de MES et de contaminants associés. L'utilisation d'un modèle numérique prenant en compte ces processus peut être une aide à la compréhension de la répartition des MES au sein du réseau hydrographique.

6.4.2 Paramétrage du coefficient de dispersion longitudinale

6.4.3 Sensibilité aux paramètres sédimentaires

Le calage sédimentaire s'effectue, comme le calage hydraulique, tronçon par tronçon. Les différents tronçons sont délimités par des stations de mesure de concentration en MES ou de turbidité. Il est ainsi possible de comparer la courbe de concentration simulée en aval du tronçon avec la courbe de concentration mesurée sur le terrain.

Plusieurs paramètres permettent le calage des processus sédimentaires :

- Le coefficient de dispersion ;
- Le coefficient a_{pd}, permettant le calage de l'intensité des processus de dépôt et d'érosion ;
- Le coefficient a_c, permettant le calage de la concentration d'équilibre ;
- L'exposant b_c, permettant le calage de la concentration d'équilibre (choisi égal à 1).

Ces coefficients étant fortement dépendants des conditions hydrauliques, le calage sédimentaire s'effectue nécessairement après un calage hydraulique satisfaisant. En ce qui concerne le coefficient de dispersion, des expériences de traçage menées par Irstea sur le secteur de Miribel-Jonage en 2011

ont montré que la formule d'Iwasa et Aya (1991) était un bon choix parmi les différentes formules génériques disponibles (Cf. l'article soumis et présenté en Annexe L).

Pour le coefficient a_c, permettant le calage de la concentration d'équilibre, une valeur de 0,01 a été choisie. La Fig. 6.8 montre pour le tronçon de calage entre Creys et Bugey, que pour cette valeur le processus dominant était le dépôt, ce qui correspond au bilan de masses discuté dans le §3.3.2.3.

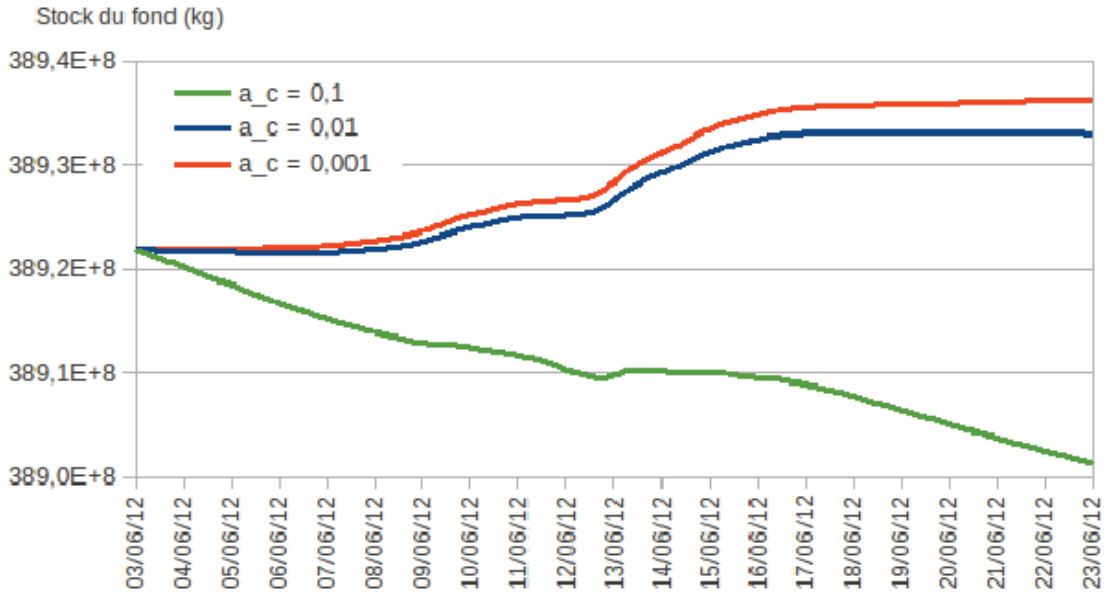


FIGURE 6.8 – Variation du stock du fond sur le secteur entre Creys et Bugey en fonction du coefficient a_c (pour $a_{pd} = 0{,}01$).

Le coefficient a_{pd} permet le calage de l'intensité du dépôt et de l'érosion. Il a été calé de façon à reproduire au mieux la forme de la courbe de concentration observée en aval du tronçon de calage. La Fig.6.9 montre l'exemple pour le calage sur le tronçon de Creys à Bugey. La simulation donne des résultats satisfaisants en termes d'arrivée de la concentration, ce qui est principalement dû au bon calage hydraulique. Les pics de concentration sont également relativement bien reproduits. Mais, la figure montre un dépôt de 47 000 t sur ce tronçon alors qu'en réalité un dépôt d'environ 55 000 t s'est effectué (Cf. Chap. 5). A deux moments (vers le 11/06/2012 et vers le 16/06/2012), le dépôt dans la simulation n'est pas satisfaisant.

A l'heure actuelle, Adis-TS ne représente les processus d'érosion et de dépôt que de façon globale, en termes de tendance. Des améliorations du logiciel sont en cours pour atteindre une meilleure représentation, de manière à reproduire finement la dynamique sédimentaire pendant les opérations de chasse, entre chaque couple de stations du suivi. Des cas de validation simplifiés ont été simulés

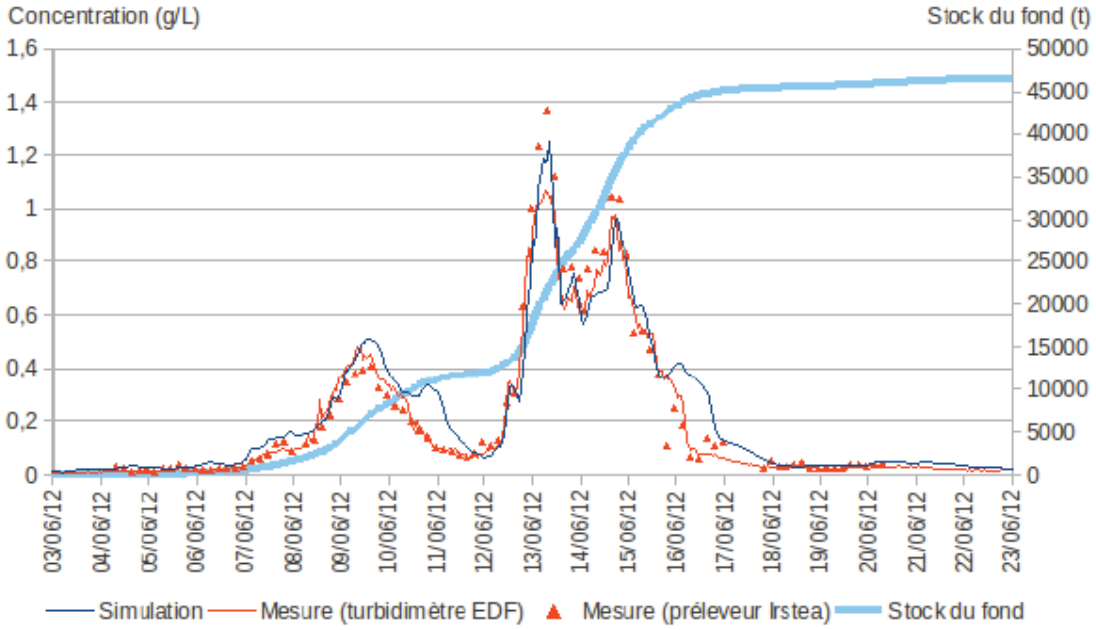


FIGURE 6.9 – Concentration en MES mesurée et simulée à Bugey (pour une simulation entre Creys et Bugey avec $a_c = 0{,}01$ et $a_{pd} = 0{,}055$.

en parallèle de cette étude, et ont permis d'identifier les problèmes à résoudre dans l'implémentation de la formule de dépôt-érosion. Une fois ces problèmes numériques résolus, le calage sédimentaire pourra être finalisé pour l'ensemble des tronçons.

6.5 Perspectives d'améliorations et d'utilisation

6.5.1 Les limites du modèle

Le modèle hydro-sédimentaire a quelques limites :

- Conservation de la géométrie : La géométrie du lit est conservée lors de la simulation du transport solide. Or, localement celle-ci peut être fortement modifiée lors de la chasse 2012, ce qui rétro-agit sur les conditions hydrauliques, et donc le transport solide. C'est surtout le cas pour les retenues de Verbois et de Génissiat. Un problème existe pour la modélisation à Verbois, où il y a un abaissement du fond jusqu'à 8 m. Dans le modèle, la géométrie post-chasse a dû être introduite dans le modèle à partir d'une certaine date, car une simulation de l'abaissement de la cote n'était sinon pas possible. Une évolution de la géométrie dans Adis-TS est une perspective envisagée pour les prochaines années.
- Valeurs de Strickler fixes : Le calage des valeurs de Strickler a été effectué pour le débit moyen de la chasse, ce qui semble assez robuste au vu des validations. Cependant, les valeurs de Strickler dans les modèles hydrauliques devraient pouvoir varier avec le débit. Pour la simulation de la chasse 2012 avec l'occurrence simultanée de crues, des valeurs de Strickler

dynamiques, variables avec la hauteur d'eau par exemple, seraient plus précises. C'est une perspective de développement possible avec MAGE.

6.5.2 La suite des travaux de modélisation

L'important travail de mise à jour de la géométrie, d'implémentation des consignes de régulation des aménagements et de calage des lignes d'eau réalisé sur le suivi de la chasse de 2012 a produit un modèle hydraulique du Haut-Rhône beaucoup plus précis qu'auparavant. Nous disposons ainsi d'un outil de simulation fiable et robuste, et d'une méthodologie de paramétrage qui pourra être reproduite sur la partie du modèle entre Lyon et la mer. Le calcul de la dynamique sédimentaire fonctionne correctement d'un point de vue informatique, mais des défauts dans l'implémentation de la loi de dépôt-érosion ont pu être identifiés, qui nécessitent des modifications du code de simulation Adis-TS, actuellement en cours. Si les tendances générales sont correctement reproduites, à l'heure actuelle, le travail sur le modèle hydro-sédimentaire du Haut-Rhône n'est pas encore terminé. En considérant également quelques améliorations moins cruciales, il reste donc à faire :

- L'intégration de la possibilité d'indiquer un décalage temporel pour les lois de consignes appliquées aux ouvrages hydro-électriques dans MAGE pour prendre en compte la distance entre le point de réglage et le barrage ou l'usine ;
- L'intégration des différents tronçons de calage hydraulique dans un modèle complet du Haut-Rhône ;
- L'amélioration du modèle sédimentaire et le calage sédimentaire du modèle ;
- Éventuellement, la quantification des apports pluviaux non-pris en compte par l'injection des hydrogrammes des affluents (des données pluviométriques suisses sont disponibles, des données françaises sont en attente).

Conclusion générale et perspectives

1 Conclusion

Ce travail de recherche s'est attaché à faire progresser la connaissance des flux de MES et de contaminants particulaires – mercure et PCB – au sein du Rhône et de ses principaux affluents contributeurs en matières en suspension (MES) : l'Arve, la Saône, l'Isère et la Durance. Il constitue ainsi la première étude des flux particulaires à l'échelle du Rhône et de ses affluents, orientée sur une observation intensive de la dynamique spatio-temporelle des flux et sur le développement d'outils de modélisation hydro-sédimentaire et d'analyse spatiale.

1.1 Stratégie d'observation des flux particulaires

La connaissance des flux de contaminants particulaires véhiculés par les cours d'eau se heurte à d'importantes difficultés technologiques, méthodologiques et scientifiques. Les premières difficultés rencontrées concernent l'acquisition de données qui soient représentatives de la variabilité temporelle des trois paramètres qui constituent le flux de contaminant particulaire : le débit, la concentration en matière en suspension (MES) et la teneur en contaminant dans ces mêmes MES.

Le réseau de suivi des flux développé sur le Rhône et le Haut-Rhône dans le cadre de l'OSR et de cette thèse repose sur deux stations de mesure principales sur le Rhône, à Jons et à Arles. A ces deux stations, la stratégie d'observation choisie et validée privilégie un échantillonnage quasi-continu des trois paramètres du flux. Le suivi continu de la concentration en MES est rendu possible par l'utilisation de turbidimètres, étalonnés par des mesures ponctuelles de concentrations en MES (prélèvements manuels ou automatiques). Des prélèvements de MES pour les analyses de contaminants sont réalisés à la centrifugeuse tous les 15 jours en régime de base et avec un pas de temps variable et plus fin lors des crues. Parallèlement, l'installation de pièges intégratifs dans le cours d'eau permet une mesure continue intégrative des teneurs en contaminants entre deux prélèvements ponctuels.

Pour comparer ces différentes techniques, nous avons notamment réalisé une caractérisation détaillée des particules en termes de granulométrie et de taux de carbone organique particulaire. Les principaux points à retenir de la comparaison des techniques de mesure sont que les prélèvements manuels et par centrifugeuse produisent des échantillons dont les caractéristiques (granulométrie

et COP) sont identiques à celles des MES dans le cours d'eau. Cependant, ces techniques ne permettent qu'une mesure ponctuelle des concentrations en MES et des teneurs en contaminants. La turbidimétrie, qui permet une mesure en continu des concentrations en MES, donne des réponses différentes selon la granulomérie des particules circulant dans le milieu. Il est donc nécessaire d'effectuer des mesures de contrôle notamment lors des crues pour valider la relation. Les pièges à sédiment entraînent parfois une variation des caractéristiques des particules collectées par rapport au milieu. Des prélèvements de contrôle sont également nécessaires pour valider et corriger les teneurs en contaminants obtenues par cette technique (Cf. article soumis, Annexe E). Que ce soit pour la turbidimétrie ou pour les pièges à sédiments, les prélèvements de contrôle doivent couvrir la plus grande gamme possible de mesure.

Le réseau de mesure est complété par un suivi des affluents. La mise en place d'une station temporaire de suivi des flux, composée d'un turbidimètre, d'un préleveur automatique pour l'étalonnage et d'un piège à sédiment contrôlé régulièrement par des prélèvements à la centrifugeuse, nous a permis de caractériser la dynamique particulaire de la plupart des affluents du Haut-Rhône. Des prélèvements ont également été effectués lors des crues de ces affluents.

L'utilisation de la centrifugeuse mobile Westfalia s'est avérée très efficace et a permis d'assurer le suivi bimensuel des contaminants à Jons, le suivi des crues sur les affluents et le suivi de la chasse du Rhône de juin 2012. Elle permet de plus d'obtenir des mesures pour le contrôle des pièges à sédiments mis en place pour le suivi de routine.

1.2 Caractérisation des particules vectrices de contamination

Pour calculer les flux de contaminants particulaires, il est primordial que les teneurs en contaminants soient mesurées sur les mêmes particules que celles utilisées pour la concentration en MES. Il est donc important de pouvoir décrire les particules échantillonnées pour s'assurer qu'elles ont la même granulométrie et la même composition au cours du temps et d'une station de mesure à l'autre.

Les outils de description usuels de la distribution granulométrique d'un ensemble de particules ne permettent pas de tenir compte du caractère multimodal des échantillons que nous avons obtenus sur le Rhône, et qui sont caractéristiques de la plupart des cours d'eau de cette taille. Nous avons donc proposé une méthode d'analyse des distributions granulométriques qui repose sur l'identification et la quantification des sous-populations granulométriques en présence, dont la distribution est supposée suivre une loi gaussienne. Quatre sous-populations granulométriques ont ainsi été mesurées dans

les échantillons du Haut-Rhône, la sous-population la plus grossière n'étant que rarement présente (suspension graduée proche du fond ou lors de fortes crues ou chasses).

L'étude des teneurs en contaminants portées par chacune de ces sous-populations de particules suggère que les particules les plus grossières ne portent quasiment pas de contamination. Leur présence, rare, dans les échantillons introduisant un biais des teneurs en contaminants, nous avons appliqué une correction en cas de présence de cette phase grossière.

En cas de variations de teneurs en contaminants temporellement ou spatialement, une normalisation par le COP permet de déterminer si les variations sont dues à un changement des proportions des sous-populations porteuses ou si les niveaux de contamination des particules sont différents.

1.3 Dynamique spatio-temporelle de la contamination des MES du Rhône

Le suivi bimensuel des teneurs en contaminants au niveau de la station du Rhône à Jons a permis de mettre en avant qu'il n'y a pas de variations notables de la concentration en mercure en fonction du temps ou de l'hydrologie sur 2011-2012, hormis pendant la période des chasses de juin 2012. Tout comme cela est expliqué dans la littérature, nos teneurs en mercure sont fortement corrélées à la teneur en COP, qui ne varie pas sur le Rhône à Jons, en fonction des événements, que ce soit crue ou chasse. En revanche, nous avons observé des différences significatives de teneurs en PCB en fonction des événements. Les variations de granulométrie et de COP des MES circulant dans le Rhône en fonction des événements, crue et chasse, permettent d'expliquer en partie les variations de PCB. Pour le mercure, la différence de teneur entre le Haut-Rhône et la Saône reste en revanche importante malgré la correction granulométrique et la normalisation par le COP ; la Saône semble plus contaminée en mercure que le Haut-Rhône. Pour les PCB, la différence de teneur reste importante entre la Bourbre plus contaminée et le Haut-Rhône, moins contaminé. L'étude des profils de PCB est une première étape pour identifier les sources de contamination et distinguer les sources diffuses des sources locales. Ainsi, pour la Bourbre, les profils de PCB montrent une part plus importante de PCB légers que dans le Rhône à Jons, qui peut indiquer une source d'apport local de PCB sur le bassin versant de la Bourbre.

Les variations temporelles des trois paramètres qui constituent le flux de contaminant particulaire sont d'un facteur 1 à 10 pour le débit, d'un facteur 1 à 10 000 pour la concentration en MES et d'un facteur 1 à 10 pour les teneurs en contaminants. Ces ordres de grandeurs mettent en avant l'importance de calculer précisément les apports en MES.

A partir des données ainsi mesurées et existantes, l'étude de la variabilité spatio-temporelle des différents paramètres et de leurs facteurs d'influence a permis de proposer et de valider des méthodes adaptées pour la quantification des flux particulaires.

Nous avons établi dans cette thèse que le suivi en continu, à pas de temps horaire, des concentrations en MES et des débits est nécessaire pour enregistrer les variations de ces paramètres. Les moyens actuels, avec le développement des turbidimètres, permettent ce suivi continu, moyennant quelques efforts de calibration. Pour les périodes pour lesquelles seules des données discrètes de concentrations en MES sont disponibles, nous avons montré que pour notre zone d'étude, l'établissement de courbes de tarages entre la concentration en MES et le débit, pondérées par la racine du flux, est la méthode permettant d'établir le flux de MES avec le plus de précision. Dans le cas d'affluents en l'absence de mesures de MES disponibles, une analogie avec les bassins versant voisins peut être établie en se basant sur une analyse spatiale.

Pour les flux de contaminants, la détermination de teneurs moyennes propres à chaque régime hydrologique est la méthode permettant d'évaluer le flux de contaminants particulaires avec le plus de précision à partir de petits jeux de données. La meilleure solution reste l'installation en continu de pièges à sédiments pour intégrer les variations des teneurs en contaminants.

1.4 Quantification des flux particulaires du Rhône et de ses affluents

Les méthodes définies nous ont permis de quantifier les flux particulaires du Haut-Rhône et de l'ensemble du Rhône à l'échelle événementielle, annuelle et inter-annuelle. Ces résultats fournissent une nouvelle vision des flux particulaires dans le Rhône à l'échelle du réseau hydrographique, et soulignent l'importance des événements hydro-sédimentaires majeurs, des interactions avec les aménagements hydro-électriques et de la variabilité inter-annuelle du flux de MES.

La configuration du réseau hydrographique du Rhône est en effet particulièrement complexe. Au niveau des confluences, les problèmes de mélange impactent fortement la quantification des flux particulaires, en compromettant la représentativité de la mesure. Cela entraîne des difficultés d'interprétations, notamment de l'origine des flux circulant et se déposant dans le réseau hydrographique.

Les événements hydro-sédimentaires, tels que les crues ou les chasses de barrages ont un énorme impact sur les flux particulaires à une échelle de temps courte ; à l'échelle annuelle ou pluriannuelle, ils sont lissés dans le flux moyen "naturel". Les études de l'événement de mai-juin 2008 sur le Rhône aval et des chasses de juin 2012 montrent la nécessité de les prendre en compte pour le calcul de flux annuel. La présence des barrages sur le Rhône représente donc un niveau de complexité supplémentaire et l'utilisation de la modélisation est nécessaire pour interpréter l'origine des flux. La présence de sable dans les dépôts des retenues entraîne des difficultés pour établir des bilans en lien avec les

flux de MES.

Le réseau est encore trop récent pour avoir un recul correct sur ses performances, les dernières stations ayant été mises en place en 2012 et 2013. Cependant, nos travaux ont aussi réévalué les apports des affluents en MES au Rhône sur la base de données bibliographiques ou issues d'organismes (Agence de l'Eau RMC, Banque Hydro, EDF) et en appliquant des traitements adaptés pour combler les lacunes de données.

Les bilans de flux à l'échelle annuelle à partir des données mesurées en 2011-2012 permettent d'obtenir une nouvelle vision des apports des différents affluents. Sur le Haut-Rhône, l'Arve est le principal contributeur au flux de MES. Les flux de MES du Fier apparaissent également non négligeables pour le Haut-Rhône, et les teneurs en contaminants très élevées que nous avons déterminé sur 1 seul échantillon sont à confirmer. La Bourbre, dont les niveaux de teneurs en $\sum$PCBi sont très élevés mais dont les apports en MES sont faibles devant les deux précédents affluents, ne produit pas un flux de $\sum$PCBi majeur pour le Haut-Rhône.

Même si les données disponibles, notamment à la station de Grenoble-Campus, permettent des estimations de son flux moyen, les apports au Rhône d'un affluent sédimentaire aussi important que l'Isère nécessiteraient des études plus approfondies.

Les bilans annuels en eau du lac Léman à Lyon (Haut-Rhône) et de Valence à Arles (Bas-Rhône) calculés sur la décennie 2000-2010 montrent que le bouclage entre amont-aval et apports des affluents est quasiment équilibré, les 2 à 6% de déficit pouvant être expliqués par les apports de bassins non jaugés. Les bilans de MES annuels et décennaux dans le Rhône total sont plutôt bien équilibrés, étant données les incertitudes de mesure associées aux estimations de flux. Les bilans de MES réalisés à l'échelle du bassin versant du Haut-Rhône à l'échelle événementielle, annuelle et décennale montrent un stockage annuel des MES de 0,2 à 0,6 Mt/an dans le réseau hydrographique (retenues, marges). Ceci s'explique en partie par les effets de sédimentation, remise en suspension et érosion des berges qui modifient la continuité à cette échelle, mais aussi par la difficulté d'une estimation précise du transit sur la base de données de MES discontinues dans le temps (l'incertitude sur le flux est à minima de 20%). A ce jour, il reste donc impossible d'évaluer correctement les dépôts dans le fleuve, mais le réseau le permettra rapidement grâce à de meilleures contraintes sur les flux.

A l'échelle de l'ensemble du Rhône, l'analyse des flux menée à partir des mesures quasi-continues sur la période 2011-2012, qui permettent une reconstitution fiable des flux de MES sur les 10 dernières années, et conduit à une nouvelle vision des flux de MES à l'échelle du Rhône par rapport à celle de l'Etude Globale Rhône (Hydratec, 2003). Les flux calculés à l'échelle décennale et sur du plus long terme (15 à 40 ans selon les affluents) sont en moyenne 3 fois plus faibles que ceux proposés dans

l'EGR pour les affluents majeurs.

Les bilans en contaminants, à l'échelle de l'ensemble du Rhône mettent en avant la nécessité de poursuivre les mesures. Les apports en MES prédominants de l'Arve et du Fier au Haut-Rhône amènent à poursuivre l'effort de caractérisation des teneurs en contaminants de ces affluents pour améliorer la quantification des apports en mercure et PCB. Le même constat est fait pour l'Isère à l'échelle du Rhône total. Dans le cadre de l'OSR, cet affluent se trouvant en position intermédiaire dans le bassin versant a été peu étudié par les équipes concentrées sur le Haut-Rhône et le Rhône aval, et de grosses incertitudes subsistent sur les teneurs en mercure et en PCB particuliares de l'Isère.

1.5 Contribution à la modélisation

Deux types de modélisation sont discutés et utilisés dans cette thèse, l'analyse spatiale et la modélisation hydrosédimentaire.

Les systèmes d'information géographique offrent des possibilités pour l'analyse spatiale des flux de matières exportés par les bassins versants. La quantification des flux reste toutefois délicate et les résultats obtenus par la méthode PESERA (Delmas *et al.*, 2009) ne sont pas cohérents avec les mesures effectuées en 2011-2012. L'amélioration de cet outil pour la quantification des flux nécessite une approche par de la modélisation hydrologique spatialisée. En revanche, cet outil spatial est intéressant pour l'interprétation et la compréhension de l'origine des flux de MES (méthode Bertrand (2009)). En croisant les informations sur les zones productrices de MES avec la localisation des sources connues de contaminants, cet outil pourrait également se révéler très utile pour l'étude des sources de contaminants particulaires.

L'étude des flux particulaires à l'échelle du Rhône a permis d'identifier des processus hydro-sédimentaires complexes (reprise/dépôt, tri granulométrique, apports par les affluents et interactions avec les aménagements hydroélectriques) qui motivent une contribution à l'amélioration de la simulation numérique du Rhône. La modélisation hydro-sédimentaire présente en effet un intérêt pour l'étude des flux puisqu'elle permettrait d'interpréter des événements passés en termes de propagation des flux dans le réseau. Elle peut également permettre d'effectuer des tests d'hypothèses sur les processus et de scénarios de modalités de gestion des flux. Les avancées pour la modélisation présentées dans cette thèse concernent le paramétrage du coefficient de dispersion (Cf. article en Annexe L), la représentation des aménagements et le paramétrage sédimentaire. En ce qui concerne le coefficient de dispersion, nous avons effectué des expériences de traçage à la Rhodamine sur le

secteur de Miribel-Jonage en 2011 qui nous ont permis de montré que la formule d'Iwasa et Aya (1991) était un bon choix parmi les différentes formules génériques disponibles pour le paramétrage du coefficient de dispersion dans les modèles numériques 1D.

2 Perspectives

2.1 Développements métrologiques

Les techniques de mesure mises en œuvre pour permettre un suivi en continu des teneurs en contaminants appellent à être encore perfectionnées. L'étude des pièges à sédiments en laboratoire, en conditions contrôlées, pourrait par exemple permettre d'améliorer la connaissance de l'hydrodynamique dans les pièges, et de comprendre les processus de tri qui interviennent. Il serait également intéressant d'étudier la possible dégradation de la matière organique présente dans les MES collectées dans les pièges à sédiments lorsqu'ils restent en place plusieurs jours (deux semaines par exemple). Cette éventuelle dégradation n'aurait que peu d'impact sur les contaminants étudiés dans cette thèse, les PCB étant peu dégradables et seul le mercure total étant dénombré. Néanmoins, pour d'autres paramètres, par exemple le Méthylmercure, ou d'autres contaminants, une dégradation de la matière organique pourrait faire varier les teneurs mesurées dans les pièges.

La recherche de solutions efficaces pour améliorer la mesure turbidimétrique, notamment en continuant à explorer les relations entre la granulométrie et la réponse du capteur, est un enjeu fort du suivi des flux particulaires.

Les efforts de caractérisation des particules apparaissent importants à poursuivre pour améliorer la connaissance de l'origine de particules, notamment en fonction des événements hydrologiques. Cette caractérisation pourrait être poursuivie en recherchant des traceurs de l'origine des particules, comme cela est mis en œuvre par le Cerege dans le cadre de l'OSR (Piégay et *et al.*, 2008). Des méthodes basées sur les signatures géochimiques des particules en transit peuvent être couplées aux techniques de caractérisation des phases porteuses (teneur, qualité et origine de la matière organique – autochtone/allochtone –, granulométrie).

Enfin, l'analyse des incertitudes sur le flux initiée dans cette thèse appelle une étude plus poussée pour pouvoir quantifier les incertitudes, notamment en cas de reconstitution des flux. Une méthode bayésienne pourrait s'avérer intéressante pour effectuer cette analyse.

2.2 Développement du réseau de mesure de l'OSR

Il apparaît important de compléter l'état des connaissances sur la contamination des MES dans le bassin du Rhône, notamment sur le mercure avec l'analyse de sa spéciation (analyse du méthylmercure), et sur certains composés moins documentés dans les particules, tels que les pesticides et produits de dégradation/métabolites, des composés émergents tels que les perfluorés, les nano-particules, les produits pharmaceutiques, cosmétiques et vétérinaires. Les études pourraient être poursuivies à partir de la banque d'échantillons collectés (notamment durant les chasses du Rhône et les crues, en ciblant certains affluents,...) et éventuellement des collectes d'échantillons complémentaires.

Les bilans en contaminants, à l'échelle de l'ensemble du Rhône ont mis en avant la nécessité de poursuivre les mesures aux stations d'Arles et de Jons et sur les principaux affluents, Arve, Isère et Durance pour renforcer l'analyse.

Dans le cadre de l'OSR, l'installation de la centrifugeuse fixe à la station de Jons permettra de continuer le suivi dans des conditions plus rapides et efficaces, en réduisant le temps de déploiement du matériel. La centrifugeuse mobile pourra alors être utilisée en parallèle sur les affluents en cas de crue.

A Arles, un important jeu de données de concentrations en MES et de teneurs en contaminants est disponible sur plusieurs années. Il pourrait être intéressant d'effectuer la même recherche de processus que celle que nous avons mené à Jons à partir de ce jeu de données. Le contrôle de l'homogénéité des sections au niveau des stations de mesure est indispensable pour s'assurer de la qualité de la station de mesure. Il est donc préférable de les réaliser pour les stations en place et pour les stations à venir. Des mesures distribuées de concentrations en MES dans la section du Rhône au niveau de la station d'Arles seraient ainsi intéressantes à mener, notamment en cas de crue de la Durance.

Plusieurs stations pourraient faire l'objet d'une installation ou d'un développement. Les apports en MES prédominants de l'Arve au Haut-Rhône incitent à intensifier la caractérisation des teneurs en contaminants de cet affluent, pour améliorer la quantification des apports en mercure et PCB. Le Fier est également apparu comme potentiellement fort contributeur en MES et contaminants à l'échelle du Haut-Rhône et il semble pertinent de mettre en place un suivi de cet affluent. La mise en place de stations sur le Haut-Rhône à Pougny et à Pyrimont permettrait d'évaluer le stockage des particules dans les barrages de Verbois et de Génissiat et d'améliorer la connaissance des flux particulaires en amont des apports des Usses et du Fier.

La Saône est apparue fortement contaminée en mercure et à notre connaissance, peu d'études ont été menées sur la contamination métallique de cet affluent. Une étude plus poussée pourrait donc s'avérer intéressante pour identifier l'origine de cette pollution.

Dans le cadre de l'OSR, l'Isère a été peu étudié, aussi de grosses incertitudes subsistent sur ses teneurs en mercure et en PCB. Les études sur les contaminants dans les MES de l'Isère actuellement en cours (thèse de S. Dutordoir, 2014) seraient donc intéressantes à associer aux travaux de l'OSR pour améliorer la quantification des apports en contaminants de l'Isère. Le développement d'une station sur le Rhône à Saint-Vallier permettrait de quantifier les flux particulaire en amont de l'Isère et donc participerait à une meilleure connaissance de ce secteur intermédiaire entre le Haut-Rhône et le Rhône aval.

L'Ardèche, principal affluent cévenol pourrait également accueillir une station de suivi des flux pour améliorer la caractérisation des apports cévenols.

2.3 Analyse de l'historique et des sources des flux particulaires

Pour l'estimation de flux particulaires à long terme, l'étude de l'évolution temporelle des teneurs en contaminants est indispensable. Les données collectées dans les sédiments superficiels dans le cadre du suivi de l'AERMC ou les carottes sédimentaires constituent des données intéressantes pour l'étude des tendances temporelles. La méthode d'analyse de la granulométrie que nous avons proposée peut permettre de relier ces données collectées dans les sédiments aux données dans les MES et aux modélisations de flux de contaminants des années antérieures.

Une telle analyse permettrait par exemple une interprétation de l'origine des flux de PCB, notamment dans le système de Miribel-Jonage avec les carottes de Crépieux et de Grand Large (Desmet *et al.*, 2012) qui permettrait de confirmer le passage préférentiel, en cas de crue du Rhône, des eaux de l'Ain dans le canal de Miribel et des eaux de la Bourbre dans le canal de Jonage.

Le développement de l'analyse spatiale, en intégrant un forçage hydro-climatique et la connectivité du réseau hydraulique, puis en allant vers de la modélisation spatialisée, constituerait un outil important d'aide à l'interprétation des origines des flux de MES. En croisant ces résultats avec les informations géographiques de sources de pollutions, cet outil serait également utile à l'interprétation des origines des contaminants particulaires.

L'identification et la prise en compte de l'origine des MES semble indispensable pour améliorer la reconstitution de la variabilité des teneurs en contaminants. Des travaux sont en cours dans le cadre de l'OSR, où des traceurs de l'origine des MES sont recherchés pour identifier la provenance des particules qui circulent dans le Rhône lors de différents événements hydrologiques (Piégay et *et al.*, 2008).

2.4 Modélisation des processus sédimentaires dans le réseau hydrographique

Le développement de la modélisation hydraulique des flux et des aménagements représente un enjeu important pour l'aide à la gestion de flux particulaires. Il pourrait trouver son application dans l'analyse du colmatage des captages pour l'eau potable situés dans la zone de Miribel Jonage ou dans la gestion des retenues (Haut-Rhône : accompagnement des crues de l'Arve, confluence Isère).

Le modèle pourrait permettre de prendre en compte finement la combinaison des flux des affluents en routant les MES dans le réseau. La recherche de formulations analytiques simples pour permettre le paramétrage des phénomènes de mélange et de séparation des masses de MES aux confluences constitue un enjeu important de la modélisation 1D des écoulements. Il pourrait être intéressant de développer localement des modèles 2D voire 3D, notamment au niveau de la confluence Rhône/Isère.

Le confluent Isère/Rhône fait d'ailleurs partie avec le Haut-Rhône des deux secteurs-clés identifiés pour l'étude des impacts morphologiques. La thèse de L. Guertault (2015) permet notamment le développement de la modélisation des processus hydro-sédimentaires au niveau du barrage de Génissiat. L'amélioration de la comparaison des dépôts dans les retenus et des flux de MES, en prenant en compte la question des sables, fait ainsi partie des problématiques abordées.

La prise en compte, dans la modélisation, des différentes fractions granulométriques correspondant aux sous-populations identifiées avec les différentes teneurs pourrait permettre de mieux modéliser le devenir des contaminants particulaires. L'ajout des coefficients de partage pourrait alors permettre de prendre compte la répartition des contaminants entre la phase dissoute et la phase particulaire.

2.5 Transfert des contaminants vers le compartiment biologique

Des outils de biosurveillance active existants, tel que le « caging gammares » pourraient être mise en œuvre afin d'évaluer d'une part, le risque de transfert de contaminants ciblés vers les organismes aquatiques lors d'événements hydrologiques (crue) ou de gestion (dragage) qui induisent une augmentation des MES ; et d'autre part, pour proposer une cartographie de la contamination « biodisponible » à large échelle sur le bassin versant du Rhône. Cet outil a été appliqué avec succès dans plusieurs cours d'eau de la région Rhône-Alpes (Besse *et al.*, 2013). Le caging des corbicules a aussi montré son efficacité pour mesurer l'impact de rejets localisés dans le cas des PCB (Fruget *et al.*, 2010).

Bibliographie

Bibliographie

Abarnou, A. (1988). Les polychlorobiphényles en baie de Seine. Rapport technique DERO-88-06-EL, Ifremer, Brest. 120 p. 22, 23

Abarnou, A., Avoine, J., Dupont, J., Lafite, R. et Simon, S. (1987). Role of suspended sediments on the distribution of PCB in the Seine estuary (France). *Continental Shelf Research*, 7(11-12):1345–1350. 2, 5, 40, 41, 78, 201

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. 31

AERMC (2009). Programme de surveillance de l'état des eaux superficielles et souterraines. Rapport technique, Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse. 30, 66, 90, 119

AFNOR (2000a). NF EN ISO 7027 : Qualité de l'eau – détermination de la turbidité – Water quality – Determination of turbidity. 19 p. 89

AFNOR (2000b). Xp x33-012 : Dosage des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et des polychlorobiphényles (PCB) – characterisation of sludges - determination of polynuclear aromatic hydrocarbons (PAH) and polychlorinated biphenyls (PCB). 26 p. 104

AFNOR (2003). XP T 90-220 : Protocole d'estimation de l'incertitudede mesure associée à un résultat d'analyse pour les méthodes d'analyse physico-chimiques – Water quality – Protocol for the estimation of the uncertainty associated to an analysis result for physico-chemical analysis method. 74 p. 103, 107

AFNOR (2005). Nf en 872 : Qualité de l'eau – dosage des matières en suspension - méthode par filtration sur filtre en fibres de verre – Water quality - determination of suspended solids – method by filtration through glass fibre filters. 10 p. 84, 96

AFNOR (2009). Nf t90-210 : Qualité de l'eau – protocole d'évaluation initiale des performances d'une méthode dans un laboratoire – Water quality – protocol for the intial method performance assesment in a laboratory. 43 p. 103

Afssa (2010). L'Afssa définit des valeurs d'imprégnation critiques aux PCB dans le sang. Communiqué de presse de lÁgence Française de Sécurité Sanitaire des Aliments. 12 p. 17

Alp, M. et Cigizoglu, H. K. (2007). Suspended sediment load simulation by two artificial neural network methods using hydrometeorological data. *Environmental Modelling & Software*, 22(1):2–13. 55

André, H., Audinet, M., Mazeran, G. et Richer, C. (1976). *Hydrométrie pratique des cours d'eau*. Direction des études et des recherches d'Electricité de France (EDF). 45, 364

Andries, E., Camenen, B., Faure, J., Le Coz, J. et Launay, M. (2012a). Modélisation hydro-sédimentaire du Rhône à l'aide des modèles numériques mage et Adis-TS. Rapport technique, Rapport OSR. 76 p. 260

Andries, E., Faure, J. et Camenen, B. (2012b). Modélisation hydro-sédimentaire du site de Miribel-Jonage à l'aide des modèles numériques MAGE et Adis-TS. Rapport technique, Rapport Axelera. 48 p. 260

Angot, H., Launay, M., Sabot, P., Le Coz, J. et Coquery, M. (2013). Representativeness of contaminant contents in suspended solids collected in rivers using integrative sediment traps. *Submitted to Environmental Pollution*, page 20 pp. 115

Antoine, G. (2013). *Dynamique des matériaux en suspension (MES) le long de rivières aménagées de montagne : exemple de l'Arc en Maurienne et de l'Isère*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Ecole doctorale TUE

(Terre – Univers – Environnement), Grenoble. 218

Antonelli, C. (2010). Flux de radioactivité exportés par le Rhône en Méditerranée en 2008. Rapport IRSN/DEI/SESURE 2010-04, IRSN. 41p. xxviii, 7, 29, 65, 95, 121, 142, 143, 229, 230

Asselman, N. (1999). Suspended sediment dynamics in a large drainage basin : the river Rhine. *Hydrological Processes*, 13(10):1437–1450. 45, 54, 55, 189, 193

Asselman, N. (2000). Fitting and interpretation of sediment rating curves. *Journal of Hydrology*, 234(3-4):228–248. 54

Audry, S., Blanc, G. et Schäfer, J. (2004). Cadmium transport in the Lot-Garonne river system (France) – temporal variability and a model for flux estimation. *Science of the Total Environment*, 319(1-3):197–213. 5, 47, 67

Babut, M. et Miège, C. (2007). Contamination des poissons et des sédiments du Rhône par les polychlorobiphényles – synthèse des données disponibles. Rapport technique, Cemagref, Lyon. 130, 237

Babut, M., Miege, C., Roy, A., Lopes, C., Roux, G., Desmet, M. et Persat, H. (2011). Transferts de contaminants hydrophobes du sédiment au biote : construction de modèles dans une perspective de gestion. Rapport technique, ZABR. 186 p.

Babut, M., Miege, C., Villeneuve, B., Abarnou, A., Duchemin, J., Marchand, P. et Narbonne, J. (2009). Correlations between dioxin-like and indicators PCBs : Potential consequences for environmental studies involving fish or sediment. *Environmental Pollution*, 157(12):3451–3456. 20

Baëff, B. (1891). *Les eaux de l'Arve : recherches de géologie expérimentale sur l'érosion et le transport dans les rivières torrentielles ayant des affluents glaciaires.* Thèse de doctorat, Univ. Genève. xxvi, 28, 185, 187, 188, 232

Benaglia, T., Chauveau, D., Hunter, D. R. et Young, D. S. (2009). Mixtools : An R package for analyzing finite mixture models. *Journal of Statistical Software*, 32(6):1–29. 108

Berner, E. K. (2012). *Global environment : water, air, and geochemical cycles.* Princeton University Press. 27

Bertrand, M. (2009). Caractérisation du fonctionnement hydro-sédimentaire du bassin versant de l'Arc en Maurienne. Mise en place d'un système d'information géographique, analyse spatiale et segmentation de l'espace. Rapport de stage, Université Jean Monnet – ENISE - Saint Etienne, Saint-Etienne. xvii, xxix, 59, 60, 252, 254, 255, 282

Besse, J.P., Coquery, M., Lopes, C., Chaumot, A., Budzinski, H. et Geffard, O. (2013). Caged Gammarus fossarum (crustacea) as a robust tool for the characterization of bioavailable contamination levels in continental waters. Toward the determination of threshold values. *Water Research*, 47:650–660. 286

Bianco, M. et Valter, K. (2002). PCBs dans les garnitures de joints. Situation à Genève. Rapport technique, République et canton de Genève. Département de l'intérieur, de l'agriculture et de l'environnement. Service cantonal de toxicologie industrielle et de protection contre les pollutions intérieures. 18

Biron, P., Ramamurthy, A. et Han, S. (2004). Three-dimensional numerical modeling of mixing at river confluences. *Journal of Hydraulic Engineering-ASCE*, 130(3):243–253. 365

Bisson, M., Bureau, J., Denys, S., Lacroix, G., Jolibois, B., Lefevre, J., Strub, M. et Tissot, S. (2005). Polychlorobiphényles. Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, INERIS. 70 p. 17

Bisson, M., Diderich, R., Doornaert, B., Lacroix, G., Lefevre, J., Leveque, S., Magaud, H., Morin, A., Oberon, D., Pepin, G. et Tissot, S. (2006). Mercure et ses dérivés. Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, INERIS. 85 p.

Bisson, M., Vincent, J.-M., Houeix, N., Diderich, R. et Magaud, H. (2010). Mercure et ses dérivés. Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques, INERIS. 120 p. xvii, 10, 11, 12, 13

Blanc, G., Lapaquellerie, Y., Maillet, N. et Anschutz, P. (1999). A Cadmium budget for the Lot-Garonne fluvial system (France). *Hydrobiologia*, 410:331–341. 47, 67

Blott, S. J. et Pye, K. (2001). Gradistat : a grain size distribution and statistics package for the analysis of unconsolidated sediments. *Earth Surface Processes and Landforms*, 26(11):1237–1248. 107

Boiten, W. (2000). *Hydrometry*. Francis and Taylor publishers. 45, 364

Boudin, G. (2007). Etude des stations d'alerte et de surveillance de la qualité des eaux superficielles dans l'agglomération lyonnaise. Phase 6 - synthèse et conclusions. Rapport technique, Burgéap. 16 p. 365

Brasington, J. et Richards, K. (2000). Turbidity and suspended sediment dynamics in small catchments in the Nepal middle hills. *Hydrological Processes*, 14(14):2559–2574. 45, 51, 76, 87, 89

Bravard, J. et Clemens, A. (2008). *Le Rhône en 100 questions*. ZABR – Zone Atelier Bassin du Rhône, Villeurbanne. ouvrage collectif. 24, 25

Bravard, J. P. (1987). *Le Rhône : du Léman à Lyon*. La Manufacture. 24, 123

Brunet, J. (2007). Etat des lieux sur la pollution des fleuves par les PCB dans le monde. Actions des pouvoirs publics. Exemples de décontamination. Rapport technique BRGM/RP-55835-FR, BRGM. 167 p. xix, 16, 19, 23, 33, 308

Burns, K. A. et Villeneuve, J.-P. (1987). Chlorinated hydrocarbons in the open Mediterranean ecosystem and implications for mass balance calculations. *Marine Chemistry*, 20(4):337 – 359.

Burrus, D., Thomas, R., Dominik, J. et Vernet, J. (1989). Recovery and concentration of suspended-solids in the upper Rhône river by continuous-flow centrifugation. *Hydrological Processes*, 3(1):65–74. 96

Cadiou, J.-F. et Romana, L.-A. (2009). Les contaminants chimiques en Méditerranée. Etat, sources et devenir. *Techniques Sciences et Méthodes*, 4:33–40. 3

CamachoIbar, V. et McEvoy, J. (1996). Total PCBs in Liverpool bay sediments. *Marine Environmental Research*, 41(3):241–263. 4

Carroll, J., Savinov, V., Savinova, T., Dahle, S., Mccrea, R. et Muir, D. (2008). PCBs, PBDEs and pesticides released to the Arctic ocean by the Russian rivers Ob and Yenisei. *Environmental Science & Technology*, 42(1):69–74. 17, 23

Castelle, S. (2010). Suivi des apports en mercure au Golfe du Lion par voies atmosphérique et fluviale. Rapport technique, Ifremer. 82 p. 7, 8, 14, 15, 29, 32, 47, 233, 249

Chamley, H. (1987). *Sédimentologie*. Coll. géosciences. 50, 99, 107

Chevreuil, M., Blanchard, M., Dargnat, C., Gasperi, J., Gourlay, C., Lorgeoux, C., Moilleron, R., Moreau-Guigon, E., Ollivon, D., Teil, M.-J. et Mouchel, J.-M. (2009). La micropollution organique dans le bassin de la Seine. Rapport technique, Piren Seine. 68 p. 16

Chevreuil, M., Chesterikoff, A. et Létolle, R. (1988). Modalités du transport des PCB dans la rivière Seine (France). transport state of PCBs in the river Seine (France). *Journal of Water Science – Revue des sciences de léau*, 1(4):321–337. 5

Chiffoleau, J.-F., Cossa, D., Auger, D., Chartier, E. et Sanjuan, J. (1995). Distribution et flux de chrome et de mercure dans le Rhône à Arles durant la période Juin 1994-Mai 1995. Colloque POTAM'MES, 7ème Rencontre de lÁgence régionale pour lénvironnement Provence-Alpes-Côte d'Azur. p. 245-249. 15

Chiffoleau, J., Grouhel, A., Auger, D. et Thébaud, M. (2003). *Dosage de certains métaux dans les sédiments et la matière en suspension par : absorption atomique*. Méthodes d'analyse en milieu marin. Programme scientifique Seine-Aval. 325

CIPR (2011). Comparaison entre l'état réel et l'état souhaité du Rhin de 1990 à 2008. Rapport technique 193, Commission Internationale pour la Protection du Rhin. 30 p.

Clerc, E. (2008). Caractérisation sédimentologique et géochimique des sédiments du Rhône. Etude de quatre sites sur le Rhône : la lône de la Morte, la retenue du Grand Large, la darse de Crépieux et la lône de l'Ile-du-beurre. Rapport de stage entpe, INSA Lyon, Université Claube Bernard Lyon 1. 80 p. 330

Clifford, N., Richards, K., Brown, R. et Lane, S. (1995). Laboratory and field assessment of an infrared turbidity probe and its response to particle-size and variation in suspended sediment concentration. *Hydrological Sciences Journal – Journal des Sciences Hydrologiques*, 40(6):771–791. 4, 75, 76, 86, 87, 89

CMA (juin 2010). Guidance on chemical monitoring of sediment and biota under the water framework directive, version 7. Rapport technique, Drafting group sediment and biota chemical monitoring. Ineris, ISS, JRC IES et IRSA. 72 p. 49

CNR (2012). Mesures d'accompagnement des chasses suisses 2012. Rapport technique DR-B 12-1236, Compagnie Nationale du Rhône (CNR). xxi, 27, 28

Cohn, T., Kiang, J. et Mason, R. (2013). Estimating discharge measurement uncertainty using the interpolated variance estimator. *Journal of Hydraulic Engineering-ASCE*, 139(5):502–510. 74

Collet, L. W. (1925). *Les lacs : leur mode de formation, leurs eaux, leur destin*. Gaston Doin. 385

Collet, L. W., Mellet, R. et Stumpf, W. (1916). *Le charriage des alluvions dans certains cours d'eau de la Suisse*. Impr. A. Kundig. 28, 185

Collilieux, G. et Clément, B. (2008). Les flux polluants dans le bassin du Rhône – leur caractérisation dans différents contextes géographiques et fonctionnels. *In Dragage d'entretien du Rhône et Flux polluants - 4ème journée thématique de la ZABR*. 31 janvier 2008. 23

Connolly, J., Zahakos, H., Benaman, J., Ziegler, C., Rhea, J. et Russell, K. (2000). A model of PCB fate in the upper Hudson river. *Environmental Science & Technology*, 34(19):4076–4087. 5

Coquery, M. (1994). *Biogéochimie du mercure en milieu estuarien et côtier*. Thèse de doctorat, Université de Paris 6. 11, 12, 13, 248

Coquery, M., Cossa, D. et Martin, J.M. (1995). The distribution of dissolved and particulate mercury in three Siberian Estuaries and adjacent Arctic coastal waters. *Water Air Soil Pollut.*, 80:653–664. 14, 15

Coquery, M. et Cossa, D. (1995). Mercury speciation in surface waters of the North Sea. *Neth. J. Sea Res.*, 34:245–257. 15

Coquery, M., Cossa, D. et Sanjuan, J. (1997). Speciation and sorption of mercury in macro-tidal estuaries. *Marine Chem.*, 58:213–227. 15

Coquery, M. (2009). Le contrôle et la réduction des apports de substances chimiques vers les milieux aquatiques. *Techniques Sciences et Méthodes*, 4:18–32. 3

Corvi, C., Majeux, C. et Vogel, J. (1986). Les polychlorobiphényles et le DDE dans les sédiments superficiels du Léman et de ses affluents. Campagne, 1985, Communauté Internationale de protection des eaux du Léman contre la pollution. 205-216 p. 4

Cossa, D. (2012). Suivi des concentrations en mercure, PCBs et PBDE dans les particules en suspension du Rhône en Arles en 2010 et 2011. Rapport observatoire des sédiments du Rhône OSR, Ifremer. 9 p. xxviii, 7, 8, 20, 21, 22, 29, 32, 47, 227, 228, 233, 234

Cossa, D. Coquery, M., Nakhlé, K., Claisse, D. (2002). Dosage du mercure total et du monométhylmercure dans les organismes et les sédiments marins. Editions de l'Ifremer 27 p. 92

Cossa, D., Coquery, M., Gobeil, C. et Martin, J.-M. (1996). Mercury fluxes at the ocean margins. *In* Baeyens, W., Ebinghaus, R. et Vasiliev, O., éditeurs : *Global and Regional Mercury Cycles : Sources, Fluxes and Mass Balances*, volume 21 de *NATO ASI Series*, pages 229–247. Springer Netherlands. 12, 15

Cossa, D. et Ficht, A. (1999). *La dynamique du mercure*. Numéro vol. 11. xvii, 9, 10, 11, 12, 13, 15

Cossa, D. et Martin, J. (1990). Mercury in the Rhône delta and adjacent marine areas. *Marine Chemistry*, 36(1-4):291–302. 14, 15, 29, 47

Cossa, D., Meybeck, M., Idlafkih, Z. et Bombled, B. (1994). Etude pilote des apports en contaminants par la Seine. Del 94.13, Ifremer, Nantes. 151 p. 5, 6, 12, 14, 22, 23, 65

Coynel, A., Schäfer, J., Blanc, G. et Bossy, C. (2007). Scenario of particulate trace metal and metalloid transport during a major flood event inferred from transient geochemical signals. *Applied Geochemistry*, 22(4):821–836. 5

Coynel, A., Schäfer, J., Hurtrez, J., Dumas, J., Etcheber, H. et Blanc, G. (2004). Sampling frequency and accuracy of SPM flux estimates in two contrasted drainage basins. *Science of the Total Environment*, 330(1-3):233–247. 62

Dachs, J., Bayona, J. et Albaiges, J. (1997). Spatial distribution, vertical profiles and budget of organochlorine compounds in western Mediterranean seawater. *Marine Chemistry*, 57(3-4):313–324. 19

Dargnat, C. et Fisson, C. (2010). Les polychloro-biphényles (PCB) dans le bassin de la Seine et son estuaire. Rapport technique, GIP Seine-Aval. 135 p. 16, 17, 19, 246

Daskalakis, K. D. et O'Connor, T. P. (1995). Normalization and elemental sediment contamination in the coastal United States. *Environmental Science & Technology*, 29(2):470–477. 48, 49

de Groot, A., Zschuppel, K. et Salomons, W. (1982). Standardization of methods of analysis for heavy metals in sediments. *Hydrobiologia*, 91-92(1):689–695. 48

de l'eau Loire Bretagne, A. (2006). Le prélèvement d'échantillons en rivière – techniques d'échantillonnage en vue d'analyses physico-chimiques. Rapport technique, Agence de l'eau Loire Bretagne. 327, 328

de l'écologie et du développement durable ADEME, M. (2003). Plan national de décontamination et d'élimination des appareils contenant des PCB et PCT. Rapport technique. 42 p. 18

De Vente, J. et Poesen, J. (2005). Predicting soil erosion and sediment yield at the basin scale : scale issues and semi-quantitative models. *Earth-Science Reviews*, 71:95-125. 56, 57, 58

Delmas, M., Cerdan, O., Cheviron, B. et Mouchel, J. (2011). River basin sediment flux assessments. *Hydrological Processes*, 25(10):1587–1596. 55

Delmas, M., Cerdan, O., Cheviron, B., Mouchel, J. et Eyrolle, F. (2012). Sediment export from French rivers to the sea. *Earth Surface Processes and Landforms*, 37(7):754–762. 30

Delmas, M., Cerdan, O., Mouchel, J. et Garcin, M. (2009). A method for developing a large-scale sediment yield index for European river basins. *Journal of Soils and Sediments*, 9(6):613–626. xvii, xxviii, 57, 58, 251, 252, 254, 282

Dempster, A., Laird, N. et Rubin, D. (1977). Maximum likelihood from incomplete data via EM algorithm. *Journal of the Royal Statistical Society series B-Methodological*, 39(1):1–38. 108

Desmet, M., Mourier, B., Mahler, B. J., Van Metre, P. C., Roux, G., Persat, H., Lefevre, I., Peretti, A., CHAPron, E., Simonneau, A., Miege, C. et Babut, M. (2012). Spatial and temporal trends in PCBs in sediment along the lower Rhone river, France. *Science of the Total Environment*, 433:189–197. 35, 90, 135, 136, 285, 329, 330

Dickinson, W. (1981). Accuracy and precision of suspended sediment loads. *Erosion and sediment transport measurement*, (133):195–202. 6, 51

Dolan, D. M., Yui, A. K. et Geist, R. D. (1981). Evaluation of river load estimation methods for total phosphorus. *Journal of Great Lakes Research*, 7(3):207–214. 52, 54

Driscoll, C. T., Mason, R. P., Chan, H. M., Jacob, D. J. et Pirrone, N. (2013). Mercury as a global pollutant : Sources, pathways, and effects. *Environmental Science & Technology*, 47(10):4967–4983. 12

Duan, N. (1983). Smearing estimate : a nonparametric retransformation method. *Journal of the American Statistical Association*, 78(383):605–610. 54, 56

Dutordoir, S., Némery, J., Minaudo, C., Belleudy, P., Roux, L., Le Coz, J., Coquery, M., Launay, M., Camenen, B., Landas-Maneval, J., Rivière, C. et Dumas, D. (2012). Utilisation de mesures hautes fréquences (MES, débit) pour le calcul des flux de métaux particulaires dans une rivière alpine : l'Isère. *In Conference IS Rivers, Lyon, France*. Poster. 29, 47, 68, 139, 212, 214

Eads, R. et Lewis, J. (2002). Continuous turbidity monitoring in streams of northwestern California. *In* Gray, G. G. . J., éditeur : *Turbidity and other sediment surrogates workshop, 30 April – 02 May 2002, Reno, Nevada*, page 3 p. 45, 51, 89

E.C. (1998). Directive 1998//83/CE du 03/11/98 relative à la qualité des eaux destinées à la consommation humaine JO L 327 du 5.12.1998 26 p. 11

E.C. (2000). Directive 2000/60/CE du Parlement européen et du Conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau. JO L 327 du 22.12.2000. 327 p. 2, 327

E.C. (2001). Décision No 2455/2001/CE du parlement et du conseil du 20 novembre 2001 établissant la liste des substances prioritaires dans le domaine de léau et modifiant la directive 2000/60/CE. Journal officiel des Communautés européennes du 15/12/2001. 5 p. 2

E.C. (2001). Commission regulation No 466/2001 of 8 March 2001 setting maximum levels for certain contaminants in foodstuffs. Official Journal of the European Communities - 16.3.2001 13 p. 11

E.C. (2008). Directive 2008/105/CE du Parlement européen et du Conseil du 16 décembre 2008 établissant des normes de qualité environnementale dans le domaine de l'eau, modifiant et abrogeant les directives du Conseil 82/176/CEE, 85/513/CEE, 84/156/CEE, 84/491/CEE, 86/280/CEE et modifiant la directive 2000/60/CE. /JO L 348 du 24.12.2008. 84-97. 2, 11

E.C. (2013). Directive 2013/39/Eu of the European Parliament and of the Council of 12 August 2013 amending Directives 2000/60/EC and 2008/105/EC as regards priority substances in the field of water policy. /JO L 226. 1-17. 2, 17

MEDD (1985). Circulaire du 30/09/85 relative aux installations classées pour la protection de lénvironnement installations utilisant ou mettant en œuvre des polychlorobiphényles (PCB). Journal officiel du 6 février 1986. 7 p. 17

MEDD (2001). Décret 2001-1220 du 20/12/01 relatif aux eaux destinées à la consommation humaine, à léxclusion des eaux minérales naturelles. Journal officiel 297 du 22 décembre 2001. 32 p. 17

engineering Sarl, A. (2004). Barrage de Verbois – Etude hydraulique et morphologique. Rapport technique, Rapport pour les SIG. 139 p. 269

Eyrolle, F. (2010). Rapport d'avancement semestriel du projet ANR Extrema. Episodes météo-climatiques extrêmes et redistribution des masses sédimentaires et des polluants associés au sein d'un système côtier. Rapport technique DEI/SESURE n 2010-27, IRSN. 54 p. 27, 29

Eyrolle, F., Radakovitch, O., Raimbault, P., Charmasson, S., Antonelli, C., Ferrand, E., Aubert, D., Raccasi, G., Jacquet, S. et Gurriaran, R. (2012). Consequences of hydrological events on the delivery of suspended sediment and associated radionuclides from the Rhône river to the Mediterranean sea. *Journal of Soils and Sediments*, 12:1479–1495. 25, 29, 30, 46, 121, 144, 218, 220, 221

Ferguson, R. (1986). River loads underestimated by rating curves. *Water Resources Research*, 22(1):74–76. 54, 56

Ferguson, R. (1987). Accuracy and precision of methods for estimating river loads. *Earth Surface Processes and Landforms*, 12(1):95–104. 51, 52

Figueres, G., Martin, J.-M., Meybeck, M. et Seyler, P. (1985). A comparative study of mercury contamination in the Tagus Estuary (Portugal) and major french estuaries (Gironde, Loire, Rhone). *Estuarine Coastal Shelf. Sci.*, 20:183–203. 15

Foster, I. et ChArlesworth, S. (1996). Heavy metals in the hydrological cycle : Trends and explanation. *Hydrological Processes*, 10(2):227–261. 1

Foster, I., Millington, R. et Grew, R. (1992). The impact of particle size controls on stream turbidity measurement ; some implications for suspended sediment yield estimation. *Erosion and sediment transport monitoring programmes in river basins*, 210:51–62. 4, 86, 87, 89

Franke, C., Baati, S., Evrard, O., Kissel, C., Audiguier, M., Ayrault, S. et Bonté, P. (2010). Variabilité saisonnière de la fraction magnétique (métallique) des matières en suspension dans le bassin versant de la Seine. Rapport technique, Piren Seine. 10 p. 5

Franke, C., Kissel, C., Robin, E., Bonte, P. et Lagroix, F. (2009). Magnetic particle characterization in the Seine river system : Implications for the determination of natural versus anthropogenic input. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 10. 5

Fruget, J., Centofanti, M., Dessaix, P. et Meunier, T. (2010). Acceptabilité écologique du rejet dans le Rhône de l'usine TREDI Saint Vulbas en ce qui concerne les PCB. Rapport technique, Aralep, Trédi. 89 p. 4, 18, 22, 34, 90, 250, 286

Gaspéri, J. e. a. (2010). Contamination de la Seine par les micropolluants organiques : évolution selon les conditions hydriques et lúrbanisation. Rapport technique, Piren-Seine. 5

Gippel, C. (1989). The use of turbidimeters in suspended sediment research. *Hydrobiologia*, 176:465–480. 86

Gippel, C. (1995). Potential of turbidity monitoring for measuring the transport of suspended-solids in streams. *Hydrological Processes*, 9(1):83–97. 4, 45, 51, 76, 86, 87, 88, 89

Gomez-Gutierrez, A., Jover, E., Bodineau, L., Albaiges, J. et Bayona, J. (2006). Organic contaminant loads into the western Mediterranean sea : Estimate of Ebro river inputs. *Chemosphere*, 65(2):224–236. 19, 22, 23

Grasso, D. A. et Jakob, A. (2003). Charge de sédiments en suspension : Comparaison entre deux méthodes de calcul. *GWA*, 83(12):898–905. 191

Grosbois, C., Meybeck, A., Horowitz, A. et Ficht, A. (2006). 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(1-3):22–37. 5

GST-PCB (2012). La gestion des milieux aquatiques avec le risque PCB. *In Séminaire d'échange national, 18 décembre 2012, Lyon, France*. 16

Hadley, R. F. et Walling, D. E. (1984). *Erosion and Sediment Yield : Some methods of Measurement and Modelling*. 54, 56

Harremoes, P., Gee, D., MacGarvin, M., Stirling, A., Keys, J., Wynne, B. et Guedes Vaz, S. (2001). *Late lessons from early warnings : the precautionary principle 1896-2000*. Issue report num 22. European Environment Agency, Copenhagen. 18

Heemken, O., Stachel, B., Theobald, N. et Wenclawiak, B. (2000). Temporal variability of organic micropollutants in suspended particulate matter of the river Elbe at Hamburg and the river Mulde at Dessau, Germany. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 38(1):11–31. 23

Heininger, P., Pelzer, J., Claus, E. et Pfitzner, S. (2003). Results of long-term sediment quality studies on the river Elbe. *Acta hydrochimica et hydrobiologica*, 31(4-5):356–367. 5

Horowitz, A. (1986). Comparison of methods for the concentration of suspended sediment in river water fo subsequent chemical analysis. *Environmental Science & Technology*, 20(2):155–159. 91

Horowitz, A. (1995). *The use of suspended sediment and associated trace elements in water quality studies*, volume IAHS special publication n 4. IAHS. 6, 47, 65, 67

Horowitz, A. (2003). An evaluation of sediment rating curves for estimating suspended sediment concentrations for subsequent flux calculations. *Hydrological Processes*, 17(17):3387–3409. 63, 64, 190

Horowitz, A. (2008). Determining annual suspended sediment and sediment-associated trace element and nutrient fluxes. *Science of the Total Environment*, 400(1-3):315–343. 1, 2, 4, 6, 40, 41, 45, 46, 47, 51, 65, 66, 67, 68, 75, 78, 89, 91, 212

Horowitz, A., Elrick, K. et Smith, J. (2001a). Estimating suspended sediment and trace element fluxes in large river basins : methodological considerations as applied to the NASQAN programme. *Hydrological Processes*, 15(7):1107–1132. 5, 47, 66, 67

Horowitz, A., Stephens, V., Elrick, K. et Smith, J. (2012). Concentrations and annual fluxes of sediment-associated chemical constituents from conterminous US coastal rivers using bed sediment data. *Hydrological Processes*, 26(7):1090–1114. 1

Horowitz, A. J. et Elrick, K. A. (1987). The relation of stream sediment surface area, grain size and composition to trace element chemistry. *Applied Geochemistry*, 2(4):437 – 451. 48

Horowitz, A. J., Elrick, K. A. et Smith, J. J. (2001b). Annual suspended sediment and trace element fluxes in the Mississippi, Columbia, Colorado, and Rio Grande drainage basins. *Hydrological Processes*, 15(7):1169–1207. 66

Hydratec, S. e. M. (2003). Etude globale pour une stratégie de réduction des crues dues au Rhône. Rapport technique, IRS Institution interdépartementale des bassins Rhône-Saône. 27, 28, 59, 122, 251, 256, 281, 385

Hölemann, J. A., Schirmacher, M. et Prange, A. (2005). Seasonal variability of trace metals in the Lena river and the southeastern Laptev sea : impact of the spring freshet. *Global and planetary change*, 48(1):112–125. 5

INERIS (2011). Données technico-économiques sur les substances chimiques en France : Les polychlorobiphenyles (PCB). Drc-11-118962-11081a, INERIS. 89 p. 17, 18

IPL (2009). Réseau de suivi "micropolluants sur eau brute et matières en suspension" du bassin Rhône méditerranéen : Bilan & perspectives. Rapport final. p. 273. 4, 6, 30, 52, 65

ISO (1995). 10694 : Qualité du sol. Dosage du carbone organique et du carbone total après combustion sèche (analyse élémentaire) – Soil quality. Determination of organic and total carbon after dry combustion (elementary analysis). 11 p. 103

ISO (2009). 13320 :2009 Analyse granulométrique – Méthodes par diffraction laser – Principes généraux – tirage 2 (2009-12-01). Particle size analysis - Laser diffraction methods – General principles – tirage 2 (2009-12-01). 51 p. 100

Iwasa, Y. et Aya, S. (1991). Predicting longitudinal dispersion coefficient in open channel flows. *In Int. Symp. on Environmental Hydraulics*, pages 505–510, Hong-Kong, China. IAHR. 273, 283

Jambon, A. et Thomas, A. (2009). *Géochimie, Cours et exercices corrigés. Géodynamique et cycles.* 2, 40, 41, 78, 201

Jansson, M. (1985). A comparison of detransformed logarithmic regressions and power function regressions. *Geografiska Annaler series A-Physical Geography*, 67(1-2):61–70. 54, 188

Jansson, M. (1996). Estimating a sediment rating curve of the Reventazon river at Palomo using logged mean loads within discharge classes. *Journal of Hydrology*, 183(3-4):227–241. 55

Jansson, M. (2002). Determining sediment source areas in a tropical river basin, Costa Rica. *Catena*, 47(1):63–84. 54, 189, 193

JCGM (2008). Evaluation des données de mesure – guide pour léxpression de líncertitude de mesure – Evaluation of measurement data – Guide to the expression of uncertainity in measurement. GUM 1995 avec des corrections mineures JCGM 100 :2008 (F), Joint Committee for Guides in Metrology. 121 pages. 60, 70, 71, 75

Kersten, M. et Smedes, F. (2002). Normalization procedures for sediment contaminants in spatial and temporal trend monitoring. *Journal of Environmental Monitoring*, 4(1):109–115. 48, 50

Klamer, J., Hegeman, W. et Smedes, F. (1990). Comparison of grain-size correction procedures for organic micropollutants and heavy-metals in marine-sediments. *Hydrobiologia*, 208(3):213–220. 48, 49, 50

Kostaschuk, R., Best, J., Villard, P., Peakall, J. et Franklin, M. (2005). Measuring flow velocity and sediment transport with an acoustic Doppler current profiler. *Geomorphology*, 68(1-2):25 – 37. <ce :title>Fluid Flow and Sediment Transport Process in Geomorphology</ce :title> <ce :subtitle>Innovations, Insights & Advances in Measurement</ce :subtitle> <xocs :full-name>53rd Annual Meeting of the Canadian Associatino of Geographers</xocs :full-name>. 43

Krumbein, W. (1934). Size frequency distributions of sediments. *Journal of Sedimentary Petrology*, 4:65-77. 107

Landers, M. N. Sturm, T. W. (2013). Hysteresis in suspended sediment to turbidity relations due to changing particle size distributions, *Water Resources Research*, 49:5487–5500. 87

Lang, M. (1995). *Les chroniques en hydrologie. Modélisation comparée par un système de gestion de bases de données relationnel et orienté-objet. Traitements de base et intervalles de confiance des quantiles de crues. Techniques d'échantillonnage par la méthode du renouvellement – Time series in hydrology. Comparison between a relational and an object oriented data base manager system. Basic treatments and confidence limits of flood quantiles. Sampling techniques with the renewal theory.* Thèse de doctorat, Université de Grenoble 1, Saint-Martin-d'Hères, FRANCE. 52, 53, 60, 61, 63, 64

Lange, K. (2010). *Numerical Analysis for Statisticians*. Statistics and Computing. Springer. 114

Launay, M., Le Coz, J., Angot, H. et Coquery, M. (2012). Assessment of analytical models for simulating continuous time series of suspended particulate matter concentration in regulated rivers (oral communication). *In River Flow 2012, San José, Costa Rica, 5-7 Septembre 2012*, pages 977–983. 54, 189, 193

Le Coz, J., Camenen, B., Peyrard, X. et Dramais, G. (2012). Uncertainty in open-channel discharges measured with the velocity-area method. *Flow Measurement and Instrumentation*, 26:18–29. 74

Le Coz, J., Chaléon, C., Bonnifait, L., Le Boursicaud, R., Renard, B. et Branger, F. (2013a). Analyse bayésienne des courbes de tarage et de leurs incertitudes : la méthode BaRatin. *In Congrès SHF «Hydrométrie 2013», Paris, 15-16 mai 2013*. 74

Le Coz, J., Launay, M., Lagouy, M., Coquery, M. et Angot, H. (2011). Eléments de réponse aux questions de lÁgence de l'Eau RM&C concernant lácquisition d'une centrifugeuse fixe pour équiper la station de mesure du Rhône à Jons. 121, 363

Le Coz, J., Pierrefeu, G., Brochot, J., Paquier, A., Chastan, B. et Lagouy, M. (2007). Suspended-load dynamics during floods in the river Saône, France. *In 10th International Symposium on River Sedimentation*, page 8 p., Moscou, Fédération de Russie. 54, 137, 189, 193

Le Coz, J., Renard, B., Bonnifait, L., Branger, F. et Le Boursicaud, R. (2013b). Combining hydraulic knowledge and uncertain gaugings in the estimation of hydrometric rating curves : a Bayesian approach. (Accepted) *Journal of Hydrology*. 74

Lenzi, M. et Marchi, L. (2000). Suspended sediment load during floods in a small stream of the Dolomites (north-eastern Italy). *Catena*, 39(4):267–282. 45, 51, 54, 89, 193

Lick, W. (2009). *Sediment and contaminant transport in surface waters*. CRC Press. 2, 5, 40, 41, 78

Linne, C. (2011). Estimation des flux de contaminants dissous et particulaires sur le bas Rhône et ses affluents à partir des données du réseau de surveillance de lágence de léau Rhône Méditerranée Corse. Mémoire de D.E.A., Université de la Méditerranée – Centre d'Océanologie de Marseille. 47 p. xxiv, 30, 72, 156, 157

Littlewood, I. (1995). Hydrological regimes, sampling strategies, and assessment of errors in mass load estimates for United-Kingdom rivers. *Environment International*, 21(2):211–220. 52, 53

Littlewood, I., Watts, C. et Custance, J. (1998). Systematic application of United Kingdom river flow and quality databases for estimating annual river mass loads (1975-1994). *Science of the Total Environment*, 210(1-6):21–40. 64

Littlewood, I. G. (1992). *Estimating contaminant loads in rivers : A review*. Institute of Hydrology. 6, 51

Loizeau, J.-L. (2009). Echantillonnage et analyse des sédiments du réservoir de Verbois. Rapport technique, Institut Forel. 243, 386

Long, E., Macdonald, D., Smith, S. et Calder, F. (1995). Incidence of adverse biological effects within ranges of chemical concentrations in marine and estuarine sediments. *Environmental Management*, 19(1):81–97.

Loring, D. et Rantala, R. (1992). Manual for the geochemical analyses of marine sediments and suspended particulate matter. *Earth-Science Reviews*, 32(4):235 – 283. 48

Lu, H., Moran, C. J. et Prosser, I. P. (2006). Modelling sediment delivery ratio over the Murray Darling basin. *Environmental Modelling & Software*, 21(9):1297–1308. 15th Biannual Congress on Modelling and Simulation, Townsville, AUSTRALIA, 2003. 56

Ludwig, W. et Probst, J. (1998). River sediment discharge to the oceans : present-day controls and global budgets. *American Journal of Science*, 298:265-295. 57

Lugeon, M. (1912). Etude géologique sur le projet de barrage du Haut-Rhône français à Génissiat. *Mémoires de la Société géologique de France*, 4ème sér., t. II, mémoire n 8. 185

Mahler, B. et Van Metre, P. (2003). A simplified approach for monitoring hydrophobic organic contaminants associated with suspended sediment : Methodology and applications. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*, 44(3):288–297. 22, 325

Mailhot, A., Rousseau, A. N., Talbot, G., Gagnon, P. et Quilbe, R. (2008). A framework to estimate sediment loads using distributions with covariates : Beaurivage river watershed (Québec, Canada). *Hydrological Processes*, 22(26):4971–4985. 55

Mano, V. (2008). *Processus conditionnant les apports de sédiments fins dans les retenues.* Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble. xxv, 6, 7, 45, 46, 51, 54, 55, 57, 58, 60, 62, 75, 76, 82, 86, 89, 174, 175

Marchand, M. (1989). Les PCB dans l'environnement marin. aspects géochimiques d'apports et de distribution. Cas du littoral français – The PCB's in the marine environment. Geochemical aspects of inputs and distribution. A case studied : the French shoreline. *Journal of Water Science – Revue des sciences de léau*, vol. 2, no 3:pp. 373–403 (4 p.). 18, 19, 20, 21, 23

Marion, C., Maillet, G., Arnaud, M. et Eyrolle, F. (2010). Quantifications des flux solides rhôdaniens à lembouchure : apports de la Durance pendant la crue exceptionnelle de mai 2008. *La Houille Blanche – Revue Internationale de lÉau*, (5):72–80. 219, 221

Mason, R. et Sullivan, K. (1997). Mercury in lake Michigan. *Environmental Science & Technology*, 31(3):942–947.

Masson, M., Blanc, G. et Schäfer, J. (2006). Geochemical signals and source contributions to heavy metal (Cd, Zn, Pb, Cu) fluxes into the Gironde estuary via its major tributaries. *Science of the Total Environment*, 370(1):133–146. 5

McMillan, H., Krueger, T. et Freer, J. (2012). Benchmarking observational uncertainties for hydrology : rainfall, river discharge and water quality. *Hydrological Processes*, 26:4078-4111. 72

Meharg, A., Wright, J., Leeks, G., Wass, P., Owens, P., Walling, D. et Osborn, D. (2003). PCB congener dynamics in a heavily industrialized river catchment. *Science of the Total Environment*, 314:439–450. Meeting on Estuarine Modelling : Use and Abuse, CUMBRIA, ENGLAND, SEP, 2001. 22

Meunier, P. (2008). Rapport d'information sur le Rhône et les PCB : une pollution au long cours. Rapport technique no. 998, Assemblée Nationale. 16

Meybeck, M. (1992). Etablissement des flux des polluants. Rapport inter-agences. Rapport technique, Agences de l'Eau. 3, 6, 51, 65, 66, 67, 69, 211

Meybeck, M., Horowitz, A., Grosbois, C., Ficht, A., Cun, C., Beaupère, F., Saadoum, M. et Quenea, K. (2000). Evolution de la contamination métallique du bassin médian et aval de la Seine (1980 - 2000). Rapport A53-A73, Piren Seine. 5, 326

Meybeck, M., Laroche, L., Durr, H. et Syvitski, J. (2003). Global variability of daily total suspended solids and their fluxes in rivers. *Global and Planetary Change*, 39(1-2):65–93. xviii, 174

Meybeck, M. et Moatar, F. (2012). Daily variability of river concentrations and fluxes : indicators based on the segmentation of the rating curve. *Hydrological Processes*, 26(8):1188–1207. 46, 62

Meybeck, M., Pasco, A. et Bouloubassi, I. (1996). Evaluation des flux polluants dans les eaux superficielles. Etude inter-agences de l'eau, Agences de l'eau. 50 p. / 60 p. / 70 p. / 55 p. 6, 65

Meybeck, M., Pasco, A. et Ragu, A. (1994). Evaluation des flux polluants dans les rivières : pourquoi, comment et à quel prix ? *Etude des Agences de léau*, Cahier Technique numéro 28:23 p. 6, 65, 66

Middleton, G. V. (1976). Hydraulic interpretation of sand size distributions. *Journal of Geology*, 84:405–426. 107

Minaudo, C. (2011). Suivi des pollutions particulaires dans l'Isère en amont de Grenoble. Mémoire de D.E.A., Université Joseph Fourier, Grenoble. 57 p. 29, 68, 212

Moatar, F. et Meybeck, M. (2005). Compared performances of different algorithms for estimating annual nutrient loads discharged by the eutrophic river Loire. *Hydrological Processes*, 19(2):429–444. 6, 46, 51, 60, 62

Moatar, F. et Meybeck, M. (2007). Riverine fluxes of pollutants : Towards predictions of uncertainties by flux duration indicators. *Comptes rendus Geoscience*, 339(6):367–382. xxv, 7, 174, 175

Moatar, F., Meybeck, M., Raymond, S., Coynel, A., Ludwig, W., Mano, V., Nemery, J., Poirel, A., Etcheber, H. et Crouzet, P. (2008). SPM fluxes estimates from discrete monitoring : comparison of calculation methods and uncertainities. *La Houille Blanche – Revue Internationale de lÉau*, (4):64–71. Meeting on Recent Developments in Sediment Transport and Management of Natural and Urban Sediments, Lyon, FRANCE, NOV 28-29, 2007. 7

Moatar, F., Person, G., Meybeck, M., Coynel, A., Etcheber, H. et Crouzet, P. (2006). The influence of contrasting suspended particulate matter transport regimes on the bias and precision of flux estimates. *Science of the Total Environment*, 370(2-3):515–531. 62

Monod, G., Bouvet, Y., Devaux, A. et Lorgue, G. (1990). Les difficultés de l'évaluation des risques liés à une pollution chronique du milieu aquatique par les polychlorobiphényles (PCBs). Un cas sur le Haut-Rhône. *Le Courrier de la Cellule Environnement*, 10:10. 33

Moore, S. (2011). *Monitoring flow and fluxes of suspended sediment in rivers using side-looking acoustic Doppler current profilers*. Thèse de doctorat, 188 p, Université de Grenoble. 43, 100, 136, 147

Moore, S. A., Le Coz, J., Hurther, D. et Paquier, A. (2012). On the application of horizontal ADCPs to suspended sediment transport surveys in rivers. *Continental Shelf Research*, 46:50–63. 43

Moore, S. A., Le Coz, J., Hurther, D. et Paquier, A. (2013). Using multi-frequency attenuation to monitor grain size and concentration of suspended sediment in rivers. *Journal of the Acoustical Society of America*, page (sous presse). 43

Navratil, O., Esteves, M., Legout, C., Gratiot, N., Nemery, J., Willmore, S. et Grangeon, T. (2011). Global uncertainty analysis of suspended sediment monitoring using turbidimeter in a small mountainous river catchment. *Journal of Hydrology*, 398(3-4):246–259. 76

Nicollet, G. et Uan, M. (1979). Écoulements permanents à surface libre en lits composés. *La Houille Blanche*, 1:21–30. 261

Niel, Y., Collilieux, G. et Giuliani, Y. (1985). Détermination simple et rapide des mes par la méthode du pycnomètre CNR. Application au contrôle des vidanges des retenues. *Revue française des Sciences de lÉau*, 4:325–340. 85

Némery, J. et Garnier, J. (2007a). Dynamique du phosphore dans le bassin de la Seine et son estuaire. Dynamics of phosphorus in the Seine basin and its estuary. *Techniques Sciences et Méthodes*, 4:p. 33–45. 5

Némery, J. et Garnier, J. (2007b). Typical features of particulate phosphorus in the Seine estuary (France). *Hydrobiologia*, 588:p. 271–290. 5

Olivier, A., Pierrefeu, G., Scotti, M. et Blanquart, B. (2009). Incertitude des mesures de débit réalisées a l'ADCP. *La Houille Blanche*, (3):132–137. 74

Ollivier, P., Hamelin, B. et Radakovitch, O. (2010). Seasonal variations of physical and chemical erosion : A three-years survey of the Rhone river (France). *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74(no 3):pp. 907–927. 17th Annual V M Goldschmidt Conference, Cologne, GERMANY, AUG, 2007. 27, 30, 67, 144, 218

Ollivier, P., Radakovitch, O. et Hamelin, B. (2011). Major and trace element partition and fluxes in the Rhône river. *Chemical Geology*, 285(1-4):15–31. 5, 7, 27, 29, 67

Ongley, E. (1973). Sediment discharge from Canadian basins into lake Ontario. *Canadian Journal of Earth Sciences*, 10(2):146–156. 53

ORS (2008). Les PCBs. Rapport technique, ORS. 17

OSPAR (2002). JAMP guidelines for monitoring contaminants in sediments. Rapport technique. 114 p. 1, 11, 20, 49

OSPAR, C. (2000). Bilan de santé 2000. Rapport technique, Commission OSPAR, Londres. 108 pp. 18, 52

Observatoire des Sédiments du Rhône (2013). Suivi scientifique des opérations de chasses sur le Haut-Rhône de juin 2012. Rapport technique, version finale septembre 2013. 59 pp. 148, 214, 283, 285, 329

Observatoire des Sédiments du Rhône (2013). Analyse des données de surveillance de l'Agence de l'Eau Rhône-Méditerranée-Corse pour le calcul de flux de contaminants. Rapport technique, version finale mars 2013. 59 pp. 159, 164, 182

Owens, P., Walling, D., Carton, J., Meharg, A., Wright, J. et Leeks, G. (2001). Downstream changes in the transport and storage of sediment-associated contaminants (P, Cr and PCBs) in agricultural and industrialized drainage basins. *Science of the Total Environment*, 266(1-3):177–186. 8th International Symposium on the Interactions Between Sediments and Water, BEIJING, PEOPLES R CHINA, SEP 13-17, 1999. 22

Pacyna, E. G., Pacyna, J. M., Steenhuisen, F. et Wilson, S. (2006). Global anthropogenic mercury emission inventory for 2000. *Atmospheric Environment*, 40(22):4048 – 4063. 12

Pardé, M. (1925). *Le régime du Rhône*, volume 13. Institut de Géographie Alpine. 25, 122, 123, 124, 128, 241

Pardé, M. (1942). *Quelques nouveautés sur le régime du Rhône : erratum et addendum à un gros ouvrage*, volume 1. M. Audin. 385

Pardos, M., Houriet, J.-P. et Dominik, J. (2003). Micropolluants dans les sédiments. Documents environnement no 353, OFEFP – Office fédéral de l'environnement, des forêts et du paysage, Berne. 58 p. 4, 15, 22, 32

Petersen-Overleir, A. (2004). Accounting for heteroscedasticity in rating curve estimates. *Journal of Hydrology*, 292(1-4):173 – 181. 74

Phillips, J., Webb, B., Walling, D. et Leeks, G. (1999). Estimating the suspended sediment loads of rivers in the Lois study area using infrequent samples. *Hydrological Processes*, 13(7):1035–1050. 3, 6, 46, 51, 54, 55, 60, 62, 63, 188, 190

Piazza, R., Ruiz-Fernandez, A., Frignani, M., Zangrando, R., Bellucci, L., Moret, I. et Paez-Osuna, F. (2008). PCBs and PAHs in surficial sediments from aquatic environments of Mexico city and the coastal states of Sonora, Sinaloa, Oaxaca and Veracruz (Mexico). *Environmental Geology*, 54(7):1537–1545. 4

Piégay, H., Radakovitch, O., Fantino, G. (2013). L'Observatoire des Sédiments du Rhône : Synthèse des résultats 2010-2013, recommandations opérationnelles et perspectives. Rapport final (version provisoire), 82 p. 148, 214, 283, 285, 329

Pierard, C., Budzinski, H. et Garrigues, P. (1996). Grain-size distribution of polychlorobiphenyls in coastal sediments. *Environmental Science & Technology*, 30(9):2776–2783. 41

Pierrefeu, G. (2013). La qualification de différents systèmes de mesures de débit en rivière par les jaugeages : une expérience à partager. Validation of river flow measurement systems by gauging : a practice to share. *In Conférence SHF Hydrométrie 2013, 15-16 mai 2013, Paris, France*. 74

Pignatello, J. et Xing, B. (1996). Mechanisms of slow sorption of organic chemicals to natural particles. *Environmental Science & Technology*, 30(1):1–11. 2, 40, 41, 78, 201

Pohlert, T., Hillebrand, G. et Breitung, V. (2011). Effects of sampling techniques on physical parameters and concentrations of selected persistent organic pollutants in suspended matter. *Journal of Environmental Monitoring*, 13(6):1579–1588. 5

Pont, D. (1996). Evaluation des charges polluantes du Rhône à la Méditerranée. Synthèse et recommandations. Agence de lÉau Rhône-Méditerranée-Corse, Lyon. 350 p. 15

Pont, D. (1997). Les débits solides du Rhône à proximité de son embouchure : données récentes (1994-1995) / The discharge of suspended sediments near to the mouth of the Rhône recent statistics (1994-1995). *Revue de Géographie de Lyon*, 72(1):23-33. 27

Pont, D., Simonet, JP. et Walter, AV. (2002). Medium-term changes in suspended sediment delivery to the ocean : Consequences of catchment heterogeneity and river management (Rhone River, France) *Estuarine Coastal and Shelf Science*, 54(1):1-18. 218

Preston, S., Bierman, V. et Silliman, S. (1989). An evaluation of methods for the estimation of tributary mass loads. *Water Resources Research*, 25 (6):1379-1389. 63

Quémerais, B., Cossa, D., Rondeau, B., Pham, T. et Fortin, B. (1998). Mercury distribution in relation to iron and manganese in the waters of the St. Lawrence River. *Science of the Total Environment*, 213(1-3):193–201. 15

Quémerais, B., Cossa, D., Rondeau, B., Pham, T. T. et Gagnon, P. (1999). Sources and fluxes of mercury in the St. Lawrence River. *Environmental Science & Technology*, 33(6):840–849. 15, 47, 67, 68, 92

Quilbe, R., Rousseau, A., Duchemin, M., Poulin, A., Gangbazo, G. et Villeneuve, J. (2006). Selecting a calculation method to estimate sediment and nutrient loads in streams : Application to the Beaurivage river (Quebec, Canada). *Journal of Hydrology*, 326(1-4):295–310. 6, 46, 51, 52, 54, 55, 60, 62, 63, 64

Radakovitch, O., Roussiez, V., Ollivier, P., Ludwig, W., Grenz, C. et Probst, J.-L. (2008). Input of particulate heavy metals from rivers and associated sedimentary deposits on the Gulf of Lion continental shelf. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 77(2):285–295. 7, 29, 68

Ramade, F. (2012). *Éléments d'écologie – Écologie appliquée*. Sciences Sup, Dunod. 1

Raymond, S. (2011). *Incertitudes des flux transportés par les rivières (Matière en suspension, nutriments, sels dissous) Vers un système expert d'optimisation des méthodes de calcul*. Thèse, Université François Rabelais – Tours. 6, 46, 51, 52, 54, 55, 60

Rhône-Alpes, D. (2010). Arrêtés préfectoraux relatifs à línterdiction de consommation et de commercialisation des poissons d'eau douce contaminés par les PCB au 17 août 2010. Map. 33

Rhône-Alpes, D. (2013). Plan national d'actions sur les PCB – Programme d'actions 2011-2013 du bassin Rhône-Méditerranée – Rapport d'étape du 8 février 2013. Rapport technique. 18

Rieux, C. (2008). Rapport de chasse de la Basse-Isère. Résultats du suivi physico-chimique du 02 au 12 juin 2008. Rapport technique D4121/RAP/2008-00653-A, EDF. 29 p. 139, 147, 218, 220

Riley, S. (1998). The sediment concentration turbidity relation : Its value in monitoring at ranger uranium mine, Northern Territory, Australia. *Catena*, 32(1):1–14. 45, 51, 89

Rivière, A. (1977). *Méthodes granulométriques. Techniques et interprétations*. 50, 99

Robbe, D., Marchandise, P. et Thomas, A. (1983). Détermination de l'origine des pollutions métalliques par datation des carottes de sédiments. *Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées*, (127):81–92. 329

Rodda, J. et Jones, G. (1983). Preliminary estimates of loads carried by rivers to estuaries and coastal waters around Great Britain derived from the harmonized monitoring scheme. *Journal of Institution of Water Engineers and Scientists*, 37:529–539. 53

Ifremer (1988). Réseau National d'Observation de la Qualité du Milieu Marin. Dix années de surveillance 1974-1984. Document technique, volume IV, mercure et cadmium. 127 p. 92

Ifremer (1988). Surveillance du Milieu Marin. Travaux du RNO. Edition 2002. Ifremer et Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable. ISSN 1620-1124 48 p. 11

Rondeau, B., Cossa, D., Gagnon, P., Pham, T. et Surette, C. (2005). Hydrological and biogeochemical dynamics of the minor and trace elements in the St. Lawrence River. *Applied Geochemistry*, 20(7):1391–1408. 5

Roux, L. (2011). Faisabilité du calcul de flux de contaminants particulaires à partir des données de l'agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse. Mémoire de D.E.A., Institut National Polytechnique de Grenoble - Ecole nationale supérieure de l'Energie, l'Eau, et l'Environnement (ENSE3). 114 p. xxx, 30, 71, 121, 163, 364

Sabot, P. (2013). Etude de la variation spatiotemporelle de la concentration en contaminants associés à des matières en suspension transportées dans le Rhône. Mémoire de stage, m2, CPE Lyon, Université Lyon 1. 46 p. 20, 164

Sadar, M. (2002). Turbidity instumentation – An overview of today's available technology. *In* Gray, G. G. . J., éditeur : *Turbidity and other sediment surrogates workshop, 30 April – 02 May 2002, Reno, Nevada*, page 11 p. 86, 89

Saguintaah, L. (2012). Mesures de flux de MES par turbidimétrie et incertitudes associées. Rapport de stage, 29 p., Master 2 hydrologie Université de Rennes. 44, 75, 76

Santiago, S., Thomas, R., Larbaigt, G., Rossel, D., Echeverria, M., Tarradellas, J., Loizeau, J., McCarthy, L., Mayfield, C. et Corvi, C. (1993). Comparative ecotoxicity of suspended sediment in the lower Rhône river using algal fractionation, microtox(r), and daphnia-magna bioassay. *Hydrobiologia*, 252(3):231–244. 15, 32, 34, 248

Schiavone, S. et Coquery, M. (2009). Analyse comparative et critique des documents guides ou normes pour le prélèvement des sédiments en milieu continental. Rapport technique CQELY.27085, Cemagref. 327

Schiavone, S. et Coquery, M. (2011). Guide d'échantillonnage et de prétraitement des sédiments en milieu continental pour les analyses physico-chimiques de la DCE. Rapport technique, Cemagref. 24 p. 92

Schmid, P., Zennegg, M., Holm, P., Pietsch, C., Brüschweiler, B., Kuchen, A., Staub, E. et Tremp, J. (2010). Polychlorobiphényles (PCB) dans les eaux en Suisse. Données concernant la contamination des poissons et des eaux par les PCB et les dioxines : évaluation de la situation. Rapport technique, Connaissance de l'environnement n 1002. Office fédéral de l'environnement, Berne. 104 p. 4

Schubert, B., Heininger, P., Keller, M., Claus, E. et Ricking, M. (2012). Monitoring of contaminants in suspended particulate matter as an alternative to sediments. *Trends in Analytical Chemistry*, 36:58 – 70. 5

Schulze, T., Ricking, M., Schroter-Kermani, C., Koerner, A., Denner, H.-D., Weinfurtner, K., Winkler, A. et Pekdeger, A. (2007). The German Environmental Specimen Bank – Sampling, processing, and archiving sediment and suspended particulate matter. *Journal of Soils and Sediments*, 7(6):361–367. xxi, 98

Schäfer, J. et Blanc, G. (2002). Relationship between ore deposits in river catchments and geochemistry of suspended particulate matter from six rivers in southwest France. *Science of the Total Environment*, 298(1-3):103–118. 5, 15, 47, 48, 67, 77, 91

Schäfer, J., Blanc, G., Audry, S., Cossa, D. et Bossy, C. (2006). Mercury in the Lot-Garonne river system (France) : Sources, fluxes and anthropogenic component. *Applied Geochemistry*, 21(3):515–527. 5, 14

Selin, N. E. (2009). Global biogeochemical cycling of mercury : A review. *Annual Review of Environment and Resources*, 34(1):43. 12

SGFH (1912). Tome V - Résultats des études et travaux à la fin de 1911. Rapport technique, Service des grandes forces hydrauliques dans la région des Alpes – Ministère de l'Agriculture. 122

Sicre, M.-A., Fernandes, M. B. et Pont, D. (2008). Poly-aromatic hydrocarbon (PAH) inputs from the Rhône river to the Mediterranean sea in relation with the hydrological cycle : Impact of floods. *Marine Pollution Bulletin*, 56(11):1935 – 1942. 29

Smith, R. et Daish, N. (1991). Dispersion far downstream of a river junction. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics*, 3(5):1102–1109. 45, 364

Sonney, R., Blum, A. et Chery, L. (2005a). Identification des zones à risque de fond géochimique élevé en éléments traces dans les cours d'eau et les eaux souterraines du bassin Rhône - Méditerranée et Corse. Rapport de phase 1 – Recueil des données et des informations. Rapport technique BRGM/RP-54031-FR, BRGM. 135 p. 31

Sonney, R., Blum, A. et Chery, L. (2005b). Identification des zones à risque de fond géochimique élevé en éléments traces dans les cours d'eau et les eaux souterraines du bassin Rhône - Méditerranée et Corse. Rapport intermédiaire de phase 2 – Exploitation des données. Premiers résultats. Rapport technique BRGM/RP-54253-FR, BRGM. 116 p. 31, 32, 248

Strandberg, B., Van Bavel, B., Bergqvist, P., Broman, D., Ishaq, R., Naf, C., Pettersen, H. et Rappe, C. (1998). Occurrence, sedimentation, and spatial variations of organochlorine contaminants in settling particulate matter and sediments in the northern part of the Baltic sea. *Environmental Science & Technology*, 32(12):1754–1759. 22

Syvitski, J. (2007). *Principles, Methods and Application of Particle Size Analysis*. Cambridge University Press. 99, 100, 101, 109

Thollet, F., Le Coz, J., Antoine, G., François, P., Saguintaah, L. et Launay, M.and Camenen, B. (2013). Influence de la granulométrie des particules sur la mesure de turbidité et le calcul des flux sédimentaires. *In Conférence SHF Hydrométrie 2013, 15-16 mai 2013, Paris, France*, page 9 p. xxi, 4, 45, 75, 87, 88, 129

Thomassin, J. et Touzé, S. (2003). Le mercure et ses composés. Comportement dans les sols, les eaux et les boues de sédiments. Brgm/rp-51890-fr, BRGM. 119 p. 10, 11, 12, 14, 248

Toma, A., Hubert, P. et Meybeck, M. (1996). Estimation des flux de matière dans les rivières. Biais et précision des méthodes d'interpolation. *In* Unesco (Editeur), T., éditeur : *Renc. Hydrologiques Franco-Roumaines*, volume 1, pages pp. 91–98. 61

Tronczynski, J. (2005). *Analyse des contaminants organiques (PCB, OCP, HAP) dans les sédiments marins*. Méthodes d'analyse en milieu marin. Programme scientifique Seine-Aval. 325

Tronczynski, J. et Héas-Moisan, K. (1996). Evaluation des charges polluantes du Rhône à la Méditerranée. contaminants organiques organoazotés et organochlorés dissous et particulaires dans le Rhône. Suivi annuel juin 1994 - août 1995 à Arles : niveaux des concentrations et évaluation des flux bruts du Rhône à la Méditerranée. Rapport technique, Ifremer. 103 p. 7, 19, 20, 21, 22, 23, 29, 33, 47, 67, 68, 212, 233, 249

Tronczynski, J., Munschy, C. et Moisan, K. (1999). *Les contaminants organiques qui laissent des traces. Sources, transport et devenir*. Programme scientifique Seine-Aval. Programme scientifique Seine-Aval. 20, 40

Tronczynski, J. et Tixier, C. (2012). Apports rhodaniens et suivi atmosphérique des contaminants organiques persistants (PCB, PBDE, HAP, PCDD/F) dans le Golfe du Lion. Rapport technique, Ifremer. 68 p. 19, 20, 21, 22, 23, 29, 34, 47, 68, 234, 249

UNEP/MAP/MED (2003). Pol : Riverine transport of water, sediments and pollutants to the Mediterranean sea. MAP Technical Reports Series No. 141, UNEP/MAP, Athens. 121 p. 7, 9, 11, 14, 15, 19, 24, 27, 31, 248

UNEP/MAP/MED (2005). Pol : Transboundary diagnostic analysis (TDA) for the Mediterranean sea. Rapport technique, UNEP/MAP, Athens. 232 p. 10, 17, 19

USDI, éditeur (2006). *Erosion and sedimentation manual*. U.S. Dept. of the Interior, Bureau of Reclamation, Technical Service Center, Sedimentation and River Hydraulics Group. xix, xx, 243, 386, 387

USEPA (2007). 7473 : Mercury in solids and solutions by thermal decomposition, amalgamation, and atomic absorption spectrophotometry. 17 p. 103

Verhoff, F., Yaksich, S. et Melfi, D. (1980). River nutrient and chemical-transport estimation. *Journal of Environmental Engineering Division-ASCE*, 106(3):591–608. 53, 56

Vernet, J.-P. et Scolari, G. (1976). Etude de la pollution des sediments du Léman et du bassin du Rhône. *Comm. Inter. pour la Protection des Eaux du Lac Léman contre la Pollution. Geneva*, pages 247–321. 32

Visher, G. S. (1969). Grain size distributions and depositional processes. *Journal of Sedimentary Petrology*, 39(3): 1074–1106. 107

Vongvixay, A. (2012). *Mesure et analyse de la dynamique temporelle des flux solides dans les petits bassins versants. Cas d'un bassin versant agricole en région d'élevage (Le Moulinet, Basse-Normandie, France) – Measurement and analysis of the temporal dynamics of solid fluxes in small watersheds. Case of an agricultural watershed in breeding area (Le Moulinet, Lower Normandy, France).* Thèse de doctorat, INSA de Rennes. 205 p. 4, 44, 76, 87

Walling, D. (1977). Assessing accuracy of suspended sediment rating curves for a small basin. *Water Resources Research*, 13(3):530–538. 45, 54, 56, 189, 190

Walling, D. (1983). The sediment delivery problem. *Journal of Hydrology*, 65(1-3):209–237. 56, 57

Walling, D. (1988). Erosion and sediment yield research – Some recent perspectives. *Journal of Hydrology*, 100(1-3):113–141. 188

Walling, D., Owens, P., Carter, J., Leeks, G., Lewis, S., Meharg, A. et Wright, J. (2003). Storage of sediment-associated nutrients and contaminants in river channel and floodplain systems. *Applied Geochemistry*, 18(2):195–220. 1, 23

Walling, D. et Webb, B. (1981). The reliability of suspended sediment load data (river Creedy, England). *International Association of Hydrological Sciences*, 133:177–194. 53, 54, 188

Walling, D. et Webb, B. (1985). Estimating the discharge of contaminants to coastal waters by rivers – Some cautionary comments. *Marine Pollution Bulletin*, 16(12):488–492. 3, 6, 46, 51, 52, 60, 63

Walling, D. et Webb, B. (1988). The reliability of rating curve estimates of suspended sediment yield : Some further comments. *In Sediment Budgets, Bordas MP Walling DE (eds). IAHS Publication*, 174:337-350. 54, 62, 63

Windom, H. L., Schropp, S. J., Calder, F. D., Ryan, J. D., Smith, R. G., Burney, L. C., Lewis, F. G. et Rawlinson, C. H. (1989). Natural trace metal concentrations in estuarine and coastal marine sediments of the southeastern United States. *Environmental Science & Technology*, 23(3):314–320. 48, 49

Wishmeier, W. et Smith, D. (1978). *Predicting rainfall erosion losses : A guide to conservation planning – Agricultural Handbook 537*. USDA. 57

Wren, D., Barkdoll, B., Kuhnle, R. et Derrow, R. (2000). Field techniques for suspended-sediment measurement. *Journal of Hydraulic Engineering-ASCE*, 126(2):97–104. 62, 82, 86

WWF (2007). Pollution du Rhône au PCB – un Tchernobyl à la française. Rapport technique. 12 p. 33

Zhou, J., Fileman, T., House, W., Long, J., Mantoura, R., Meharg, A., Osborn, D. et Wright, J. (1998). Fluxes of organic contaminants from the river catchment into, through and out of the Humber estuary, UK. *Marine Pollution Bulletin*, 37(3-7):330–342. 23

Annexes

A Les PCB

A.1 Propriétés physico-chimiques des 7 PCB indicateurs

PCB	n ° CAS	Nom	Log Kow* pour 25 ° C
28	7012-37-5	2,4,4'-Trichlorobiphényle	5,62
52	35693-99-3	2,2',5,5'-Tétrachlorobiphényle	6,09
101	37680-73-2	2,2',4,5,5'-Pentachlorobiphényle	6,80
118	31508-00-6	2,3',4,4',5-Pentachlorobiphényle	7,12
138	35065-28-2	2,2',3,4,4',5'-Hexachlorobiphényle	7,44
153	35065-27-1	2,2',4,4',5,5'-Hexachlorobiphényle	7,75
180	35065-29-3	2,2',3,4,4',5,5'-Heptachlorobiphényle	8,27

Tableau A.1 – Source : http ://chem.sis.nlm.nih.gov/chemidplus/chemidlite.jsp

A.2 Teneurs en PCB dans les sédiments

Tableau A.2 – Quelques concentrations maximales de PCB totaux dans les sédiments extrait de Brunet (2007)

			PCB totaux ng/g Mat. Sèche		
Valeurs seuil	Arrêté 14/06/2000 (niv. 1 / 2) RIVM – Risque sérieux CEP Canada - Conc. effet		500 / 1000 3400 277		
Pays	Fleuve	Année	Min.	Moy.	Max.
Etats-Unis	Housatonic	Vers 1990	54 000 000,00	-	104 000 000,00
Etats-Unis	Hudson	2003	-	-	50 000,00
France	Seine	1997	50,00	-	26 000,00
France	Seine	1987	50,00	3 800,00	12 000,00
Espagne	Ebro	1999	5,00	14,13	1 772,00
Italie	Tibre	1976	28,00	229,25	770,00
Belgique	-	2006	16,00	360,00	509,00
Belgique	Escaut	2005	105,00	220,94	400,00
Italie	Arrone	1996	11,00	93,00	196,00
Italie	Po	2000	10,00	55,00	126,00
Chine	Er Jen	2004	2,00	22,00	55,00
Royaume-Uni	Mersey (estuaire)	1994	0,08	3,94	37,88
Égypte	Nil	2003-2004	0,32	1,93	7,89

B Protocoles de l'observatoire des sédiments du Rhône (OSR)

B.1 Nomenclature des échantillons

Nomenclature des échantillons de l'OSR

Nous proposons ici un système d'identification des échantillons afin de faciliter les échanges et d'assurer une traçabilité des échantillons de MES prélevés sur le Rhône et ses affluents par l'OSR.

L'étiquettage des échantillons à inscrire *impérativement sur chaque échantillon au marqueur indélébile est de la forme suivante :*

LLL-MMM-DDDDDD
Heure d'échantillonnage et numéro de flacon/nombre total de flacons pour l'échantillon

LLL : 3 lettres pour le lieu de prélèvement (cf liste lieux ci-dessous)
MMM : 3 lettres pour le matériel de prélèvement utilisé (cf liste matériel ci-dessous)
DDDDDD : 6 chiffres pour la date : deux premières lettres pour l'année, deux suivantes pour le mois, deux suivantes pour le jour

Exemple de code : JON-PAF-110119 10h00 1/2
ce qui signifie que le prélèvement a été fait à JONS, avec le préleveur automatique fixe, le 19 janvier 2011 à 10h00, et qu'il s'agit du 1er flacon sur les deux que comporte l'échantillon.

Liste des lieux:

L'aigue	AIG
Ain	AIN
Rhône à Saint Alban	ALB
Ardèche	ARD
Rhône à Arles	ARL
Arve	ARV
Rhône a Barcarin	BAR
Rhône à Brégnier-Cordon	BCO
Bourbre	BOU
Ardèche à Barutel*	BRT
Rhône à Bugey	BUG
Cèze	CEZ
Rhône à Champagneux	CHA
Canal de Jonage	CJO
Canal de Miribel	CMI
Rhône à Creys-Malville	CRE
Rhône à Cruas-Meysse	CRU
Canal de Savière	CSA
Drôme	DRO
Durance	DUR
L'eyrieux	EYR
Fier	FIE
Gardon d'Alès	GAA

Gardon d'Anduze	GAN
Gard	GAR
Le Chassezac à Gravières*	GRV
Guiers	GUI
Gier	GIE
Isère	ISE
Jaujac*	JJC
Rhône à Jons	JON
Lez	LEZ
Ouvèze	OUV
Pont-de-Labeaume*	PDL
Rhône à Pougny	POU
Rhône au Pont Pasteur	PPA
Roubion*	ROU
Rosières*	RSR
Ruoms la Bigournette*	RUO
Saône	SAO
Séran	SER
Rhône à Seyssel	SEY
Rhône à Tournon	TOU
Rhône à Ternay rive droite	TRD
Rhône à Tricastin	TRI
Rhône à Ternay rive gauche	TRG
Ucel*	UCL
Les Usses	USS
Rhône à Valence	VAL
Ardèche à Vogüé*	VAR
Ardèche à Vallon*	VAO
Auzon à Vogüé*	VAZ
Rhône à Vallabrègues	VLB
Vals*	VLS
Rhône à Vieux-Rhône amont (station Véolia)	VRA
Rhône à Vieux-Rhône aval (pont des gardes)	VRV

* Projet Flood Scale

Liste du matériel de prélèvement :

Préleveur automatique fixe Bühler	PAF
Centrifugeuse mobile	CMO
Trappe à sédiments	TAS
Système de filtration Millipore	MIL
Prélèvement manuel	MAN
Centrifugeuse fixe	CFI
Préleveur automatique Sigma	SIG
Système de filtration à cartouche	SFC
Laisses de crues	LAI
Hydrocollecteur	HYD
Pycnomètre	PYC

B.2 Protocole d'utilisation de la centrifugeuse mobile Westfalia KA 2-86-075 Année 1978

CENTRIFUGEUSE MOBILE

Protocole d' échantillonnage

MATERIEL A PREPARER

- Préparer une (des) glacière(s) : glacières rangées dans le laboratoire chimie-micropolluants et pains de glace dans le congélateur le plus à droite à côté des glacières.

- Composants du bol de la centrifugeuse, pelle Téflon et spatule silicone téflonnée (s'assurer que le matériel a été préalablement nettoyé selon protocole indiqué plus bas) : rangés dans la caisse blanche dans le couloir longeant le laboratoire chimie-micropolluants.

- Gants nitrile, marqueur indélébile, sac poubelle, pissette d'eau déminéralisée.

« Glacières et pains de glace »

« Composants du bol de la centrifugeuse »

« Pelle Téflon et spatules téflonnées»

- Flacons à préparer :

> 2-3 flacons en verre ambré (rangés dans laboratoire chimie-micropolluants), y coller une étiquette.

> 1 flacon plastique (placard à gauche dans couloir avant passerelle / clé « Micropol » dans placard en face de mon bureau), y coller une étiquette.

> *En cas de suivi en crue* prévoir un flacon supplémentaire de 250 ml en HDPE (rangé dans placard à gauche dans couloir avant passerelle).

« Flacon en verre ambré à étiqueter – placard de rangement »

« Flacon en plastique à étiqueter – placard de rangement et localisation de la clé du placard »

« Flacon HDPE 250 ml à prévoir en cas de suivi en crue »

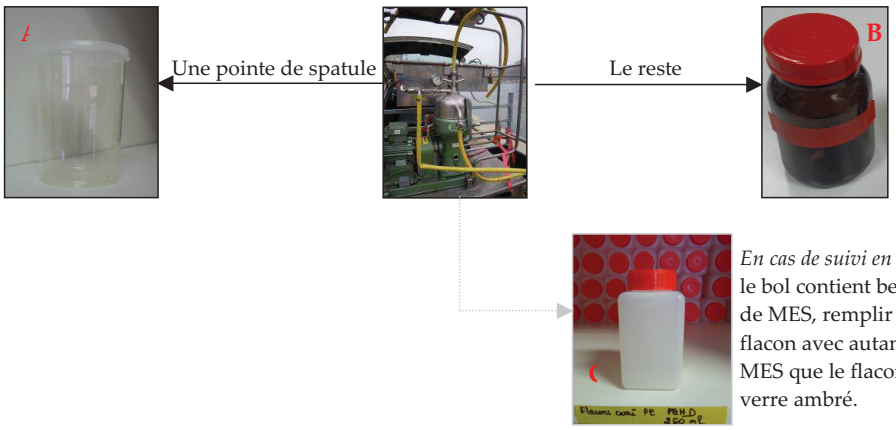
Cemagref
Sciences, eaux & territoires

SUR LE TERRAIN

Cf notice d'utilisation de la centrifugeuse mobile.

PORT DE GANTS EN NITRILE PROPRES POUR TOUTE MANIPULATION DU BOL DE LA CENTRIFUGEUSE ET POUR LA RECUPERATION DE L'ECHANTILLON .

- Récupérer les MES contenues dans le bol de la centrifugeuse, à l'aide d'une pelle Téflon ou d'une spatule silicone préalablement téflonnée, et les transférer dans les différents flacons :



En cas de suivi en crue : si le bol contient beaucoup de MES, remplir ce flacon avec autant de MES que le flacon en verre ambré.

Remarque : ne pas remplir les flacons à plus de 50% pour éviter leur éclatement lors de l'entreposage au congélateur. Si besoin transférer l'échantillon dans plusieurs flacons (noter le nombre total de flacons !).

- Indiquer le nom de l'échantillon sur l'étiquette (marqueur indélébile) conformément à la nomenclature.
- Remplir le cahier de suivi de la centrifugeuse mobile.
- Placer le(s) flacon(s) dans la glacière.

DE RETOUR AU CEMAGREF

- Reporter dans le fichier Excel « OSR_Résulats » (hhmet) le nom des échantillons prélevés (hors échantillon A).

- Entreposer le(s) flacon(s) B (et C) dans le congélateur situé au sous-sol du bâtiment Saône et le flacon A dans le réfrigérateur du local HH.

- Nettoyer le matériel (composants du bol de la centrifugeuse, pelle Téflon et spatule téflonnée) selon le protocole suivant :

a) Rinçage grossier à l'eau du robinet et avec du sopalin.

b) Lavage à la machine à laver du laboratoire chimie-micropolluants (*programme n°3*) :

b-1) nettoyage au détergent ;
b-2) rinçage au neutralisant (acide acétique à 80% dilué à 50% avant utilisation) ;
b-3) rinçage à l'eau déminéralisée ;
b-4) Séchage.

c) Transférer la vaisselle ainsi nettoyée dans le bac « vaisselle propre à rincer » et placer le tout sous la hotte aspirante dédiée au nettoyage de la vaisselle jusqu'à séchage total.
d) Rinçage à l'acétone de la vaisselle (pissette d'acétone sous la hotte – jeter le solvant souillé dans les flacons en verre prévus à cet effet).
e) Entreposer la vaisselle ainsi rincée à l'acétone dans le bac « vaisselle propre à ranger » et placer le tout sous la même hotte aspirante jusqu'à séchage total.
d) Envelopper les spatules/pelles dans du papier aluminium et ranger le bol de la centrifugeuse dans le carton prévu à cet effet puis déposer le tout dans la caisse blanche (couloir le long du laboratoire chimie-micropolluants).

PORT DE GANTS EN NITRILE PROPRES LORS DES ETAPES DE NETTOYAGE DU MATERIEL.

« Machine à laver.»

« Flacon de récupération de l'acétone utilisé pour rincer la vaisselle »

« Pissette d'acétone.»

« Ne pas utiliser les pissettes d'acétone à bouchon rouge pour rincer la vaisselle»

« Zone de rangement des différents bacs à utiliser pour entreposer la vaisselle»

« Hotte dédiée au nettoyage de la vaisselle.»

B.3 Protocole d'échantillonnage pour le piège à sédiments

TRAPPE A SEDIMENTS

Protocole d' échantillonnage

MATERIEL A PREPARER

- Préparer une (des) glacière(s) : glacières rangées dans le laboratoire chimie-micropolluants et pains de glace dans le congélateur le plus à droite à côté des glacières.

- Pelle Téflon et spatule silicone téflonnée (s'assurer que le matériel a été préalablement nettoyé selon protocole indiqué plus bas) : rangés dans la caisse blanche dans le couloir longeant le laboratoire chimie-micropolluants.

- Gants nitrile, marqueur indélébile, sac poubelle, pissette d'eau déminéralisée.

- Flacons :

> 1 bocal en verre type « confiture » (rangé dans un placard dans le couloir le long du laboratoire chimie-micropolluants / clé « Micropol » dans placard en face de mon bureau) et y coller une étiquette.

> 2 flacons en verre ambré (rangés dans laboratoire chimie-micropolluants), y coller une étiquette.

> 2 flacons plastique (placard à gauche dans couloir avant passerelle), y coller une étiquette.

> 2 flacons HDPE de 250 ml (rangés dans placard à gauche dans couloir avant passerelle). Y coller une étiquette et indiquer un petit M sur l'une, un petit R sur l'autre.

« Glacières et pains de glace »

« Pelle Téflon et spatules téflonnées»

« Localisation clé des placards »

« Bocal en verre avec étiquette »

« Placard de rangement des bocaux »

« Flacon en verre ambré à étiqueter – placard de rangement »

« Flacons en plastique à étiqueter – placard de rangement »

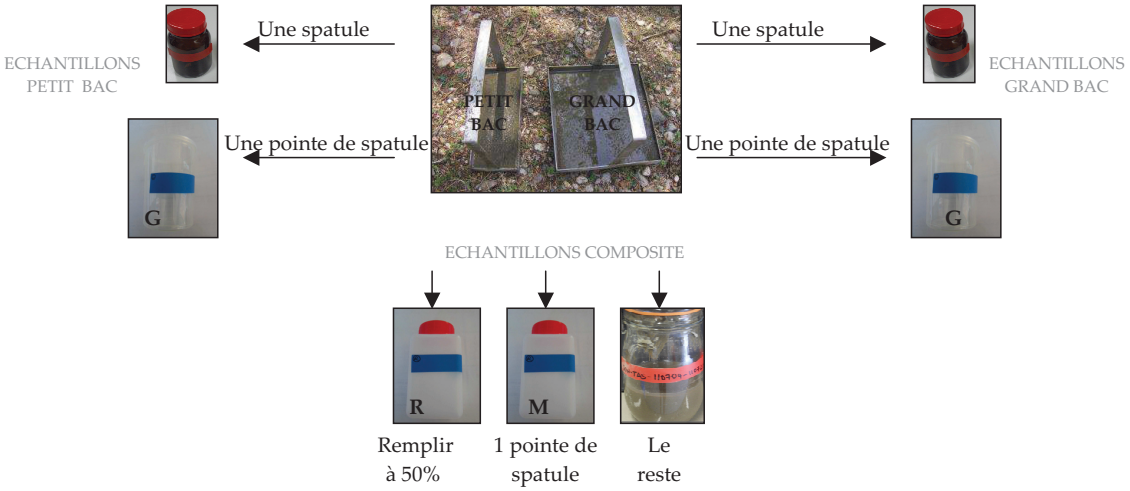
Cemagref
Sciences, eaux & territoires

SUR LE TERRAIN

Fermer le robinet d'arrivée d'eau de la trappe à sédiments.

PORT DE GANTS EN NITRILE PROPRES POUR TOUTE MANIPULATION DE L'ECHANTILLON .

- Par aspiration dans un tuyau prévu à cet effet, vider l'eau contenue dans la trappe.
- Sortir délicatement les « bacs » de la trappe.
- Récupérer les MES contenues dans la trappe à sédiments, à l'aide d'une pelle Téflon ou d'une spatule silicone préalablement téflonnée, et les transférer dans les flacons comme suit :



Remarque : ne pas remplir les flacons à plus de 50% pour éviter leur éclatement lors de l'entreposage au congélateur.

- Indiquer le nom de l'échantillon sur l'étiquette conformément à la nomenclature (*préciser, lorsqu'il ne s'agit pas d'un échantillon composite, la provenance (petit bac ou grand bac)*) .
- Remplir le cahier de suivi de la trappe à sédiments.
- Placer les flacons dans la glacière.
- Rouvrir le robinet d'arrivée d'eau de la trappe.

DE RETOUR AU CEMAGREF

- Transférer les MES récoltées dans le grand bocal en verre type « confiture » dans un nombre approprié de flacons en verre ambré et reporter le nom de l'échantillon sur l'étiquette (en n'oubliant

pas de reporter le nombre total de flacons dans le code échantillon).

- Reporter dans le fichier Excel « OSR_Résulats » (hhmet) le nom des échantillons prélevés (hors échantillons G).

Exemple :
JON-TAS-110920-111003 1/1 petit bac
JON-TAS-110920-111003 1/1 grand bac
JON-TAS-110920-111003 1/1 (préciser « radionucléides » dans colonne 2 du tableau)
JON-TAS-110920-111003 1/1 (préciser « métaux » dans colonne 2 du tableau)
JON-TAS-110920-111003 1/2
JON-TAS-110920-111003 2/2

Remarque : les deux derniers échantillons sont des échantillons composites qui ont été transférés dans deux flacons en verre ambré de retour au Cemagref à partir du bocal en verre type « confiture ».

- Entreposer tous ces flacons au congélateur (sous-sol bâtiment Saône) et les flacons en plastique « G » dans le réfrigérateur du local HH.

- Nettoyer le matériel (bocaux en verre, pelle Téflon et spatule téflonnée) selon le protocole suivant :

a) Rinçage grossier à l'eau du robinet et avec du sopalin.

b) Lavage à la machine à laver du laboratoire chimie-micropolluants (*programme n°3*) :

b-1) nettoyage au détergent ;
b-2) rinçage au neutralisant (acide acétique à 80% dilué à 50% avant utilisation) ;
b-3) rinçage à l'eau déminéralisée ;
b-4) Séchage.

c) Transférer la vaisselle ainsi nettoyée dans le bac « vaisselle propre à rincer » et placer le tout sous la hotte aspirante dédiée au nettoyage de la vaisselle jusqu'à séchage total.
d) Rinçage à l'acétone de la vaisselle (pissette d'acétone sous la hotte – jeter le solvant souillé dans les flacons en verre prévus à cet effet).
e) Entreposer la vaisselle ainsi rincée à l'acétone dans le bac « vaisselle propre à ranger » et placer le tout sous la même hotte aspirante jusqu'à séchage total.
d) Envelopper les spatules/pelles dans du papier aluminium et les déposer dans la caisse blanche située dans le couloir le long du labo. Ranger les bocaux en verre dans le placard correspondant.

PORT DE GANTS EN NITRILE PROPRES LORS DES ETAPES DE NETTOYAGE DU MATERIEL.

« Machine à laver.»

« Flacon de récupération de l'acétone utilisé pour rincer la vaisselle »

« Pissette d'acétone.»

« Ne pas utiliser les pissettes d'acétone à bouchon rouge pour rincer la vaisselle»

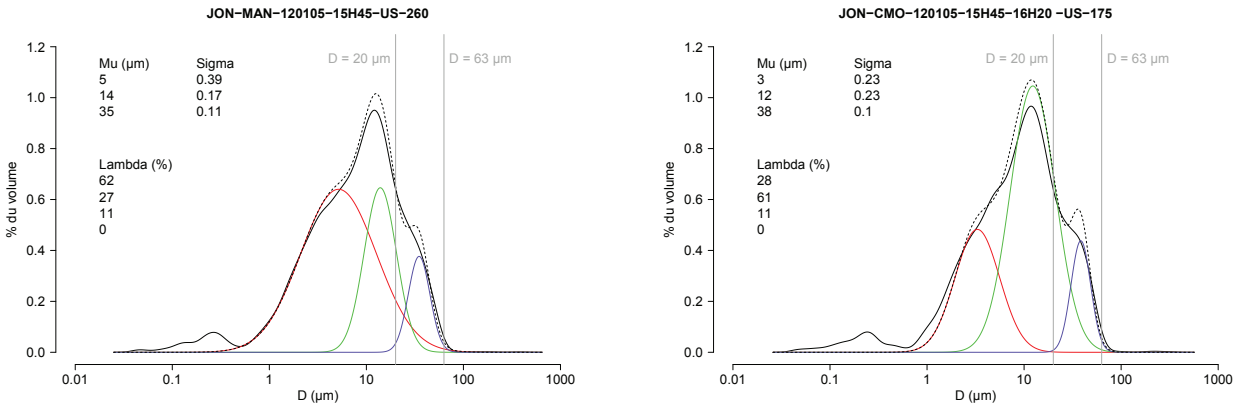
« Zone de rangement des différents bacs à utiliser pour entreposer la vaisselle»

« Hotte dédiée au nettoyage de la vaisselle.»

C Comparaison des distributions granulométriques volumiques d'échantillons prélevées manuellement et avec la centrifugeuse mobile Westfalia à Jons

Les distributions granulométriques volumiques d'échantillons prélevées manuellement et avec la centrifugeuse mobile Westfalia à Jons le 05/01/2012 sont présentées sur la Fig. C.1. L'identification des quatre sous-populations granulométriques 1-10 μm, 10-27 μm, 27-80 μm et 80-2500 μm a été réalisée selon la méthode décrite au §2.2.3.2. Les deux échantillons sont composés de particules appartenant aux mêmes sous-populations 1-10 mum, 10-27 mum et 27-80 mum et ne contiennent pas de particules de diamètre supérieur à 80 mum. Cependant, l'échantillon prélevé avec la centrifugeuse (Fig. C.1b) contient seulement 28 % de particules de la sous-population 1-10 mum, contre 62 % pour l'échantillon manuel.

Nous avons comparé les distributions granulométriques des 43 échantillons manuels et des 50 échantillons issus de centrifugation prélevés à Jons entre 2011 et 2013. La Fig. C.2 confirme qu'aucune particule supérieure à 80 mum n'est échantillonnée avec ces deux techniques. L'utilisation d'un test de Mann-Whitney-Wilcoxon montre qu'il n'y a pas de différence significative de mode pour la sous-population granulométrique 27-80 mum, mais qu'une différence significative existe entre les modes des sous-populations 1-10 mum et 10-27 mum échantillonnées par les deux techniques. Cependant, les modes granulométriques identifiés restent dans la fourchette considérée pour l'appartenance à chaque sous-population granulométrique.



(a) (b)

FIGURE C.1 – Distributions granulométriques volumiques des échantillons prélevés à Jons le 05/01/2012 : manuellement (a) et avec la centrifugeuse de terrain Westfalia KA 2-86-075 Année 1978 (b)

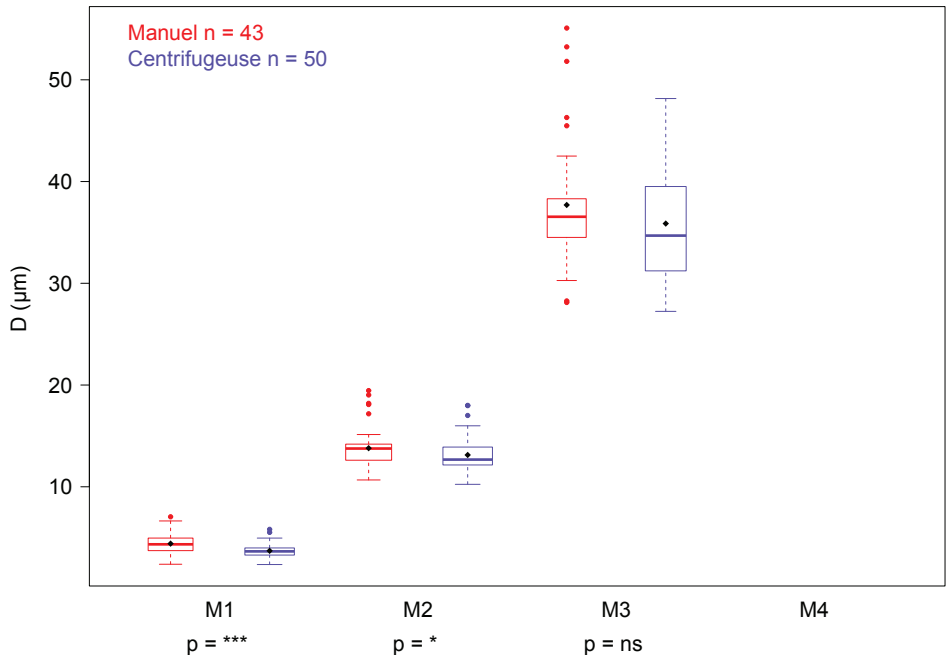


FIGURE C.2 – Modes des quatre sous-populations granulométriques volumiques 1-10 μm, 10-27 μm, 27-80 μm et 80-2500 μm pour les n échantillons prélevés manuellement et à la centrifugeuse dans le Rhône à Jons. P-value des tests de Mann-Whitney-Wilcoxon appliqués aux modes granulométriques des sous-populations obtenues par les deux moyens de prélèvement.

L'application d'un test de Mann-Whitney-Wilcoxon aux 43 paires d'échantillons de MES prélevés manuellement et à la centrifugeuse à Jons indiquent qu'il n'y a pas de différence significative entre les proportions (λ) des trois sous-populations granulométriques volumiques obtenues avec les deux

techniques de prélèvement (Tab. C.1).

Tableau C.1 – P-value du test de Mann-Whitney-Wilcoxon appliqué aux proportions (λ) des trois sous-populations granulométriques volumiques des paires d'échantillons de MES prélevés manuellement et à la centrifugeuse dans le Rhône à Jons.

	1-10 μm	10-27 μm	27-80 μm
p	ns	ns	ns

On peut en conclure que le prélèvement à la centrifugeuse en continu n'entraîne pas de différences significatives de la granulométrie des MES par rapport aux prélèvements manuels. Les échantillons issus de centrifugation peuvent donc être considérés comme représentatifs des MES qui circulent dans le cours d'eau au moment du prélèvement.

D Autres techniques de prélèvement des matières en suspension

D.1 Échantillonnage par préleveur automatique

L'échantillonnage automatique repose sur la programmation d'un automate qui déclenche le prélèvement en fonction soit du temps, soit d'un autre paramètre mesuré *in situ*. Dans le cas d'un suivi des crues, le paramètre de déclenchement du prélèvement peut être le niveau d'eau, le débit ou la turbidité. L'automate est alors programmé pour se déclencher lorsqu'un seuil de mise en route est dépassé et pour s'arrêter lorsque le paramètre est inférieur à un seuil d'arrêt, qui peut être plus faible que le seuil de mise en route.

Le préleveur automatique doit être installé dans une station de mesure et relié au capteur qui mesure le paramètre choisi pour l'asservissement. Un système de pompage et des tuyaux sont nécessaires pour amener l'eau depuis le cours d'eau jusqu'au préleveur.

Le risque de contamination des échantillons est lié aux matériaux qui composent la chaîne de prélèvement. Les tuyaux doivent être régulièrement nettoyés et changés. Le temps de stockage des échantillons dans le préleveur est également source de contamination. En utilisant des flacons en verre pour recevoir les échantillons, et en préférant un préleveur avec une partie réfrigérée pour les disposer, on limite les réactions chimiques entre le récipient et l'échantillon, les risques de dégradation de la matière organique ainsi que les échanges entre la phase solide et la phase liquide pendant le temps de stockage dans le préleveur.

Le prélèvement est effectué en un point unique de la section. L'intérêt de ce type d'équipement est de pouvoir constituer des échantillons ponctuels d'eau avec un pas de temps fin pendant les crues. Il est en effet possible de programmer un échantillonnage avec une fréquence adaptée à l'hydrologie, en asservissant le préleveur à la turbidité. Cependant, le problème du volume d'eau échantillonné pour obtenir les quelques dizaines de grammes de MES nécessaires aux analyses est le même que pour les échantillons manuels. La plupart du temps sur le Rhône, les concentrations ne sont pas

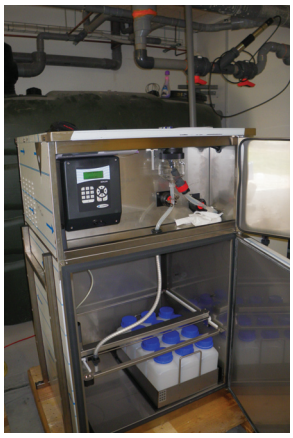


FIGURE D.1 – Préleveur automatique réfrigéré Bühler installé puis désinstallé dans la station de Jons

assez importantes pour collecter assez de MES avec un échantillon unique. La constitution d'échantillons composites décrite pour les échantillons manuels peut également être une solution pour les prélèvements automatiques. On obtient alors des échantillons intégrés sur la période de mesure.

La mise en œuvre de cette technique est chère. Un préleveur automatique réfrigéré coûte environ 15 k€ et il faut compter l'installation de pompage et le temps de personnel pour relever les échantillons. L'asservissement du préleveur au capteur requiert des connaissances en automatisme. Enfin, un important travail de conditionnement des échantillons est nécessaire au laboratoire. Les échantillons prélevés sont composés d'eau et de MES qui doivent être séparées avant l'analyse. Il faut faire décanter les échantillons, éliminer l'eau surnageante, puis transférer les MES dans des flacons en verre ambré, avant de les congeler et les lyophiliser.

Un préleveur automatique réfrigéré de marque Bühler a été installé à la station de Jons (Fig D.1). Il est connecté au réseau d'eau pompé en continu par la station de mesure de Jons et un système de prélèvement by-pass pour conduite en charge permet de réaliser des prises d'eau de 20 à 250 mL. Il est composé d'une armoire réfrigérée abritant 24 flacons de 2 L en verre. Le préleveur a été asservi au turbidimètre pour déclencher des prélèvements lorsque la turbidité dépasse le seuil de 150 NTU pour permettre un suivi précis des crues. Le programme prévoit, en cas de dépassement du seuil de turbidité, une prise d'échantillon de 50 mL toutes les 3 minutes. Un flacon de 2 L est donc rempli en 2 h, ce qui laisse 48 h pour remplacer les flacons pleins.

Ce système n'a malheureusement jamais fonctionné à cause, d'une part, des multiples problèmes techniques rencontrés (dysfonctionnement du bras de distribution, panne du réfrigérateur, mauvaise paramétrisation de l'automate pour l'asservissement) et, d'autre part, d'une mauvaise ergonomie du système. En effet, sur le Rhône, même en cas de forte crue, les concentrations en MES ne

sont pas assez importantes pour que des échantillons de 2 L fournissent assez de MES pour les analyses chimiques. Nous avons essayé de former des échantillons composites en mélangeant les flacons pour augmenter la quantité de MES, mais la séparation de l'eau et des MES (par filtration ou centrifugation) est alors très laborieuse, le volume d'eau étant important.

D.2 Échantillonnage avec un système de filtration grand volume

La filtration permet de séparer les phases liquide et solide d'un mélange en lui faisant traverser un milieu poreux. La phase liquide passe au travers du filtre, tandis que les particules solides dont le diamètre est supérieur au diamètre des pores, sont retenues sur et dans le filtre. Les particules doivent alors être séparées du filtre pour être analysées. Les filtres utilisés sont composés soit de fibres de verre (GF/F) avec un diamètre de pore de 0,7 μm soit de Téflon avec un diamètre de pore de 0,45 μm. Pour l'extraction des particules du filtre Téflon, l'USGS (Mahler et Van Metre, 2003) recommande de frotter le filtre avec un peu d'eau pour décoller les MES. Les filtres peuvent alors être réutilisés. Dans le cas de filtres en fibres de verre, l'extraction peut se faire soit par ultrasons soit en mettant directement le filtre dans la cellule d'extraction de l'extracteur accéléré par solvant (ASE). Dans les deux cas, ultrasons ou ASE, il faut que le filtre ait été nettoyé avant utilisation (calcination pendant 4h à 450 $^\circ$C).

Une pompe est utilisée pour amener l'eau depuis le cours d'eau jusqu'au système de filtration. Pour éviter une contamination des échantillons, le système de filtration et la pompe doivent être composés d'inox et de Téflon. Le prélèvement se fait en un point unique de la section et dure jusqu'à ce que le filtre soit colmaté, et la vitesse de colmatage dépend de la concentration en MES du cours d'eau. Mahler et Van Metre (2003) indiquent que ce système doit permettre de filtrer de 10 à 1 000 L d'eau en fonction de la concentration en MES. La mise en œuvre de cette technique de prélèvement *in situ* requiert un niveau technique assez élevé et le coût d'investissement est important. Le coût de fonctionnement comprend le prix des filtres, l'alimentation de la pompe, soit par un groupe électrogène, soit par des bouteilles de gaz comprimé, et le temps de personnel nécessaire à la mise en œuvre.

Nous inspirant des travaux de l'USGS présentés dans Mahler et Van Metre (2003) et de l'Ifremer (Chiffoleau *et al.*, 2003; Tronczynski, 2005), nous avons utilisé un système de filtration grand volume de marque Millipore (Fig. D.2). Le système de filtration est couplé à une pompe ASTI en Téflon pour pomper l'eau directement dans le cours d'eau. Les filtres utilisés sont soit en fibre de verre (diamètre des pores 0,7 μm et diamètre du filtre 298 mm) soit en PTFE (diamètre des pores 0,45 μm et diamètre du filtre 142 mm). En régime de base comme en cas d'écoulement chargé, les filtres colmataient très rapidement, sans toutefois fournir assez de matière pour réaliser les analyses

chimiques. Nous avons donc dû abandonner cette technique pour nos applications.

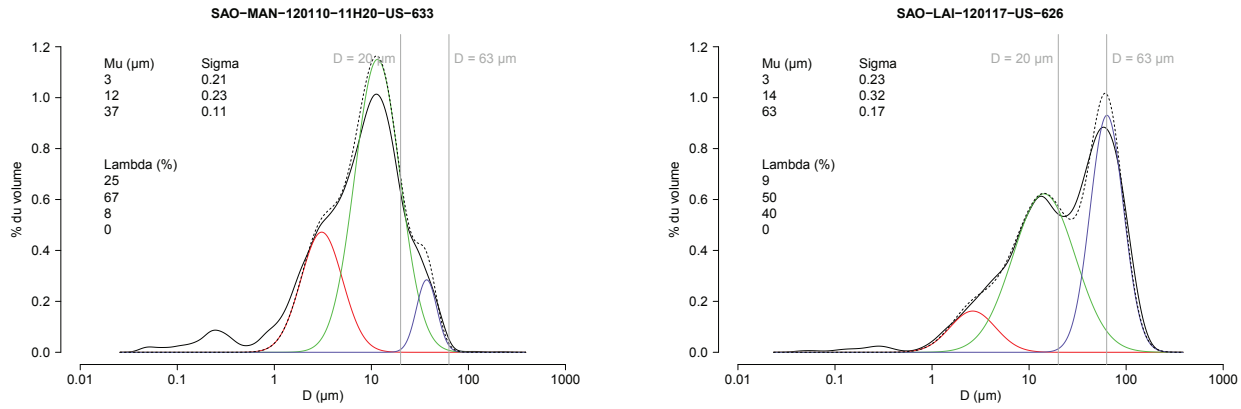
FIGURE D.2 – Système de filtration Millipore et pompe Asti testés puis abandonnés dans cette thèse

D.3 Echantillonnage des dépôts de crue

Après le passage d'une crue, lorsque la rivière a rejoint son lit, des dépôts de particules sont retrouvés dans les zones recouvertes par l'eau. La collecte et l'analyse des laisses de crues pour les contaminants métalliques est par exemple réalisée par le Piren-Seine depuis 1994 (Meybeck *et al.*, 2000).

Des sites "propres", c'est-à-dire vierges de sédiments et d'autres déchets, doivent être repérés avant la crue. Il peut s'agir de quais, de mises à l'eau pour bateau ou encore de digues. La collecte de ces dépôts présente l'avantage de fournir une grande quantité de particules et d'être facile à mettre en œuvre. Il s'agit simplement de collecter les particules déposées à l'aide d'une spatule ou d'une cuillère et de les mettre dans un flacon en verre, juste après le retrait des eaux de la surface.

Comme pour les sédiments de fond, les particules collectées par cette techniques sont différentes des MES du point de vue de la granulométrie. Les distributions granulométriques de deux échantillons prélevés manuellement dans le cours d'eau (a) et dans les dépôts de crue (b) lors de la crue de janvier 2012 sur la Saône à Lyon sont présentées sur la Fig. D.3. Dans le dépôt de crue (b), les particules les plus grossières ont un mode granulométrique à 63 μm et représentent 40% de l'échantillon ; tandis que dans l'échantillon pris dans le cours d'eau (a) les particules les plus grossières ont un mode plus fin à 37 μm et ne représentent que 7% de l'échantillon. Les particules les plus fines (mode inférieur à 10 mum) sont beaucoup moins représentées dans l'échantillon de dépôt de crue :



(a) (b)

FIGURE D.3 – Distributions granulométriques des échantillons prélevés lors de la crue de la Saône à Lyon en janvier 2012 : (a) manuellement dans le cours d'eau le 10/01/12 et (b) dans les dépôts de crues le 17/01/12

10% contre 35%. L'échantillonnage des laisses de crue ne permet donc pas d'obtenir un échantillon représentatif des MES qui circulent dans le cours d'eau.

Des réserves peuvent également être émises quant à la représentativité spatiale et temporelle de ces échantillons. Il est difficile de savoir de quelle période ces dépôts sont représentatifs. Pour que les particules se déposent, il faut des vitesses faibles et on peut considérer que les dépôts se forment plutôt pendant la décrue, mais sans savoir à partir de quel moment. Ils peuvent être remobilisés si les vitesses augmentent à nouveau.

D.4 Sédiments superficiels

Cette technique n'a pas été mise en œuvre par Irstea, mais par l'agence de l'eau Rhône-Méditerranée-Corse (AERMC). Depuis la DCE (E.C., 2000), le suivi des teneurs en contaminants des sédiments de fond est une exigence réglementaire appliquée par les agences de l'eau. L'Agence de l'eau Loire Bretagne (2006) et Schiavone et Coquery (2009) ont comparé les pratiques de prélèvement des différentes agences exposées dans les cahiers des clauses techniques particulières (CCTP) pour la période 2008 à 2013 et ont proposé des recommandations opérationnelles pour harmoniser le suivi.

Le principe général de ces prélèvements est de collecter la couche superficielle de sédiments, qui correspond en général aux 5-10 premiers cm d'épaisseur déposés sur le fond du lit. Les dragues manuelles de type Cemagref, les bennes de type Eckmann et les carottiers sont les appareils de prélèvement les plus utilisés. Ils sont généralement fabriqués en métal et conviennent donc pour la collecte de sédiments pour l'analyse de contaminants organiques. Pour les analyses de métaux traces,

il faut veiller à prélever au centre du dispositif en évitant de collecter les sédiments en contact avec les parois. Pour obtenir un échantillon, il est recommandé d'effectuer trois prélèvements dans la section, au centre et sur les deux rives (Agence de l'eau Loire Bretagne, 2006). Les trois prélèvements sont regroupés et homogénéisés pour former un échantillon composite, représentatif de la section. Cette représentativité spatiale est toutefois discutable (forte hétérogénéité de répartition). L'échantillon est ensuite tamisé à 2 mm.

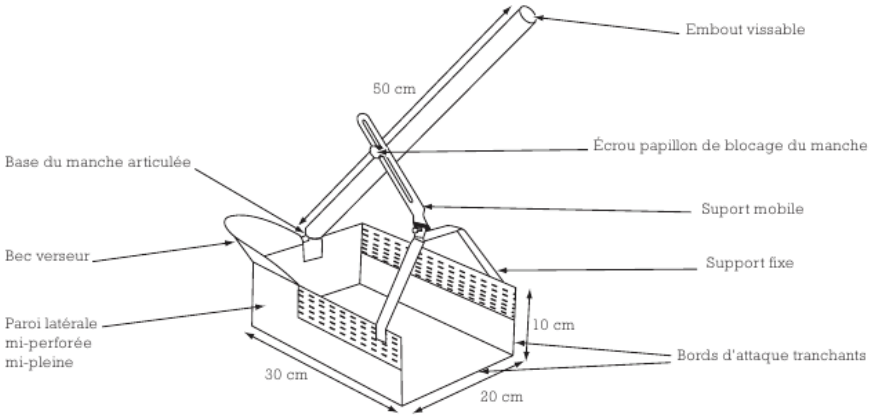


FIGURE D.4 – Benne de type Cemagref utilisée pour les prélèvements de sédiments de fond

La difficulté technique de réalisation des prélèvements réside principalement dans la manipulation de l'outil de prélèvement et dans l'homogénéisation des échantillons. Dans le cas de grandes profondeurs, l'utilisation d'un bateau peut être nécessaire. Le coût de ces prélèvements doit prendre en compte l'achat du matériel de prélèvement, très variable, et le temps de personnel pour effectuer le prélèvement. Les Agences de l'eau effectuent en général un prélèvement par an en fin d'étiage. Pour réaliser ses prélèvements de sédiments du fond, l'AERMC utilise une benne de type Eckman ou Petersen pour les grandes profondeurs, ou une drague manuelle de type Cemagref (Cf. Fig. D.4) pour les petites profondeurs.

Les particules collectées par ces systèmes sont celles qui se sont déposées sur le fond du lit, ce qui regroupe des MES décantées, des sables et des particules plus grossières qui se déplacent par charriage. La comparaison des teneurs en contaminants de ces échantillons avec les teneurs sur les MES doit donc tenir compte de cette différence de populations granulométriques échantillonnées. Pour cela, une correction telle que celle décrite au §2.4.2 peut être utilisée.

D.5 Carottes stratigraphiques

Le carottage consiste à prélever un volume, souvent cylindrique, de sédiment en enfonçant verticalement un tube creux dans le sédiment à l'aide d'un carottier. La conservation de l'intégrité et de la position des différentes couches qui composent le sédiment permet de constituer une archive sédimentaire des dépôts au niveau du point de prélèvement. Pour effectuer une analyse historique des teneurs en contaminants, le carottage doit se faire dans une zone de décantation régulière des sédiments qui n'a pas connu de remaniement des dépôts. Pour un même taux de sédimentation, plus la carotte est longue, plus l'analyse peut porter sur une longue période de temps. Il faut donc trouver un site où le substratum rocheux ou graveleux est suffisamment profond pour enfoncer le tube sans l'atteindre. Enfin, le sédiment doit être suffisamment meuble pour permettre d'enfoncer le tube et suffisamment dur pour ne pas se déformer lors du prélèvement. Peu de sites sur le Rhône répondent à ces critères, c'est notamment le cas de quelques annexes fluviales sur le Rhône, telles que la lône de la Morte, la retenue du Grand Large, la darse de Crépieux et la lône de l'Ile-du-Beurre dans lesquelles l'ENTPE a prélevé des carottes entre 2008 et 2009 (Desmet *et al.*, 2012). Deux carottes ont également été prélevées dans le Rhône aval dans le cadre de l'OSR (Piégay et *et al.*, 2008).

A l'ENTPE, les carottes prélevées sont coupées en deux dans la longueur. Une moitié est archivée dans une carothèque, l'autre moitié est datée et analysée. La datation de la carotte consiste à rechercher dans les différentes couches de sédiments des paramètres renseignant sur leur âge (Robbe *et al.*, 1983). L'observation des caractéristiques physiques du sédiment, telles que la granulométrie, permet par exemple d'identifier les événements météorologiques majeurs, tels que les fortes crues. La recherche de radio-isotopes d'origine naturelle ou artificielle dont on connaît la proportion dans l'environnement et la façon dont ils varient au cours du temps est également utilisée pour dater les carottes (Robbe *et al.*, 1983).

Une fois datées, les carottes sédimentaires permettent d'obtenir un historique de la contamination au niveau du point du prélèvement. Cependant, la représentativité spatiale de ces échantillons reste limitée au point de prélèvement. En effet, la généralisation spatiale de l'information historique obtenue au niveau d'une carotte peut être compromise par l'hétérogénéité des processus de dépôt des sédiments sur le fond.

Comme pour les prélèvements de sédiments de fond ou les dépôts de crue, les carottes sédimentaires sont constituées de particules hétérogènes qui ne correspondent pas uniquement aux MES qui se déplacent dans la colonne d'eau. Une analyse comparée de la granulométrie des MES et des particules dans les carottes est nécessaire pour permettre une comparaison des teneurs en contaminants entre les deux compartiments et l'analyse des flux amont et de leur distribution dans le réseau.

Le matériel nécessaire pour le prélèvement et la datation des carottes sédimentaire est important et coûteux et la technicité requise est élevée. Cependant le carottage reste la seule technique perme-

ttant d'obtenir une information sur l'évolution sur plusieurs années des taux de contamination des sédiments d'un cours d'eau.

Les protocoles de prélèvement et de datation utilisés par l'ENTPE pour effectuer les carottes sur le Haut-Rhône sont détaillés dans le rapport de Clerc (2008) et dans Desmet *et al.* (2012). Pour chaque site, quatre carottes ont été prélevées manuellement avec un carottier UWITEC. Leur taille varie de 50 à 100 cm. La datation des carottes a été réalisée par analyse sédimentologique (granulométrie et susceptibilité magnétique) et géochimique (^{210}Pb). L'analyse des teneurs en PCB des différentes couches datées de sédiments permet de reconstituer un historique de la contamination au cours des dernières décennies.

E Representativeness of contaminant contents in suspended solids collected in rivers using integrative sediment traps, article en préparation

Angot, H., Launay, M., Sabot, P., Le Coz, J. et Coquery,M. (2013).

Representativeness of contaminant contents in suspended solids collected in rivers using integrative sediment traps.

En préparation, pour soumission dans Environmental Pollution

Representativeness of contaminant contents in suspended solids collected in rivers using integrative sediment traps

H. Angot[1], M. Launay[1, 2], J. Le Coz[2], P. Sabot[1] and M. Coquery[1, *]

[1] Irstea – UR MALY– Freshwater Systems Ecology and Pollution Research Unit, 5 rue de la Doua – CS 70077, 69626 Villeurbanne, France

[2] Irstea – UR HHLY– Hydrology-Hydraulics Research Unit, 5 rue de la Doua – CS 70077, 69626 Villeurbanne, France

* Corresponding author: Tel: 00 33 4 72 20 86 16; Fax: 00 33 4 78 47 78 75; Email address: marina.coquery@irstea.fr

Abstract

Sediment traps (STs) are cost-efficient devices used for the time-integrated sampling of suspended solids in rivers for environmental pollution monitoring. However, the representativeness of the collected particles under given exposure conditions (ECs) is not fully understood yet. A standardized model of ST was tested under various ECs and compared to reference sampling methods. Grain-size distributions showed that all particle sub-populations were captured by STs, but in possibly differing proportions: the finest and most organic-rich particles were systematically under-sampled, and an additional sandy mode may appear in STs exposed to near-bed suspension. We investigated the contents in some contrasted particulate micropollutants: polychlorobiphenyls, mercury and polycyclic aromatic hydrocarbons. Whereas no significant biases were observed under usual ECs, significantly lower contents were highlighted for STs exposed to coarse near-bed suspended particles. Simple bias-correction methods based on organic carbon content or grain-size distribution are applicable to ST samples to get reliable contaminant contents.

Capsule

Sediment traps provide potentially biased samples under certain exposure conditions, but simple bias-correction procedures can be successfully applied to get reliable micropollutants concentrations.

Keywords

Sediment trap; Suspended particulate matter; Rivers; Bias-correction; Micropollutants

Highlights

1- Samples representativeness is assessed under various exposure conditions

2- Samples collected with sediment traps are biased in grain-size and organic carbon content

3-Contamination of particles collected with sediment traps is potentially underestimated

4- Two bias-correction methods are tested for PCBs, mercury and PAHs, and discussed

5- Bias-correction to organic carbon content or grain-size give reliable contaminant contents

1. Introduction

As hydrophobic and lipophilic substances in rivers tend to preferentially accumulate in sediments, suspended particulate matter (SPM) or biota, sediments are recognised as secondary sources of contaminants and SPM - subject to transport, deposition and erosion - as the carrier (Schubert et al., 2012; Schulze et al., 2007). The European Union Water Framework Directive (WFD) (EC, 2000/60) aims at achieving the good ecological and chemical status of European water bodies by 2015 and encourages, together with the 1976 Barcelona Convention (UNEP, 1976), the contracting parties to evaluate pollution discharge to the Mediterranean Sea. The monitoring of SPM and particulate contaminant fluxes in rivers is therefore necessary through practically challenging. The Rhône River Sediment Observatory was created in 2009. Its purpose is to produce, compile and interpret data on sediment flux and storage in the Rhône River – from Lake Geneva to the Mediterranean Sea –, and to monitor contaminants associated with SPM. Within the Observatory, SPM monitoring techniques and procedures are tested, compared and applied routinely.

Various sampling techniques can be used to collect SPM for subsequent trace element analysis including filtration, decantation/sedimentation or flow-through centrifugation (Duinker et al., 1979; Gardner, 1980; Rees et al., 1991). These techniques have been discussed and compared by others (Ciffroy et al., 1999; Horowitz, 1986; Horowitz et al., 1989; Schubert et al., 2012). Sampling devices should match the following requirements: i) collection of an adequate quantity of sampled material for physico-chemical analyses, ii) collection of representative samples with respect to SPM in the river, and iii) collection of uncontaminated samples. Sediment traps are cost-efficient and easy to handle devices. A monitoring network can thus be spatially and temporally stretched out with sediment traps: numerous stations equipped, integrative-sampling over long periods of time, and therefore sampling of flood events, during which most of the fluxes occur. However, the representativeness of the

collected particles under given exposure conditions is recurrently questioned and is not fully understood yet. This question is the main obstacle to a wider use of sediment traps in river pollution monitoring programs.

In this study, 3 different sampling devices – a mobile continuous-flow centrifuge (CFC), a standardized model of sediment trap (ST), and time-integrative large volume water samplings followed by an off-site decantation step (LVWS) – were used in parallel under contrasted exposure conditions: wide range of suspended solids concentrations, of flow approach velocities, and various elevations of the sediment trap above river bottom. The first objective of this paper is thus to assess the physico-chemical representativeness of SPM collected in rivers using a ST under various exposure conditions compared to CFC and LVWS taken as unbiased reference sampling methods (URSMs). The key question is whether the use of sediment traps leads to biased SPM samples under various exposure conditions. Indeed, some studies showed that parameters such as grain-size distribution or organic carbon content in samples collected with a ST may differ from the SPM properties (Allan et al., 2009; Busch et al., 2006; Ciffroy et al., 1999; Pohlert et al., 2011; Schubert et al., 2012). Furthermore, contaminants have a strong affinity for fine particles (Duinker, 1986; Olsen et al., 1982; Piérard et al., 1996), due to an increasing specific area with decreasing grain size, and for organic rich particles (Karickhoff et al., 1979; Olsen et al., 1982). The use of a ST might therefore cause biases in the determination of contaminant content in SPM.

Tests were conducted on three substances of high environmental interest accumulating on SPM: mercury, polychlorobiphenyls (PCBs), and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs). PCBs have been identified as persistent organic pollutants (POPs) under the Stockholm Convention on POPs (UNEP, 2001) and a contamination of fish and sediment from the Rhône River has been reported from the 1980s (André and Lascombe, 1988). Since 2005 commercial fishing and consumption of selected species of fish are banned in the study area. Mercury and PAHs are listed as priority substances under the European Union WFD (EC, 2000/60).

The long term goals of a monitoring network can be: i) the acquisition of a temporal record of particulate contaminant concentrations, and ii) the calculation of particulate contaminant fluxes. Therefore, should samples collected with a ST be biased, the second objective of this study is to identity whether simple bias-correction procedures of contaminant contents acceptably apply. Several authors tried to correct trace element concentrations with organic carbon and/or grain-size (Birch and Taylor, 2000; Camacho-Ibar and McEvoy, 1996; Herut and Sandler, 2006; Kersten and Smedes, 2002; Klamer et al., 1990; Koelmans et al., 1997; Opel et al., 2011). This paper aims at testing a bias-correction procedure based on the use of unbiased reference data and organic carbon content or grain-size distribution.

2. Material and Methods

2.1 Sampling techniques

Concurrent techniques were employed to collect SPM in this study: continuous-flow centrifugation was undertaken to collect instantaneous samples and time-integrative sampling was achieved deploying in situ a ST. Whereas a ST can be deployed regardless of suspended solids concentrations (SSC) – the frequency at which the ST is emptied can vary –, it can be damaging to use a CFC under high SSC (> 1 g/L) (see Table 1). Thus, under high SSC time-integrative large volume water samplings were undertaken concurrently with the use of a ST. Technical information on the instruments and procedures used is provided in the following section.

Integrative sediment trap (ST): the sediment trap of the German Environmental Specimen Bank (ESB) served as a model (Schulze et al., 2007). A high quality stainless steel box (Grade 316 L) was exposed directly in the river (see Figure 1), set on bank stairs. Water flows through the 3 inlet and outlet openings, velocity decreases due to 2 baffles, and SPM

settle down into the 2 sedimentation basins. The ST was emptied at a frequency ranging from one day to 2 weeks depending on the SSC.

Mobile continuous-flow centrifuge (CFC): a Westphalia centrifuge was used, which comprises a stainless steel bowl, with a Teflon layer, made of 4 alternate bowls set one within the other. Water is pumped at a constant flow rate (approx. 1 m^3/h) during several hours and SPM settle down in the bowl of the centrifuge. The separation efficiency reaches 97% (Burrus et al., 1989).

Time-integrative large volume water sampling (LVWS): 4 L of surface water were collected every 4 hours using a stainless steel bucket. The 24 L of daily collected water were mixed in a 34 L glass demijohn and sent to the laboratory. After overnight decantation, supernatant water was cautiously siphoned off to minimise the loss of finer SPM.

The use of these 3 sampling techniques allowed the efficient collection of sufficient SPM for chemical analyses and characterisation of samples, i.e., grain-size distribution and organic carbon content. On the other hand, filtration did not give satisfactory results – insufficient quantity of SPM collected – and was thus not used in this study. CFC is a rather expensive technique that requires trained operators and heavy maintenance. Moreover, both CFC and LVWS require permanent attendance. As aforementioned, ST is a cost-efficient and easy to handle device but which potentially provides biased samples.

The use of inert materials (glass, Teflon, stainless steel) and a thorough cleaning step enabled the collection of contamination free samples for the subsequent analysis of selected micropollutants. In order to side step potential heterogeneity in the river cross-section, all samples were collected at the same location at each station regardless of the sampling technique used.

2.2 Study area and exposure conditions of the sediment traps

From September 2011 to April 2013, SPM were collected fortnightly at the station Rhône at Jons (see Figure 2). The sampling frequency increased during flood events (discharge > 800 m^3/s) and during Génissiat and Verbois dams flushing operations carried out on the Upper Rhône River in June 2012. At this station the integrative ST was always exposed to SSC < 1 g/L and low to moderate flow approach velocities, and never influenced by coarse near-bed suspensions, because elevation above river bottom was approx. 4 to 5 m (see Table 2). Under such conditions, the CFC could be employed and taken as URSM (see section 3.1) to assess the physico-chemical representativeness of SPM collected with the ST under what was considered in this study as usual conditions.

Samples were also collected daily, upstream, at the stations Rhône at Pougny and Rhône at Seyssel during the above mentioned dams flushing operations. At these stations STs were exposed to SSC ranging from 0.3 to 49.0 g/L and low to moderate flow approach velocities, and quite influenced by coarse near-bed suspensions (elevation above river bottom was approx. 1 to 2 m). As previously stated, under such conditions the use of a CFC was impossible and time-integrative LVWS were undertaken and considered as URSM (see section 3.1) to assess the physico-chemical representativeness of SPM collected with the ST under what was considered in this study as extreme conditions.

2.3 Analytical methods

PCBs, PAHs, mercury and organic carbon

Prior to chemical analysis, SPM collected with the various sampling techniques were transferred into 250 mL amber glass bottles and deep-frozen, freeze-dried, and homogenised through a 2 mm stainless steel sieve.

PCBs and PAHs were analysed according to the XP X33-012 Standard (AFNOR, 2000) as briefly described hereafter: a 1.0 g sample was extracted with a cyclohexane/acetone (90:10, v/v) or hexane/acetone mixture (50:50, v/v), respectively, on a Dionex ASE350 Accelerated Solvent Extractor (Dionex, USA). The extract was then purified on a 1 g Florisil® or silica solid phase extraction cartridge, respectively. A small amount of copper powder was finally added in order to avoid possible sulphur interferences prior to gas chromatography analysis of PCBs with a ^{63}Ni electron capture detector (ECD). The 2 following columns were used to separate and identify PCB congeners:

Column 1: RTX®-5 (fused silica - Restek); 30 m x 0.25 mm x 0.25 µm;

Column 2: RTX®-PCB (fused silica - Restek); 30 m x 0.25 mm x 0.25 µm.

PAHs were analysed by capillary gas chromatography coupled to mass spectrometry (GC-MS). Total mercury was determined according to the EPA Method 7473 (USEPA, 2007) by thermal decomposition, amalgamation and atomic absorption spectrophotometry and particulate organic carbon (OC) according to the ISO 10694 Standard (ISO, 10694:1995) after dry combustion.

Quality Assurance and Quality Control

Quality assurance and quality control included the analysis of blanks, replicates, internal standards, and spiked material. Furthermore, the accuracy of measurements was checked via intercomparison exercises (3rd campaign Quality Consult proficiency testing 13CS3, 2013 for PCBs, Aglaé for total mercury and PAHs) and via the analysis of certified reference materials (BCR 536 for PCBs, IAEA 433 for total mercury, and SRM 1941b for PAHs).

The expanded uncertainty (k = 2) ranged from 10 to 27.5% for PCB congeners and the uncertainty at the limit of quantification ranged from 15 to 70% for PAHs. Expanded uncertainties of 16 and 5% (with a confidence level of 95%) were assessed for total mercury and organic carbon, respectively. The limit of quantification was 0.010 µg/g dry weight for

mercury, 0.05 g/kg dry weight for organic carbon, and ranged from 0.50 to 0.75 and 1 to 5 µg/kg dry weight for PCB congeners and PAHs, respectively.

Grain-size distribution

An aliquot of each sample (before freezing, freeze-drying and homogenisation) was analysed on a CILAS 1190 laser particle size analyser (range of values: 1 – 2 500 µm). As already pointed out by several authors (e.g., Schäfer and Blanc, 2002), a laser analyser provides a better reproducibility than sieving and offers a higher resolution of the finer grain sizes (< 2 µm).

Volumetric grain-size distributions of SPM collected in the Rhône River being multimodal, each sample was assumed to be a combination of various particle populations following Gaussian distributions. Four Gaussian subgroups were defined according to Launay et al. (2013) (see Table 3) and the maximum-likelihood estimation method provided the parameters of the Gaussian distributions: i) the mode, D (µm), ii) the standard deviation, σ (µm), and iii) the volume percentage in the whole sample, λ_i (%), of particle populations belonging to each Gaussian subgroup.

An example of decomposition into Gaussian subgroups is given in Figure 3 with two samples collected simultaneously using LVWS and a ST. Whereas modes and standard deviations are more or less similar, the volume percentages of particle populations belonging to each Gaussian subgroup differ: 7 and 13% of particle populations in samples collected with a ST and LWVS, respectively, belong to subgroup 1, 51 and 55% to subgroup 2, 42 and 32% to subgroup 3, and none to subgroup 4.

Suspended solids concentration

Manual grab samples were collected daily and analysed for suspended solids concentration (SSC) according to the NF EN 872 Standard (AFNOR, 2005). Briefly, 1 L samples were first filtered through pre-weighed filters (Whatman GF/F, 0.7 µm). Filters were then dried to constant weight (105℃) and finally re-weighed. The limit of quantification was 0.002 g/L.

2.4 Bias-correction procedures

Bias-correction to organic carbon content

The widely used bias-correction to the OC content was tested (EC, 2010.3991) and contaminant contents from a ST were OC-corrected as follows:

$$C_{OC}^{ST} = C^{ST} \frac{[OC]^{Ref}}{[OC]^{ST}} \quad \text{(Eq. 1)}$$

in which C_{OC}^{ST} is the OC-corrected concentration of a given contaminant for SPM collected with a ST; C^{ST} is the measured concentration of a given contaminant for SPM collected with a ST; $[OC]^{Ref}$ the organic carbon content of SPM collected with an URSM; and $[OC]^{ST}$ the organic carbon content of SPM collected with a ST.

Bias-correction to grain-size distribution

Contaminant contents from a ST were grain-size corrected as follows:

$$C_{1+2}^{ST} = C^{ST} \frac{\lambda_1^{Ref} + \lambda_2^{Ref}}{\lambda_1^{ST} + \lambda_2^{ST}} \quad \text{(Eq. 2)}$$

$$C_{1+2+3}^{ST} = C^{ST} \frac{\lambda_1^{Ref} + \lambda_2^{Ref} + \lambda_3^{Ref}}{\lambda_1^{ST} + \lambda_2^{ST} + \lambda_3^{ST}} \quad \text{(Eq. 3)}$$

in which C_{1+2}^{ST} and C_{1+2+3}^{ST} are the grain-size corrected concentrations of a given contaminant for SPM collected with a ST to subgroups 1 and 2 (clay and fine silt), or 1 and 2 and 3 (clay and fine and coarse silt), respectively; C^{ST} the measured concentration of a given contaminant for SPM collected with a ST; λ_i^{Ref} and λ_i^{ST} the volume percentages of particle populations collected with an URSM or a ST, respectively, belonging to the Gaussian

subgroup i. This bias-correction procedure to grain-size distribution will be comprehensively explained and discussed in section 3.3.

The classical bias-correction to the grain-size < 63 µm fraction (EC, 2010.3991) was also tested, and contaminant contents from a ST were corrected as follows:

$$C^{ST}_{<63\ \mu m} = C^{ST} \frac{\lambda^{Ref}_{<63\ \mu m}}{\lambda^{ST}_{<63\ \mu m}} \quad \text{(Eq. 4)}$$

in which $C^{ST}_{<63\ \mu m}$ is the corrected concentration of a given contaminant for SPM collected with a ST to the grain-size < 63 µm fraction; C^{ST} the measured concentration of a given contaminant for SPM collected with a ST; $\lambda^{Ref}_{<63\ \mu m}$ and $\lambda^{ST}_{<63\ \mu m}$ the volume percentages of particle populations collected with an URSM or a ST, respectively, belonging to the grain-size < 63 µm fraction.

2.5 Statistical method and graphical representation

A Wilcoxon-Mann-Whitney test for paired samples was used to detect significant differences between the sampling techniques (5% error probability). Under usual conditions SPM collected with a ST deployed for 2 weeks were compared with SPM collected at the same station with the CFC in the same 2 week period (mean of the data set). Under extreme conditions samples collected daily with a ST or LVWS at the same station were compared. Correlations between OC content and SSC were calculated using the non-parametric Spearman's rank correlation coefficient r_s and tested for significance. The comparison was made on samples collected on the same day and at the same station. If each of the variables is a perfect monotone function of the other then a perfect Spearman correlation ($r_s = \pm 1$) is obtained.

Contaminant contents are presented as follows: mean ± standard deviation. Results are graphically depicted through boxplots. The bottom and top of the box are the first and third quartiles while the band inside the box is the second quartile (the median). The ends of the whiskers represent the lowest datum still within 1.5 interquartile range of the lower quartile, and the highest datum still within 1.5 interquartile range of the upper quartile. A diamond-shaped dot represents the mean of the data. For the sake of readability outliers are not represented.

3. Results and Discussion

3.1 Unbiased reference sampling methods

The possible artefacts from CFC and LVWS sampling methods were investigated. The grain-size distributions of samples collected with CFC/LVWS and manual grab samplings were compared as follows:

- Pair 1: samples collected simultaneously with a CFC or manual grab sampling (n=38);
- Pair 2: time-integrative samples collected with LVWS during 24 hours (start on day 1 and end on day 2) and the average of manual grab samples collected on days 1 and 2 (n=12).

For each pair, the volume percentages of particle populations belonging to each Gaussian subgroup were compared and no significant differences were found (p-values>0.05). These results indicate that there is no significant grain-size bias due to the use of a CFC or LVWS and that SPM collected with these techniques are representative of particles transported in suspension in the river, as pointed out by Schubert et al. (2012). Thereafter, CFC and LWVS are taken as URSMs.

3.2 Sampling efficiency of a sediment trap according to selected micropollutants

In this section, we investigated potential differences between contaminant contents in SPM collected with an integrative ST or with an URSM.

Mercury

Concentrations are lower than mercury ER-L (Effects Range – Low: 0.15 µg/g) - concentration below which adverse biological effects are unlikely to occur (Long et al., 1995) -, similar to those reported in uncontaminated North American and European rivers (Quémerais et al., 1998), and one order of magnitude lower than those recorded in heavily industrialized fluvial systems (Hissler and Probst, 2006). Additionally, mercury concentrations at the station Rhône at Jons (midstream) under usual conditions are up to twice as high as concentrations at the upstream stations under extreme conditions (see Figure 4): 0.053±0.010 µg/g vs. 0.034±0.010 µg/g. This can be attributed to a higher OC content of SPM collected at the midstream station (see section 3.3) and to mercury inputs from several tributaries.

Under usual conditions, mercury contents are significantly different (p-value=0.020, n=29) depending on the sampling technique used: 0.053±0.010 µg/g vs. 0.048±0.015 µg/g in SPM collected with an URSM and a ST, respectively. The bias introduced by the use of a ST is greater under extreme conditions (p-value=0.006, n=14), with mercury contents of 0.034±0.010 µg/g vs. 0.021±0.006 µg/g in SPM collected with an URSM and a ST, respectively.

PCBs

∑PCBi was calculated summing up the concentrations of the following congeners: PCB 28,

PCB 52, PCB 101, PCB 118, PCB 138, PCB 153 and PCB 180. Concentrations below the limit of quantification (LOQ) were replaced by a fixed non-variable value of 50% of the LOQ.

PCB contamination in the Rhône River was reported to be decreasing since the 1970s (Desmet et al., 2012). ∑PCBi concentrations at the station Rhône at Jons are currently lower than the ER-L (22.7 µg/kg according to Long et al. (1995)), and lower than in other PCB-contaminated European fluvial systems such as the Elbe River (Stachel et al., 2005; Umlauf et al., 2011). Like mercury, ∑PCBi concentrations at the station Rhône at Jons under usual conditions are up to twofold higher than concentrations at the upstream stations under extreme conditions: 9.5±4.0 µg/kg vs. 4.7±1.6 µg/g. These results were explained by a difference in the particle nature caused by the massive discharge of organic-poor particles at the upstream stations during the dams flushing operations (see section 3.3). Indeed, OC-corrected concentrations at both upstream and midstream stations were no longer significantly different.

Under usual conditions there is no significant difference (p-value=0.740, n=35) between ∑PCBi concentrations in SPM collected with a ST or with an URSM, as reported by several authors (Busch et al., 2006; Pohlert et al., 2011): 9.5±4.0 µg/kg vs. 9.2±3.6 µg/kg in SPM collected with an URSM and a ST, respectively. On the other hand, the use of a ST under extreme conditions leads to significantly different ∑PCBi concentrations (p-value=0.017, n=14): 4.7±1.6 µg/kg vs. 3.5±2.1 µg/kg in SPM collected with an URSM and a ST, respectively.

PAHs

∑PAHs was calculated summing up the concentrations of: Naphtalene, Acenaphtylene, Acenaphthene, Fluorene, Phenanthrene, Anthracene, Fluoranthene, Pyrene,

Benz[*a*]anthracene, Chrysene, Benzo[*b*]fluoranthene, Benzo[*k*]fluoranthene, Benzo[*a*]pyrene, Dibenz[*a,h*]anthracene, Benzo[*ghi*]perylene, and Indeno[*1,2,3-cd*]pyrene.

PAHs concentrations in the Rhône River are comparable to those available for other major French and European rivers (Fernandes et al., 1999).

PAHs were not analysed in SPM collected with the CFC under usual conditions due to the use of a power generator, and plausible contamination of the samples. Under extreme conditions, PAHs concentrations are significantly different (p-value=0.010, n=13, one outlier excluded from the dataset): 1302.8±830.5 µg/kg vs. 745.7±329.8 µg/kg in SPM collected with an URSM and a ST, respectively.

Depending on the contaminant analysed, the use of a ST under usual conditions leads or not to biased samples. On the other hand, under extreme conditions, all contaminant contents in SPM collected with a ST are underestimated and significant differences are greater. In order to explain these results the representativeness of SPM collected using a ST was further investigated through the analysis of the grain-size distribution and of the organic carbon content.

3.3 Representativeness of SPM collected using a sediment trap

Grain-size distribution

Under usual conditions, there is no significant difference (p-value=0.371, n=24) between volume percentages of particle populations with a mode < 80 µm, i.e., belonging to Gaussian subgroups 1, 2 and 3. Whereas all particles grain sizes are captured by STs, there is a loss, in proportion, of finer particles. Indeed, there is a significant difference (p-value=0.009, n=24) between the volume percentages of particle populations with a mode < 27 µm, i.e., belonging

to Gaussian subgroups 1 and 2: 89±11 % vs. 78±21 % in samples collected with an URSM or a ST, respectively. This can be attributed to the separation principle of a ST: sedimentation allows the collection of fine particles to a much lesser extent.

Under extreme conditions, both volume percentages of particle populations belonging to Gaussian subgroups 1, 2, and 3, or to Gaussian subgroups 1 and 2 are significantly different: p-value=0.003 and n=14 in both cases. 95±9 % vs. 63±30 % of particles collected with an URSM or a ST, respectively, belong to Gaussian subgroups 1, 2, and 3, while 72±21 % vs. 30±31 % of particles collected with an URSM or a ST, respectively, belong to Gaussian subgroups 1 and 2. Grain-size distribution differences under extreme conditions can be attributed to the larger contribution from coarse silt and fine sands (Gaussian subgroup 4) in samples collected with the ST compared to surface water samples collected with the URSM. As mentioned in section 2.2, STs at the stations Rhône at Pougny and Rhône at Seyssel were exposed to coarse near-bed suspensions due to small elevation above river bottom.

While the loss of finer particles using a ST has already been reported in several studies (Pohlert et al., 2011; Schubert et al., 2012), the comprehensive analysis of Gaussian particle sub-populations in high-resolution grain size distribution leads to the important and new conclusion that all particles sizes are captured by STs, including the smallest: sub-population properties are conserved, but proportions may differ (see Figure 3). We assumed that Gaussian subgroups 1 and 2 (and perhaps 3) are equally contaminated and that the coarser mode (Gaussian subgroup 4) is contamination-free (Launay, 2013). This is the reason why a bias-correction to grain-size removing coarser grain-size fractions is tested (see section 3.4).

The classical separation of the grain-size < 63 µm fraction was also studied under extreme conditions and a significant difference between samples collected with a ST or an URSM was also highlighted: p-value=0.002, n=13. Nevertheless, contrary to the decomposition into Gaussian subgroups, the separation of the grain-size < 63 µm fraction does not reflect the

multimodality of the distribution and the change of shape of the grain-size distribution caused by the use of a ST.

Organic carbon

OC content in SPM collected at the station Rhône at Jons under usual conditions are up to three times as high as OC content at the upstream stations under extreme conditions: 29.4±15.2 g/kg vs. 11.4±3.0 g/kg, respectively. This can be attributed to the massive discharge of organic-poor particles during the dams flushing operations.

Regardless of the exposure conditions of the ST, OC content in SPM collected with a ST are significantly lower: p-value=0.008 under usual conditions (n=30) and p-value=0.009 under extreme conditions (n=14). Several authors observed the same trend (Baker et al., 1991; Koelmans et al., 1997; Pohlert et al., 2011; Schäfer and Blanc, 2002) which could be attributed to: i) a lesser settling of phytoplankton cells, ii) a larger contribution from resuspended sediments (coarse silt and fine sand), iii) a quick degradation of algal components, and/or iv) a decay of rapidly biodegradable compounds. Nevertheless, lower OC content of SPM collected with a ST under extreme conditions are probably not due to this decay of biodegradable compounds as SPM remained inside the ST for periods of 24 hours only. Other potential reasons are discussed below.

A ST allows sampling of a time-integrated but not proportional-to-time sample. As described by Pohlert et al. (2011), the amount of SPM collected with a ST is larger under high suspended solids concentrations (SSC). OC content in SPM samples collected under usual conditions with an unbiased reference sampling method (CFC) is significantly and inversely correlated with SSC: r_s = -0.67, p = 4.3 10^{-6}, n=37. Therefore, the OC content in SPM

decreases with increasing SSC, leading to a final OC content in SPM collected with a ST potentially lower than the temporal mean.

On the contrary, no correlation was found between OC content in SPM collected under extreme conditions with an URSM (LVWS) and SSC: r_s = 0.12, p = 0.680, n=15. In that particular case, lower OC content in SPM collected with a ST is assumed to be due to the larger contribution from coarser and less organic-rich particles.

Along with the grain-size bias observed, the lower OC content in SPM collected with a ST might therefore explain the underestimation of micropollutant concentrations under certain exposure conditions. For the sake of data homogeneity the second objective of this study was to identify whether simple bias-correction procedures of contaminant contents acceptably apply.

3.4 Bias-correction of samples collected with a sediment trap

Various ratios – corrected-concentration from the ST to concentration from an URSM – were calculated (see Table 4) in order to assess the efficiency of the different bias-correction methods, and are depicted in Figures 5 to 7. An ideal bias-correction procedure would give a ratio of 1:1 and a very small dispersion of the data.

The observed bias for mercury concentrations under usual conditions was relatively low and the OC-correction method, while removing the statistical difference, leads to a greater dispersion of the data. Grain-size-correction to subgroups 1 and 2 (median modes < 27 µm) gives satisfactory results: it removes the statistical difference and does not lead to a greater dispersion. Interactions between mercury and organic matter are indirect and can be attributed to the binding of mercury with sulphur-containing functional groups in organic matter (Ravichandran, 2004). Klamer et al. (1990) therefore suggested the use of grain-size

distributions rather than organic carbon to normalize trace element concentrations. As samples collected at the station Rhône at Jons are predominantly fine-grained a correction to the grain-size < 63 µm fraction or to Gaussian subgroups 1, 2 and 3 (median modes < 80 µm) are inadequate here. Under extreme conditions, OC-correction and grain-size correction to subgroups 1, 2, and 3 of mercury and ∑PCBi concentrations successfully correct contaminant contents in SPM collected with a ST: greater p-values and acceptable dispersion of the data. As aforementioned, an additional sandy mode was collected with STs, explaining the necessity of a correction to subgroups 1, 2, and 3, and the inadequacy of a correction to subgroups 1 and 2 only. Regarding PAHs, bias-correction to subgroups 1, 2, and 3 appears to be the most promising procedure (lower dispersion). For all contaminants, a correction to the grain-size < 63 µm fraction leads to a larger dispersion of the data.

Both bias-correction procedures were built taking contaminant-carrier properties of the SPM into account, but, unlike correction to grain-size, correction to the OC-content assumes that the contamination of all the different particles populations differs. Yet, bias-correction to grain-size is practically easier to perform if no unbiased reference sample is available. Both bias-correction procedures also require additional analyses for each sample leading to a higher total analytical error (Klamer et al., 1990) and thus to a higher dispersion of the data. Moreover the grain-size-correction procedure requires a step of data processing so as to determine Gaussian subgroups, and associated uncertainties are so far unknown. On the contrary OC content analysis is widespread and the associated expanded uncertainty is low.

4. Conclusion

The comprehensive analysis of Gaussian particle sub-populations in high-resolution grain size distributions led to the important and new conclusion that all particles sizes are collected with STs, including the smallest: sub-populations properties are conserved, but proportions may differ. Collection of less organic-rich particles was also highlighted. Along with the grain-

size bias observed, the lower OC content in SPM collected with STs might explain the underestimation of contaminant contents under certain exposure conditions. While the use of STs under usual conditions did not lead to any bias in ∑PCBi concentrations, it led to a slight, but acceptable, underestimation of mercury concentrations. Under extreme conditions the collection of an additional sandy mode was emphasized, resulting in significantly lower contaminant contents. Yet, to some extent, the large contribution from coarse near-bed particles under extreme conditions could be avoided exposing STs in dead zones, far from the main flow channel. Simple bias-correction procedures were tested and showed promising results. While bias-correction to grain-size could be easily perform without any reference sample, bias-correction to the OC content is a robust procedure with low associated uncertainties. Further studies involving controlled exposure conditions and other substances would be welcome to confirm the optimal conditions of use of STs for monitoring particulate contamination in rivers.

Acknowledgements

This work was conducted under the framework of the Rhône Sediment Observatory and was partly supported by the Plan Rhône. The PhD scholarship of Marina Launay was funded by the Région Rhône-Alpes (convention number: 12-013144-01 for the PhD third year). The authors would like to thank G. Dramais, M. Lagouy, J. Panay, and F. Thollet for their help in collecting the samples and G. Grisot and M. Courtel for mercury and grain-size distribution analyses, respectively.

References

AFNOR, 2000, XP X33-012 Standard: Characterisation of sludges - Determination of polynuclear aromatic hydrocarbons (PAH) and polychlorinated biphenyls (PCB), 28 pp.

AFNOR, 2005, NF EN 872 Standard: Qualité de l'eau - Dosage des matières en suspension - Méthode par filtration sur filtre en fibres de verre, "Water quality - Determination of suspended solids - Method by filtration through glass fibre filters", 14 pp, in French.

Allan, I., Fjeld, E., Garmo, Ø., Langford, K., Kringstad, A., Bratsberg, E., and Kaste, Ø., 2009, RiverPOP: Measuring concentrations of persistent organic pollutants and trace metals in Norwegian rivers. SFT-report TA 2521/2009, NIVA-sno 5815, 112 pp.

André, B., and Lascombe, C., 1988, Qualité du fleuve Rhône, Synthèse des connaissances. Lyon, France: Agence de l'Eau Rhône-Méditerranée-Corse, 251 pp, in French.

Baker, J. E., Eisenreich, S. J., and Eadie, B. J., 1991, Sediment trap fluxes and benthic recycling of organic carbon, polycyclic aromatic hydrocarbons, and polychlorobiphenyl congeners in Lake Superior: Environmental Science and Technology, v. 25, no. 3, p. 500-509.

Birch, G. F., and Taylor, S. E., 2000, The use of size-normalised procedures in the analysis of organic contaminants in estuarine sediments: Hydrobiologia, v. 431, p. 129-133.

Burrus, D., Thomas, R. L., Dominik, J., and Vernet, J. P., 1989, Recovery and concentration of suspended solids in the Upper Rhône River by continuous flow centrifugation: Hydrological Processes, v. 3, p. 65-74.

Busch, D., Furtmann, K. S., A., Zyuzina, I., Reupert, R., and Sielex, K., 2006, Effects of sampling and sample preparation on results during determination of selected priority substances according to the Water Framework Directive: Report to Federal German Environment Agency (UFOPLAN 204 22 213), North Rhine-Westphalia State Environment Agency, Düsseldorf, Umweltbundesamt Texte 26/07, 162 pp.

Camacho-Ibar, V. F., and McEvoy, J., 1996, Total PCBs in Liverpool Bay Sediments: Marine Environmental Research, v. 41, no. 3, p. 241-263.

Ciffroy, P., Vazelle, D., Mataix, V., Taconnet, J., Estèbe, A., Thévenot, D., Bourguignon, O. I., Z., and Meybeck, M., 1999, Intercomparaison de méthodes d'échantillonnage des matières en suspension en milieu fluvial : application à la mesure de la concentration en micropolluants métalliques / Comparison of methods for sampling suspended matter in rivers: application to measurement of particulate metals: Hydroécologie appliquée, v. 11, no. 1/2, p. 71-102, in French.

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., and Babut, M., 2012, Spatial and temporal trends in PCBs in sediment along the lower Rhône River, France: Science of the Total Environment, v. 433, p. 189-197.

Duinker, J. C., 1986, The role of small, low density particles on the partition of selected PCB congeners between water and suspended matter (North sea area): Netherlands Journal of Sea Research, v. 20, no. 2/3, p. 229-238.

Duinker, J. C., Nolting, R. F., and van der Sloot, H. A., 1979, The determination of suspended metals in coastal waters by different sampling and processing techniques (filtration, centrifugation): Netherlands Journal of Sea Research, v. 13, no. 2, p. 282-297.

EC, 2000/60, European Commission Directive 2000/60/EC of the European Parliament and of the Council establishing a framework for Community action in the field of water policy, 72 pp.

EC, 2010.3991, European Commission, Common Implementation Strategy for the Water Framework Directive (2000/60/EC), Guidance Document 25, Guidance on chemical monitoring of sediment and biota under the Water Framework Directive (2000/60/EC), 82 pp.

Fernandes, M. B., Sicre, M.-A., Broyelle, I., Lorre, A., and Pont, D., 1999, Contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in French and European rivers: Hydrobiologia, v. 410, p. 343-348.

Gardner, W. D., 1980, Field assessment of sediment trap: Journal of Marine Research, v. 38, no. 1, p. 41-52.

Herut, B., and Sandler, A., 2006, Normalization methods for pollutants in marine sediments: review and recommendations for the Mediterranean. IOLR Report H18/2006, 23 pp.

Hissler, C., and Probst, J. L., 2006, Chlor-alkali industrial contamination and riverine transport of mercury: distribution and partitioning of mercury between water, suspended matter, and bottom sediment of the Thur River, France: Applied Geochemistry, v. 21, p. 1837-1854.

Horowitz, A. J., 1986, Comparison of methods for the concentration of suspended sediment in river water for subsequent chemical analysis: Environmental Science and Technology, v. 20, no. 2, p. 155-160.

Horowitz, A. J., Elrick, K. A., and Hooper, R. C., 1989, A comparison of instrumental dewatering methods for the separation and concentration of suspended sediments for subsequent trace element analysis: Hydrological Processes, v. 3, no. 2, p. 163-184.

ISO, 10694:1995, Soil quality - Determination of organic and total carbon after dry combustion (elementary analysis), 7 pp.
Karickhoff, S. W., Brown, D. S., and Scott, T. A., 1979, Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments: Water Research, v. 13, p. 241-248.
Kersten, M., and Smedes, F., 2002, Normalization procedures for sediment contaminants in spatial and temporal trend monitoring - a critical review: Journal of Environmental Monitoring, v. 4, no. 1, p. 109-115.
Klamer, J. C., Hegeman, W. J. M., and Smedes, F., 1990, Comparison of grain size correction procedures for organic micropollutants and heavy metals in marine sediments: Hydrobiologia, v. 208, p. 213-220.
Koelmans, A. A., Gillissen, F., Makatita, W., and van der Berg, M., 1997, Organic carbon normalisation of PCB, PAH and pesticide concentrations in suspended solids: Water Research, v. 31, no. 3, p. 461-470.
Long, E. R., MacDonald, D. D., Smith, S. L., and Calder, F. D., 1995, Incidence of adverse biological effects within ranges of chemical concentrations in marine and estuarine sediments: Environmental Management, v. 19, no. 1, p. 81-97.
Olsen, C. R., Cutshall, N. H., and Larsen, I. L., 1982, Pollutant-particle associations and dynamics in coastal marine environments: a review: Marine Chemistry, v. 11, p. 501-533.
Opel, O., Palm, W. U., Steffen, D., and Ruck, W. K. L., 2011, Inside-sediment partitioning of PAH, PCB and organochlorine compounds and interferences on sampling and normalization methods: Environmental Pollution, v. 159, p. 924-931.
Piérard, C., Budzinski, H., and Garrigues, P., 1996, Grain-size distribution of polychlorobiphenyls in coastal sediments: Environmental Science and Technology, v. 30, p. 2776-2783.
Pohlert, T., Hillebrand, G., and Breitung, V., 2011, Effects of sampling techniques on physical parameters and concentrations of selected persistent organic pollutants in suspended matter: Journal of Environmental Monitoring, v. 13, p. 1579-1588.
Quémerais, B., Cossa, D., Rondeau, B., Pham, T. T., and Fortin, B., 1998, Mercury distribution in relation to iron and manganese in the waters of the St. Lawrence river: The Science of the Total Environment, v. 213, p. 193-201.
Ravichandran, M., 2004, Interactions between mercury and dissolved organic matter - a review: Chemosphere, v. 55, p. 319-331.
Rees, T. F., Leenheer, J. A., and Ranville, J. F., 1991, Use of a single-bowl continuous-flow centrifuge for dewatering suspended sediments: Effect on sediment physical and chemical characteristics: Hydrological Processes, v. 5, no. 2, p. 201-214.
Schäfer, J., and Blanc, G., 2002, Relationship between ore deposits in river catchments and geochemistry of suspended particulate matter from six rivers in southwest France: The Science of the Total Environment, v. 298, p. 103-118.
Schubert, B., Heininger, P., Keller, M., Ricking, M., and Claus, E., 2012, Monitoring of contaminants in suspended particulate matter as an alternative to sediments: Trends in Analytical Chemistry, v. 36, p. 58-70.
Schulze, T., Ricking, M., Schröter-Kermani, C., Körner, A., Denner, H.-D., Weinfurtner, K., Winkler, A., and Pekdeger, A., 2007, The German Environmental Specimen Bank. Sampling, processing, and archiving sediment and suspended particulate matter: J Soils Sediment, v. 7, no. 6, p. 361-367.
Stachel, B., Jantzen, E., Knoth, W., Krüger, F., Lepom, P., Oetken, M., Reincke, H., Sawal, G., Schwartz, R., and Uhlig, S., 2005, The Elbe flood in August 2002 - Organic contaminants in sediments samples taken after the flood event: Journal of Environmental Science and Health, v. A40, p. 265-287.
Umlauf, G., Stachel, B., Mariani, G., and Götz, R., 2011, Dioxins and PCBs in solid matter from the River Elbe, its tributaries and the North Sea (longitudinal profile, 2008): European Commission - Joint Research Centre, 120 pp.
UNEP, 1976, The 1976 Barcelona Convention for the Protection Of the Mediterranean Sea against Pollution. United Nations Environment Programme (UNEP), 22 pp.
UNEP, 2001, The 2001 Stockholm Convention on Persistent Organic Pollutants. United Nations Environment Programme (UNEP), 34 pp.
USEPA, 2007, Method 7473: Mercury in solids and solutions by thermal decomposition, amalgamation, and atomic absorption spectrophotometry, 17 pp.

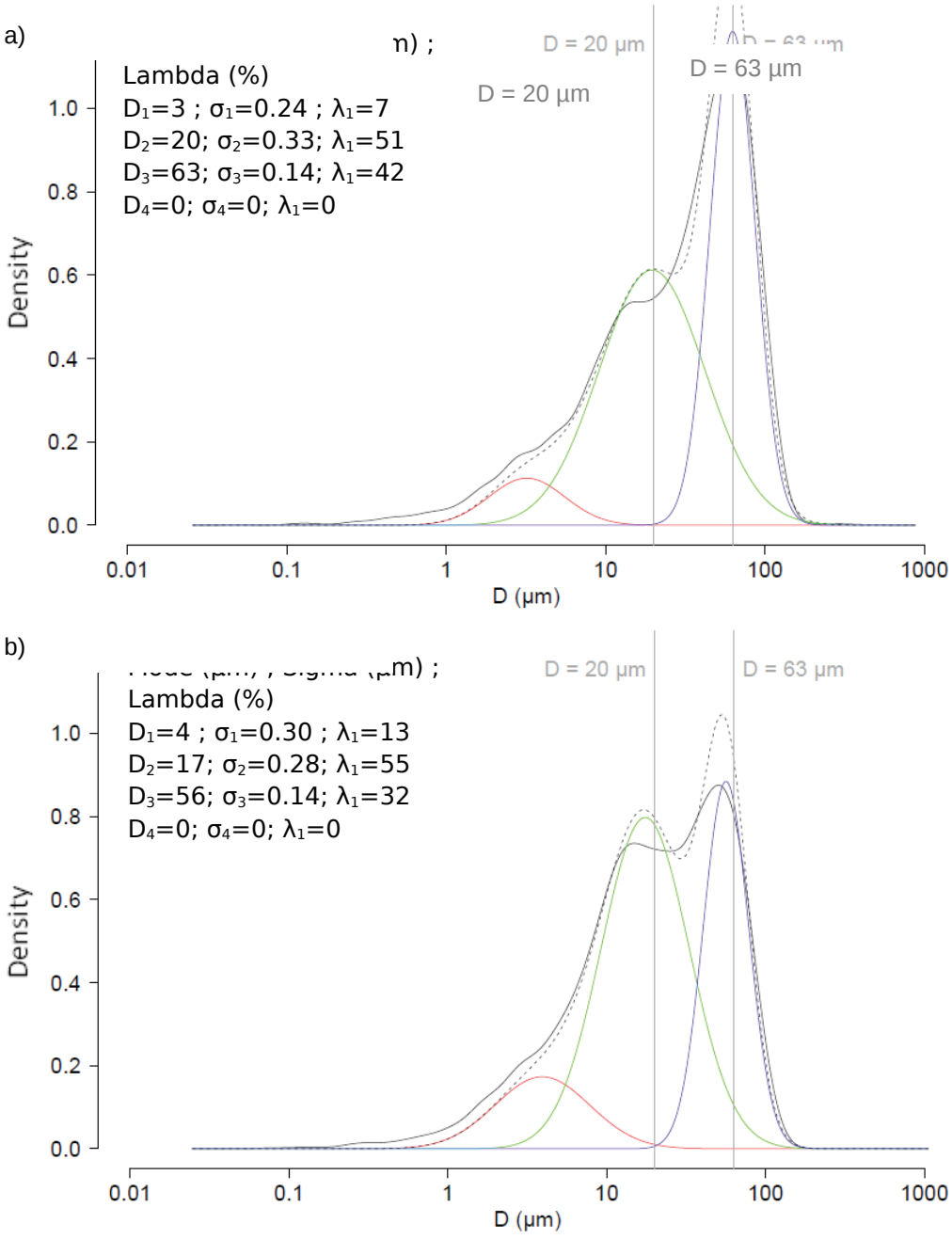


Figure 3: Example of decomposition into Gaussian subgroups of the volumetric distribution of two samples collected simultaneously under extreme conditions at the station Rhône à Pougny using a) a sediment trap and b) large volume water sampling (unbiased reference sampling method). Black (dotted line): initial grain-size distribution; green: subgroup 1, blue: subgroup 2, yellow: subgroup 3, yellow: subgroup 4, black (solid line): weighted sum of the 4 Gaussian subgroup distributions (weights = λi).

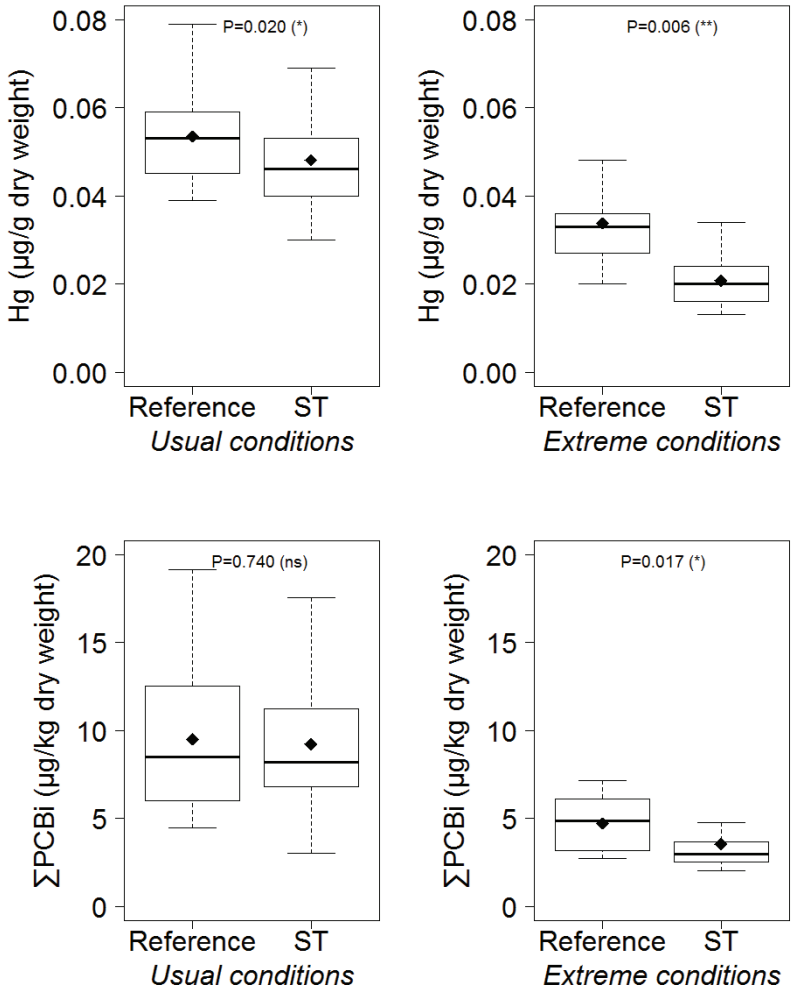


Figure 4: Mercury and ∑PCBi concentrations of SPM collected i) under usual conditions with an unbiased reference sampling method (CFC) and a ST at the station Rhône at Jons (n=29 for mercury and n=35 for ∑PCBi), and ii) under extreme conditions with an unbiased reference sampling method (LVWS) and a ST at the stations Rhône at Pougny and Seyssel (n=14). ns: P ≥ 0.050; *: P ≤ 0.050; **: P ≤ 0.010, ♦: mean.

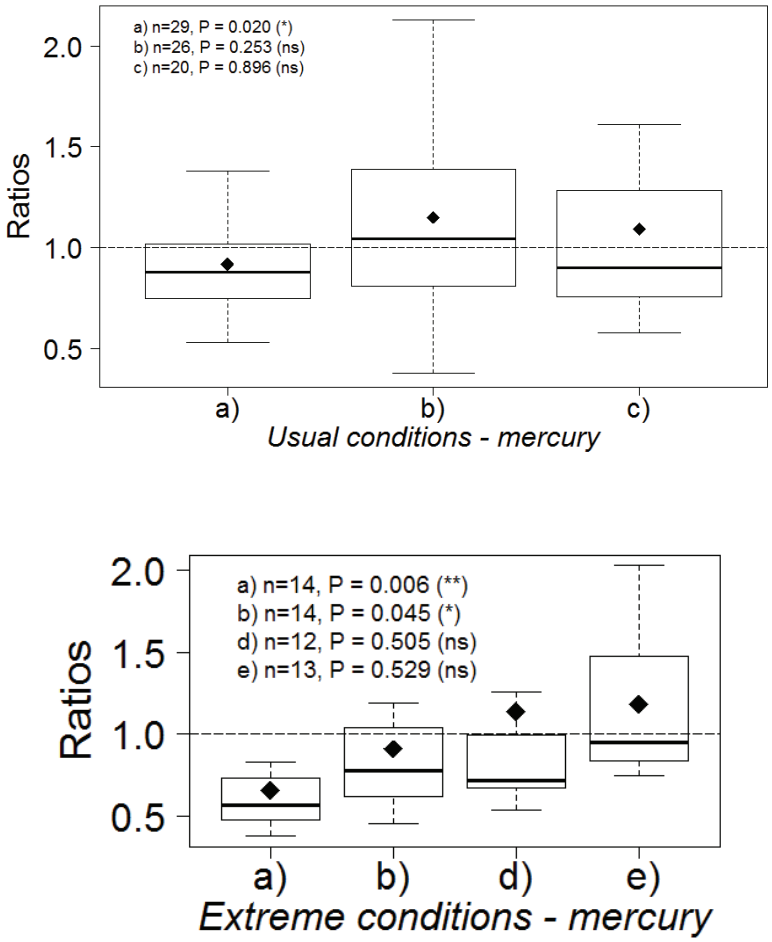


Figure 5: Efficiency of bias-correction methods on mercury concentrations of SPM collected under usual and extreme conditions with a ST: a) no-correction, b) OC-correction, c) grain-size correction to subgroups 1 and 2, d) grain-size correction to subgroups 1, 2 and 3, and e) < 63 µm grain-size correction. Significance level: ns (non-significant): P ≥ 0.050; *: P ≤ 0.050; **: P ≤ 0.010, n: number of samples analysed, ♦: mean, dotted line: ratio 1:1.

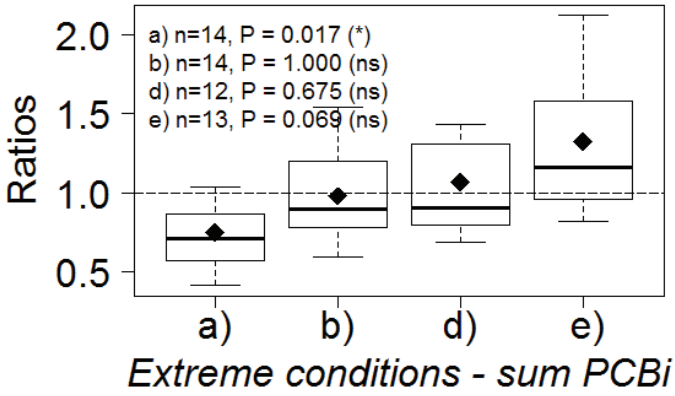


Figure 6: Efficiency of bias-correction methods on ∑PCBi concentrations of SPM collected under extreme conditions with a ST: a) no-correction, b) OC-correction, c) grain-size correction to subgroups 1 and 2, d) grain-size correction to subgroups 1, 2 and 3, and e) grain-size < 63 µm fraction correction. Significance level: ns (non-significant): P ≥ 0.050; *: P ≤ 0.050; **: P ≤ 0.010, n: number of samples analysed, ♦: mean, dotted line: ratio 1:1.

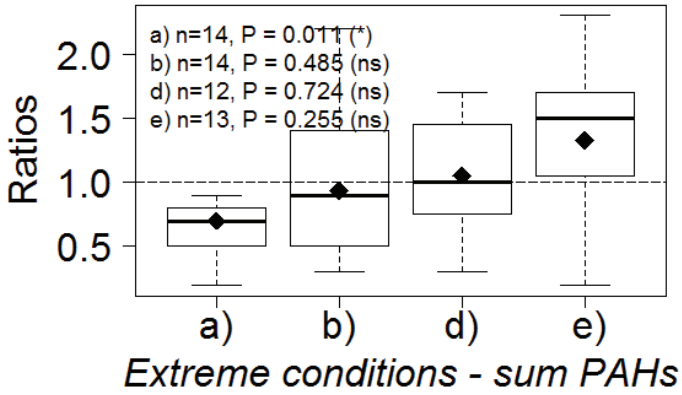


Figure 7: Efficiency of bias-correction methods on ∑PAHs concentrations of SPM collected under extreme conditions with a ST: a) no-correction, b) OC-correction, c) grain-size correction to subgroups 1 and 2, d) grain-size correction to subgroups 1, 2 and 3, and e) grain-size < 63 µm fraction correction. Significance level: ns (non-significant): P ≥ 0.050; *: P ≤ 0.050; **: P ≤ 0.010, n: number of samples analysed, ♦: mean, dotted line: ratio 1:1.

Table 1: Main advantages and drawbacks of the three SPM sampling techniques

	Sediment trap (ST)		Continuous-flow centrifuge (CFC)		Time-integrative large volume water sampling (LVWS)	
Suspended solids concentrations (SSC) required	No limitation (sampling duration must be adequate)	++	CFC possibly damaged under high SSC (> 1 g/L)	-	High SSC required (> 1 g/L)	-
Temporal representativeness	Time-integrated sample - not proportional to time but rather to SSC (1 to 15 days depending on SSC)	+	Grab sample (1 to 4 hours depending on SSC)	-	Time-integrated sample - proportional to time (1 day)	+
Representativeness with respect to SPM in the river	Loss of finer particles - degradation of organic matter if long time of exposure - possible collection of coarse nearbed suspension	-	Good representativeness	++	Good representativeness	++
Quantity of SPM sampled	Hundreds of grams of dry SPM (in 1 to 15 days depending on SSC)	++	Dozens of grams of dry SPM in few hours (if low SSC)	+	Dozens of grams of dry SPM in one day (if high SSC)	-
Type of materials used	Stainless steel (Grade 316 L)	++	Stainless steel bowl with a Teflon layer	++	Stainless steel bucket and glass demijohn	++
Equipment cost	Purchase ~ 1k€	+	Purchase ~ 100 k€ - subcontractor ~ 2 k€/centrifugation	-	Purchase ~ 100 € (bucket + demijohn)	++
Technical skills	Easy handling, little maintenance, non-permanent attendance, easy to vandalize	++	Trained operators, heavy maintenance, permanent attendance	-	Easy handling, little maintenance, permanent attendance	+

-: Disadvantageous; +: Advantageous; ++: Highly favourable

Table 2: Exposure conditions of the sediment traps at the different stations

Station	Exposure conditions	Time-series	Suspended solids concentration (SSC - g/L)				Position above river-bottom (m)
			min	max	mean	n	
Jons	"Usual"	09/20/2011 – 12/17/2012	< LOQ	0.7	0.1	51	4 to 5
Seyssel	"Extreme"	06/06/2012 – 06/15/2012	0.3	17.0	6.6	1026	1 to 2
Pougny	"Extreme"	06/10/2012 - 06/15/2012	0.3	49.0	16.7	435	~ 1

n: number of samples analysed (manual sampling); LOQ: limit of quantification = 0.002 g/L

Table 3: Gaussian subgroups and associated median diameter (µm) and volume percentage of particle populations (%) defined for SPM collected in the Rhône River

Gaussian subgroup	Median diameter (µm)	Percentage of particles (%)
1 - clay	$1 < D_1 < 10$	λ_1
2 - fine silt	$10 < D_2 < 27$	λ_2
3 - coarse silt	$27 < D_3 < 80$	λ_3
4 - fine to coarse sand	$80 < D_4 < 2500$	λ_4

Table 4: Ratios calculated for various bias-correction methods for SPM collected with a ST

$a\ ¿\ \frac{C^{ST}}{C^{Ref}}$	No bias-correction
$b\ ¿\ \frac{C^{ST}_{OC}}{C^{Ref}}$	OC-correction
$c\ ¿\ \frac{C^{ST}_{1+2}}{C^{Ref}}$	Grain-size correction to subgroups 1 and 2
$d\ ¿\ \frac{C^{ST}_{1+2+3}}{C^{Ref}}$	Grain-size correction to subgroups 1, 2 and 3
$e\ ¿\ \frac{C^{ST}_{< 63\,\mu m}}{C^{Ref}}$	grain-size < 63 µm correction

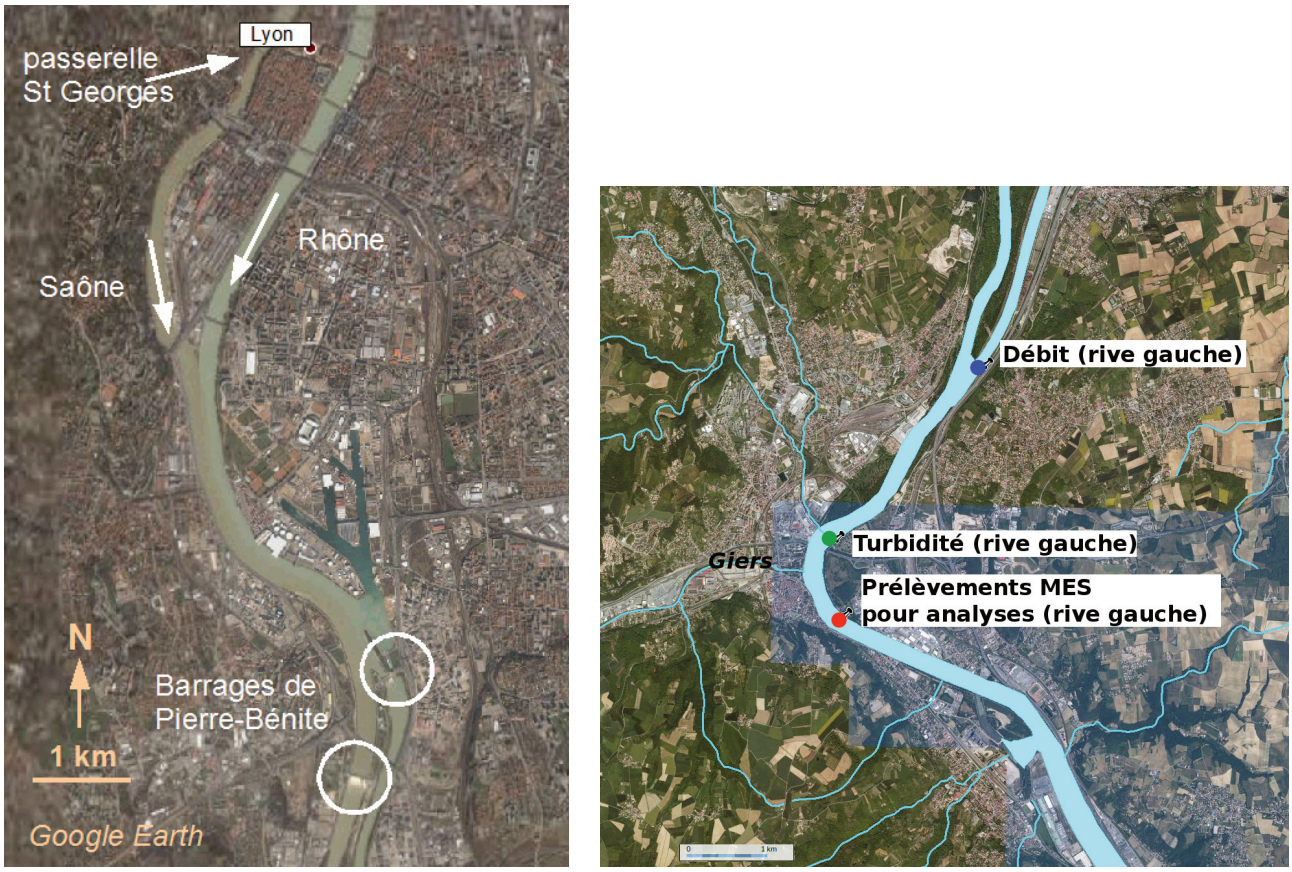
F Hétérogénéité des concentrations en MES au niveau de la station de mesure de Ternay sur le Rhône

Cette annexe est un résumé du rapport de Le Coz *et al.* (2011).

La question de la mise en place d'une station d'estimation des flux particulaires (MES et substances associées) sur le Rhône au niveau de Lyon s'inscrit dans le cadre de l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) et de cette thèse. La station de Ternay à l'aval de Lyon a tout d'abord été envisagée pour implanter cette station. Sa situation aurait permis de tenir compte des apports de la Saône et de l'agglomération lyonnaise. Ce site n'a pas été retenu en raison d'une forte suspicion d'hétérogénéité des concentrations en MES dans la section de mesure en crue.

La station se trouve en effet en aval de la confluence Rhône-Saône et de l'aménagement CNR de Pierre Bénite. Cet aménagement, construit selon le schéma classique des aménagements de basse chute sur le Rhône, sépare le cours d'eau en deux bras : le Vieux-Rhône et le canal d'amenée (Cf. Fig. F.1a). La distance entre la confluence Rhône-Saône et l'aménagement de Pierre Bénite est d'environ 3 km (Cf. Fig. F.1b) et à l'aval, la distance entre la jonction du Vieux-Rhône et du canal d'amenée de Pierre-Bénite, et la station de Ternay située en rive gauche est d'environ 4 km (Cf. Fig. F.1c).

La longueur de bon mélange L_m est définie comme la longueur minimale d'un tronçon de cours d'eau permettant d'obtenir une concentration homogène d'une substance dissoute ou particulaire depuis son point d'injection, ou depuis une confluence entre deux cours d'eau de concentrations différentes. Cette longueur peut être très variable car elle dépend des caractéristiques du tronçon de cours d'eau et de la confluence considérée. Plusieurs formules empiriques ou semi-empiriques ont été proposées pour estimer L_m, selon les conditions d'écoulement et le type de cours d'eau. Elles doivent



(a) (b)

FIGURE F.1 – (a) Photo aérienne (source Google Earth) de la confluence Rhône-Saône en période de crue, avec le non mélange des eaux visible à la diffluence de l'aménagement de Pierre-Bénite ; (b) Photo aérienne (source Géoportail) de la confluence de l'aménagement de Pierre-Bénite et de la position de la station de Ternay (notée « turbidité »), extrait de Roux (2011).

être maniées avec précaution et ne fournissent que des ordres de grandeur. Pour un cours d'eau, on pourra appliquer classiquement la formule de Rimmar (Eq. F.1) (André *et al.*, 1976; Boiten, 2000).

$$L_m = K' \frac{W^2}{H} \tag{F.1}$$

avec W [m] et H [m] la largeur et la profondeur moyennes du cours d'eau, respectivement, et K' [sans dimension] un coefficient variant en pratique entre 5 et 10 (entre 3 et 27 dans les cas extrêmes). A partir d'une étude théorique sur un cas de confluence simplifié, Smith et Daish (1991) aboutissent à une formule qui dans le cas de deux cours d'eau de profondeurs équivalentes se réduit à la formule de Rimmar avec K'=10.

Dans le cas du Rhône après la confluence Rhône-Saône, W=300 m et H=10 m (mesures ADCP Cemagref 2006), ce qui donne une longueur de bon mélange L_m comprise entre 45 km (K'=5) et

90 km (K'=10). Selon Biron *et al.* (2004), la plupart des études de la littérature aboutissent à des longueurs de bon mélange L_m comprises entre 100 et 300 fois la largeur W du cours d'eau, soit entre 30 km et 90 km dans notre cas. Leur étude expérimentale d'une confluence asymétrique aboutit à une longueur L_m plus réduite, comprise entre 25 et 55 fois la largeur B du cours d'eau, soit entre 7,5 km et 16,5 km dans notre cas. La longueur de bon mélange de la confluence Rhône-Saône est donc vraisemblablement comprise entre 10 et 100 km, et est sans doute supérieure à 30 km (la confluence n'étant pas vraiment asymétrique).

Ainsi, les eaux du Rhône et de la Saône n'ont pas le temps de se mélanger avant la diffluence de l'aménagement CNR de Pierre-Bénite. La photo aérienne (Cf. Fig. F.1b) de la confluence Rhône-Saône en période de crue montre clairement, par différence de couleur, que les eaux des deux cours d'eau sont très peu mélangées avant leur séparation à la diffluence de l'aménagement de Pierre-Bénite. Cette observation est courante depuis les rives également. Au-dessus du débit d'équipement du canal (1040 m^3/s), l'excès de débit de crue est évacué dans le Vieux-Rhône qui peut alors véhiculer une part significative du débit total. En-deçà, le débit minimum biologique dans le Vieux-Rhône est fixé à 100 m^3/s. La même observation est valable pour le mélange des eaux entre le point de jonction du Vieux-Rhône et du canal de Pierre-Bénite, et la station de Ternay située en rive gauche environ 4 km en aval (Cf. Fig. F.1b). Les eaux n'ont à nouveau pas le temps de se mélanger avant les sections de mesure et de prélèvement.

Ce problème d'hétérogénéité avait été pointé par l'étude du Burgéap (Boudin, 2007) : "La station de Ternay ne permet pas de remplir les objectifs initialement souhaités en matière de suivi patrimonial du Rhône, et encore moins de permettre le calcul de flux polluants, à cause notamment des conditions de représentativité incertaines du point de mesure par rapport à une section moyenne et homogène du fleuve, et du manque de mesures spécifiques relatives aux MES". Du fait de cette forte suspicion d'hétérogénéité des concentrations à la station de Ternay, il a été décidé de développer la mesure particulaire au site de Jons. La station turbidimétrique de la Saône à Lyon-St-Georges permettant de mesurer la contribution de la Saône, les flux de MES et de contaminants particulaires en aval de Lyon peut être estimé en sommant les flux de Jons et de la Saône.

G Relations entre la concentration en MES et la turbidité pour les stations permanentes et temporaires sur le Rhône et ses affluents

C_s = concentration en MES (g/L)

T = turbidité en unité constructeur ou en NTU

Stations permanentes

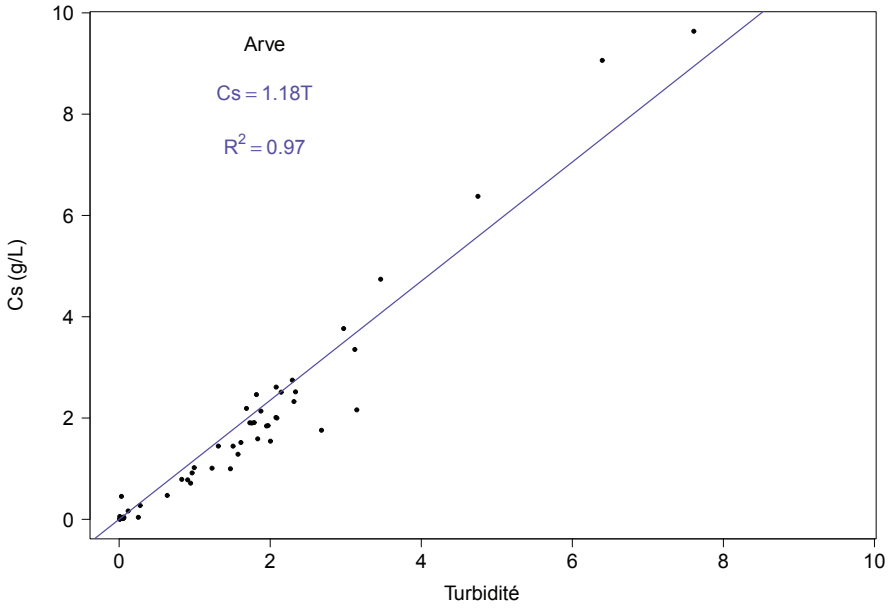


FIGURE G.1 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité de l'Arve à Bout-du-Monde

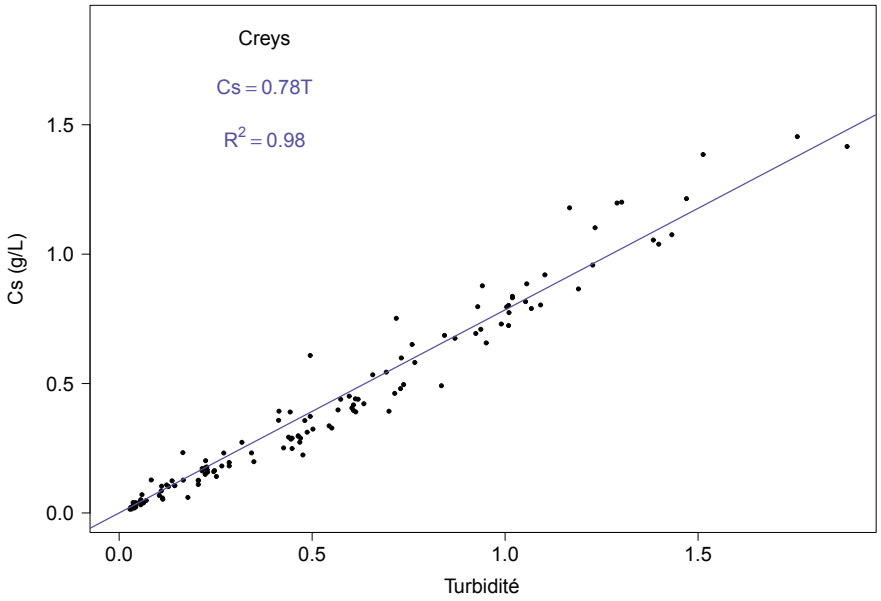


FIGURE G.2 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Creys

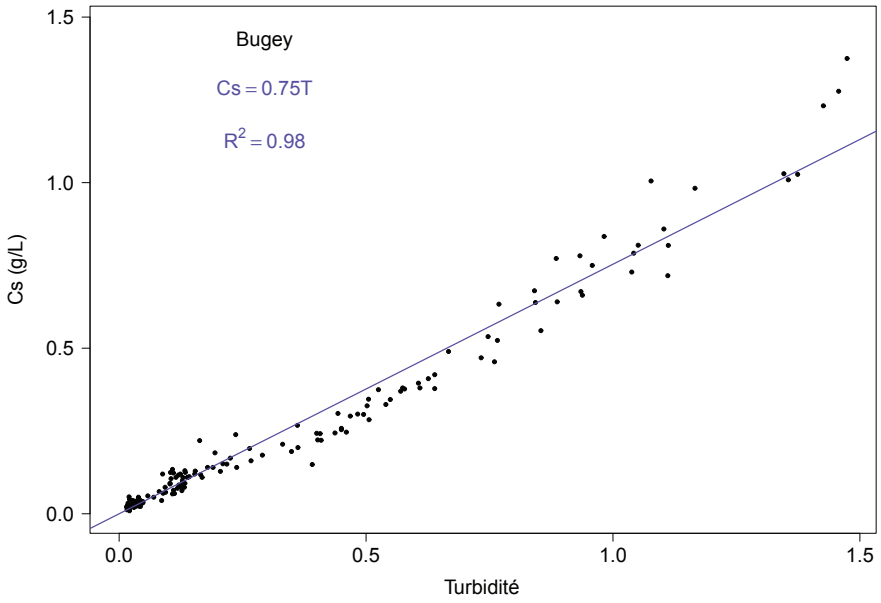


FIGURE G.3 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Bugey

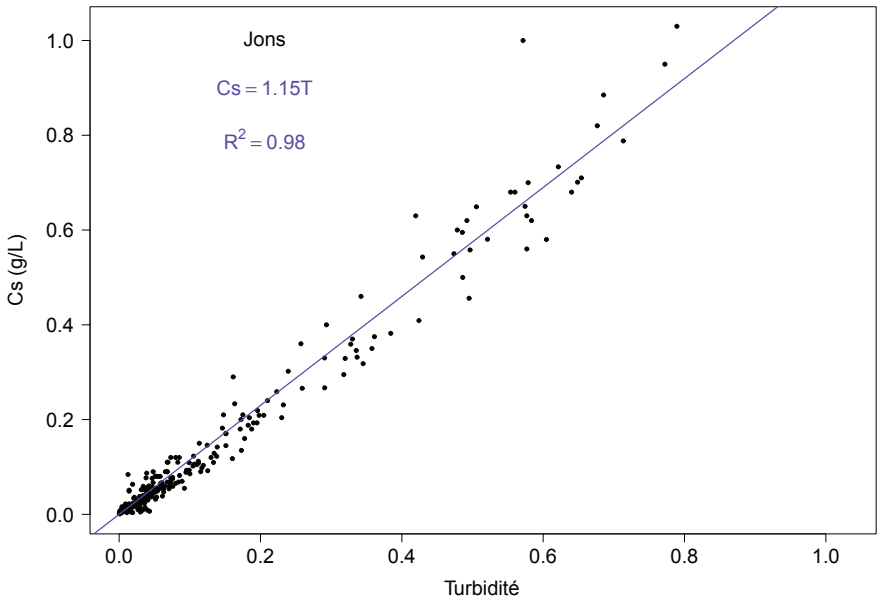


FIGURE G.4 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Jons

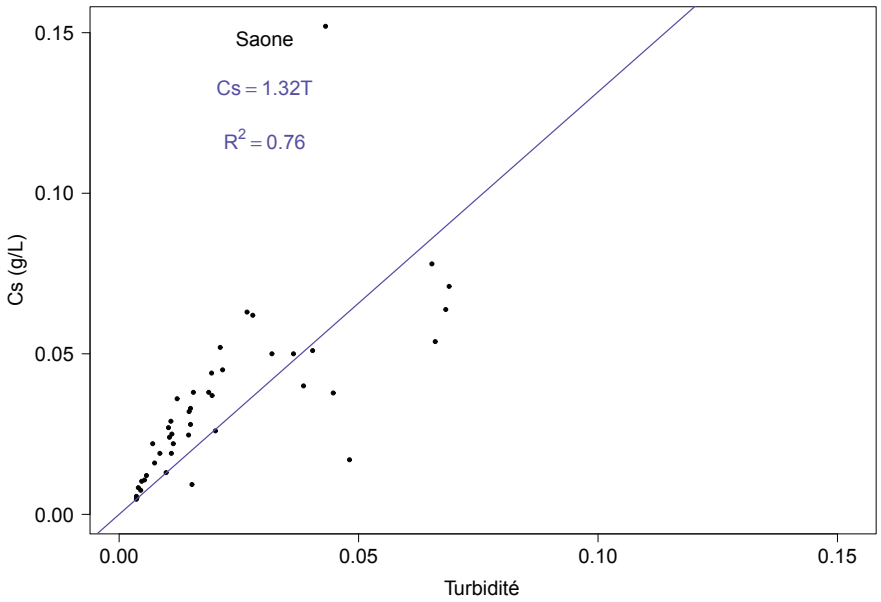


FIGURE G.5 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité de la Saône à Lyon

Stations temporaires

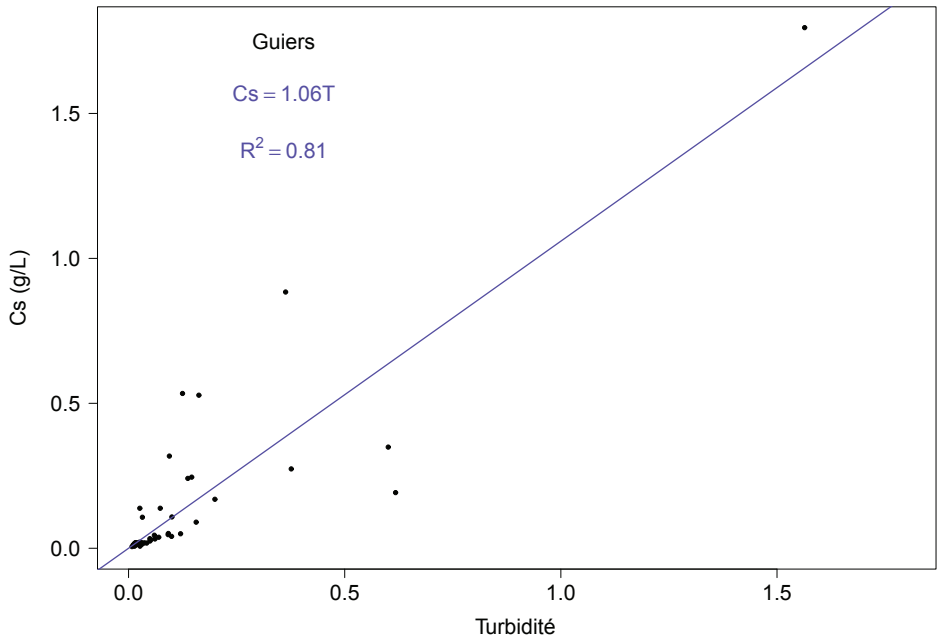


FIGURE G.6 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Guiers à Belmont

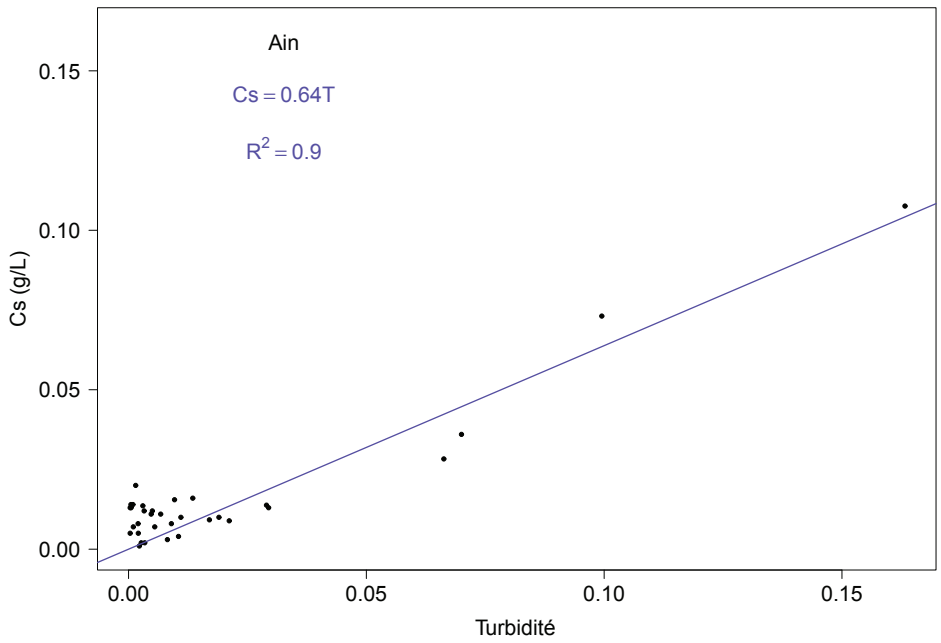


FIGURE G.7 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité de l'Ain à Port-Galland

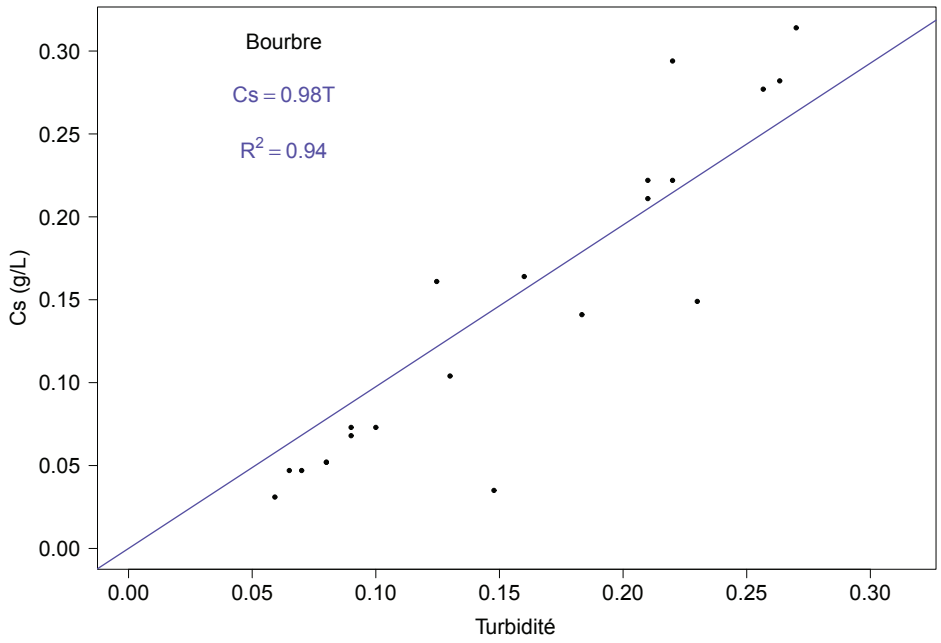


FIGURE G.8 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité de la Bourbre à Tignieu-Jameizieu

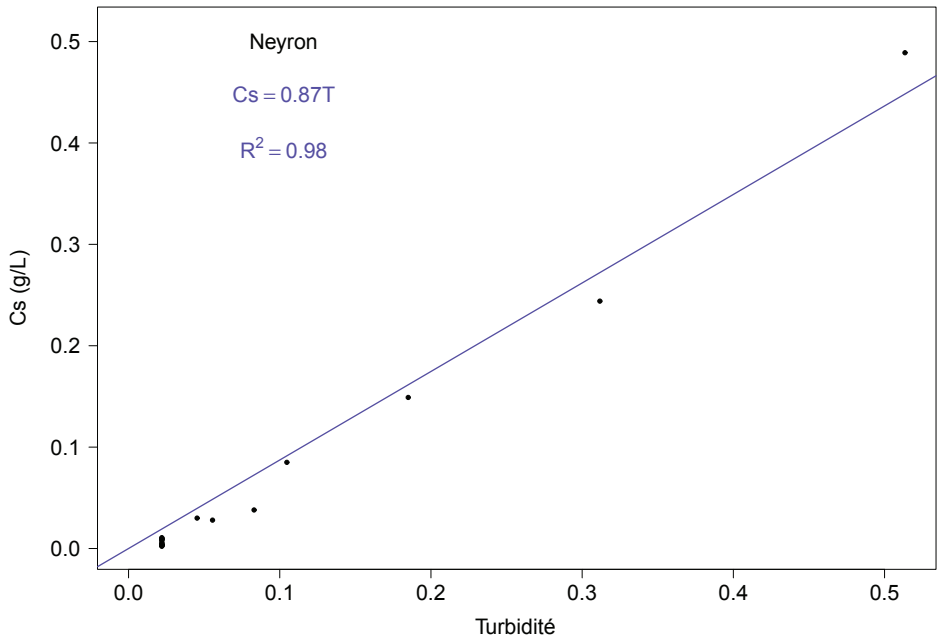


FIGURE G.9 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Neyron

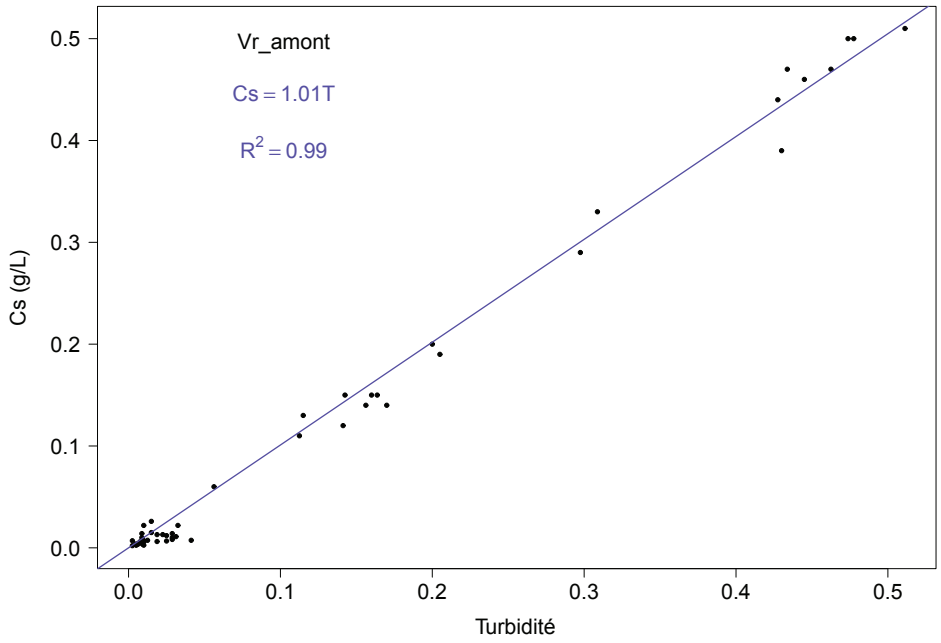


FIGURE G.10 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Vieux-Rhône amont

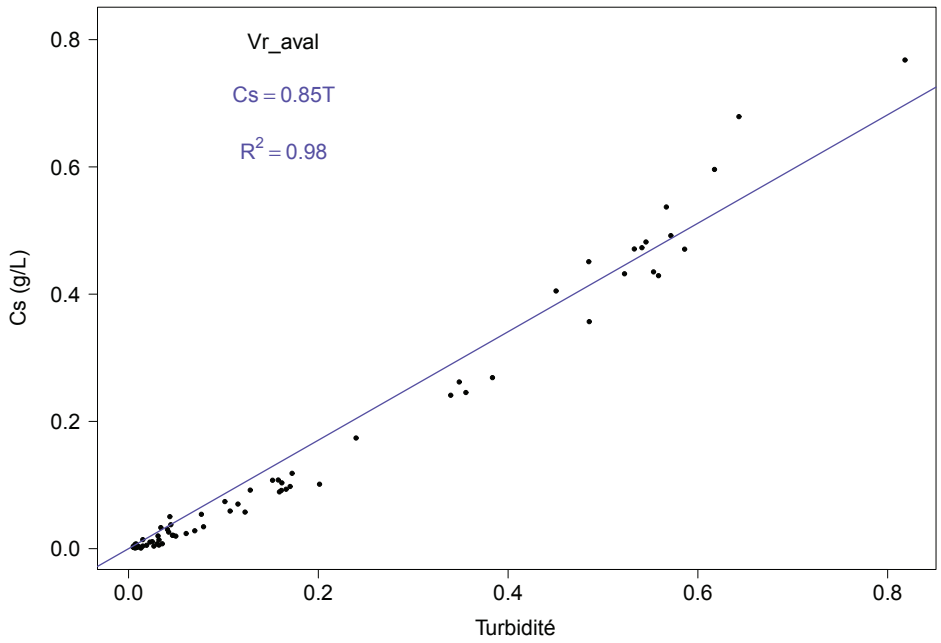


FIGURE G.11 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Vieux-Rhône aval

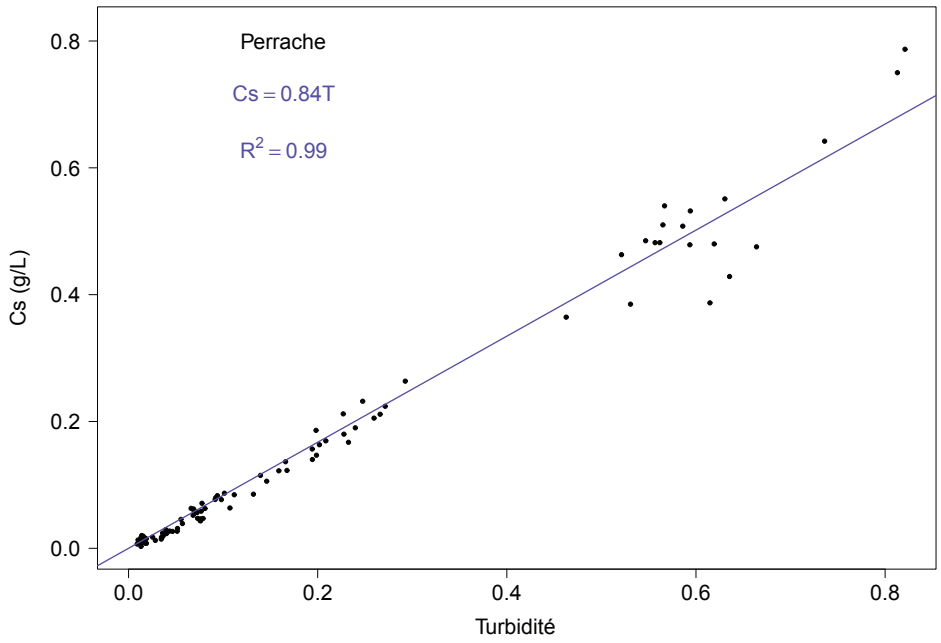


FIGURE G.12 – Relations entre la concentration en MES et la turbidité du Rhône à Perrache

H Détermination des débits dans la zone Miribel-Jonage

Des jaugeages avec un profileur Doppler de type aDcp ont été réalisés dans la zone de Miribel-Jonage au cours des opérations de chasse des barrages du Haut-Rhône de juin 2012 pour connaître la répartition des débits entre les différents bras. La Fig. H.1 permet de localiser les sections de jaugeage et le Tab. H.1 présente les débits horaires mesurés pendant les opérations de chasse.

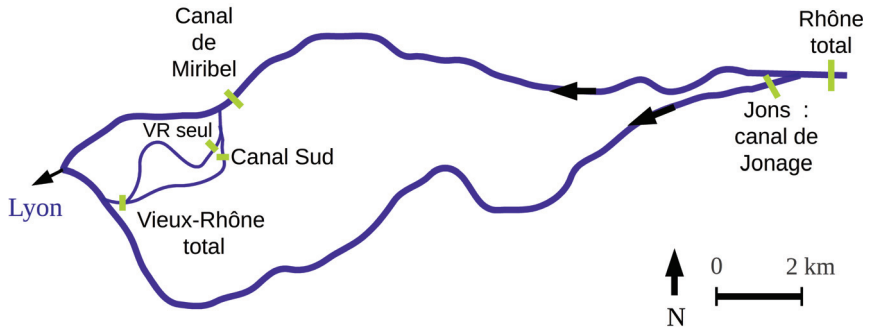


FIGURE H.1 – Localisation des sections de jaugeage dans la zone Miribel-Jonage (traits en vert). VR signifie Vieux-Rhône.

La répartition des débits entre le canal de Jonage et le canal de Miribel est contrôlée par le barrage de Jons. La consigne d'exploitation de l'usine de Cusset sur le canal de Jonage est de 640 m^3/s et le débit réservé du canal de Miribel est en général de 30 m^3/s (60 m^3/s si la cote du lac des eaux bleues est inférieure au seuil de saisonnalité). Les jaugeages effectués à plusieurs reprises ont cependant montré que le débit maximum dans le canal de Jonage était de 580 m^3/s et que le débit hors crue dans le canal de Miribel est de 90 m^3/s. Ainsi, lorsque le débit du Rhône total à l'amont de la diffluence est inférieur à 670 m^3/s, 90 m^3/s sont déversés dans le canal de Miribel et le reste transite dans le canal de Jonage. Lorsque le débit du Rhône total dépasse 670 m^3/s, 580 m^3/s passent dans le canal de Jonage et le reste est déversé dans le canal de Miribel. En se basant sur ces informations, une chronique de débit dans le canal de Miribel a été calculée à partir du débit à

Tableau H.1 – Mesures de débit (Q en m^3/s) par jaugeage aDcp dans le système Miribel-Jonage. CV = Coefficient de variation.

	Rhône total		**Vieux-Rhône seul**		**Canal Sud**	
Date Heures	Q (m^3/s)	CV	Q (m^3/s)	CV	Q (m^3/s)	CV
04/06/12 14h30			45	1		
05/06/12 15h00			38	2	13	4
06/06/12 14h00			18	1	6	2
07/06/12 10h00						
09/06/12 17h00						
13/06/12 9h00-11h00	1296	1,5 %	215	3 %	52	5 %
21/06/12 11h00			13	6	13	2

	Vieux-Rhône total		**Canal Miribel total**		**Canal Jonage**	
Date Heures	Q (m^3/s)	CV	Q (m^3/s)	CV	Q (m^3/s)	CV
04/06/12 14h30						
05/06/12 15h00	50					
06/06/12 14h00	25					
07/06/12 10h00			89	1 %		
09/06/12 17h00			294	1 %		
13/06/12 9h00-11h00	275	3 %	717		579	1 %
21/06/12 11h00	26					

Jons (obtenu à partir de la chronique horaire mesurée à Perrache par la CNR, en tenant compte du temps de propagation entre Jons et Perrache, déterminé avec le modèle hydraulique[1]). Les mesures de débit par jaugeage aDcp effectuées dans le canal de Miribel sont en accord avec la chronique de débits ainsi obtenue (Cf. Fig. H.2). CHIFFRER Pour obtenir une chronique de débit dans le Vieux Rhône seul, nous avons utilisé le modèle hydraulique 1D qui permet de répartir les débits entre le canal de Miribel et le Vieux-Rhône au niveau de la diffluence de Neyron. La chronique fournie par le modèle est également présentée sur la Fig. H.2. Elle est en accord avec les jaugeages aDcp dans le Vieux-Rhône. CHIFFRER

1. Mage-AdisTS modèle hydrodynamique 1D (Irstea ; code Mage : 2009 et code AdisTS : 2011), cf. Chap. 6

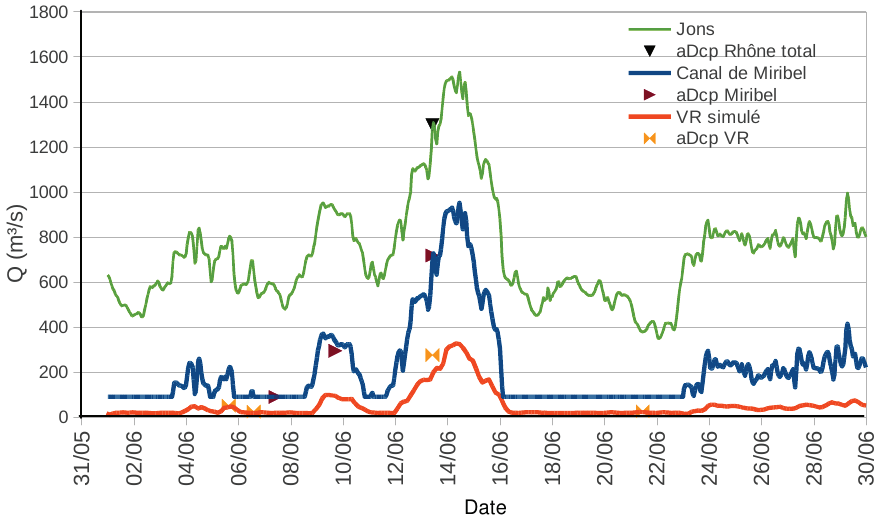


FIGURE H.2 – Débit à Jons (Q en m^3/s) (mesure CNR à Perrache décalée à Jons avec le modèle hydraulique pour tenir compte du temps de propagation), dans le canal de Miribel (chronique reconstituée à partir du débit à Jons et des informations sur la gestion du barrage de Jonage) et dans le Vieux-Rhône (VR, chronique reconstituée par modélisation) en juin 2012.

I Synthèse des données de débit, de concentrations en MES et de teneurs en contaminants réunies

Annexe 17 : Données de débit, de concentrations en MES et de teneurs en contaminants réunies

Tableau I.1 – Synthèse des stations de débit et des données collectées pour Rhône et ses affluents

Cours d'eau - *Station*	Surface drainée (km^2)	Module annuel (m^3/s)	Module spécifique ($m^3/s/km^{-2}$)	Débit de crue (m^3/s) 2 ans	10 ans	Données (et % données validées)
Rhône - *Genève*	8011	251	31,3	564	645	Qh[a] : 1997-2013 (100 %)
Arve - *Bout du monde*	1976	74,6	37,8	487	656	Qh[a] : 1974-2013 (100 %)
						Qj[a] : 1904-2013 (100 %)
Rhône - *Pougny*	10320	335	32,5	960	1200	Qh[b] : 1985-2013 (99,9 %)
Valserine - *Lancrans*	395	14,5	36,7	200	270	Qh[b] : 1996-2013 (96,8 %)
Usses - *Pont rouge*	182	3,3	18,1	86	140	Qh[b] : 1993-2013 (99,1 %)
Fier - *Motz*	1260	41,2	32,7	398	577	Qh[b] : 1999-2013 (99,8 %)
Rhône - *Pont de la loi*				1600	2210	Qh[b] : 1994-2013 (98,7 %)
Canal de Savières	560	10	17,9			Qh : 2001-2013 (97,1 %)
Séran - *Belmont Luthézieu*	158	1,31	8,291	47	78	Qh[c] : 1999-2013 (97,3 %)
Guiers - *Belmont*	585	16	27,3	121	250	Qh[b] : 1990-2013 (100 %)
Rhône - *Groslée*						Qh[b] : 1999-2013 (93,4 %)
Rhône - *Lagnieu*	15400	465	30,2	1300	1900	Qh[b] : 1991-2013 (99,8 %)
Bourbre - *Tignieu*	703	7,7	11,0	30	48	Qh[c] : 1981-2013 (100 %)
Ain - *Port Galland*	3765	104	27.6	860	1400	Qh[b] : 1984-2013 (99,7 %)
Rhône - *Anthon*						Qh[b] : 1979-2013 (87,9 %)
Rhône - *Perrache*	20300	600	29,6	2100	3100	Qh[b] : 1992-2013 (97,9 %)
Saône - *Couzon*	29908	473	15,8	1700	2400	Qh[b] : 1981-2013 (96,3 %)
Rhône - *Ternay*	50560	1030	20,4	2765	4450	Qh[b] : 1999-2013 (74,8 %)
Isère - *Grenoble*	5720	179	31	590	900	Qh[d] : 2000-2009 (97,0 %)
Isère - *Beaumont-Monteux*	11800	333	28	1200	1700	Qh[b] : 1997-2013 (100 %)
Durance - *Bonpas*	14225	62	4,5			Qh[b] : 1993-2013 (97,6 %)

[a] OFEV
[b] CNR
[c] DREAL
[d] LTHE

Tableau I.2 – Synthèse des données de concentrations en MES collectées sur le Haut-Rhône. Les mesures ponctuelles ont été réalisées soient par prélèvement manuel ou automatique, pycnomètre ou "crêpe" (Cf. §2.2 pour le détail des méthodes).

Cours d'eau - *Station*	Mesure	Dates données	Quantité de	Source
Arve - *Bout du monde*	Ponctuelle	07/01/1965-02/04/2013	3775	OFEV
	Turbidimètre	29/03/2012-25/03/2013	100 %	OFEV
Rhône - *Pougny*	Ponctuelle	22/02/1999 - 16/06/2012	261	CNR
Valserine - *Lancrans*	Ponctuelle	22/02/1999 - 07/12/2010	3	CNR
Rhône- *Génissiat*	Ponctuelle	04/06/2012 - 11/06/2012	136	CNR - Irstea
Usses - *Pont rouge*	Ponctuelle	22/02/1999 - 20/08/2012	13	CNR - Irstea
Rhône - *Seyssel*	Ponctuelle	22/02/1999 - 15/06/2012	548	Irstea - CNR
Fier - *Motz*	Ponctuelle	22/02/1999 - 20/08/2012	22	CNR - Irstea
Rhône - *Culoz*	Ponctuelle	04/06/2012 - 15/06/2012	66	CNR
Rhône - *pont de la loi*	Ponctuelle	22/02/1999 - 07/12/2010	66	CNR
Canal de Savières	Ponctuelle	21/08/2013	1	Irstea
Rhône - *Cressin-Rochefort*	Ponctuelle	04/06/2012 - 15/06/2012	66	CNR
Rhône - *Brens*	Ponctuelle	04/06/2012 - 15/06/2012	66	CNR
Rhône - *Massignieux*	Ponctuelle	04/06/2012 - 15/06/2012	66	CNR
Guiers - *Belmont*	Ponctuelle	22/02/1999 - 18/06/2012	58	CNR - Irstea
	Turbidimètre	05/04/2012 - 18/07/2012	90 %	Irstea
Rhône - *Groslée*	Ponctuelle	04/06/2012 - 15/06/2012	66	CNR
Rhône - *Creys*	Ponctuelle	22/02/1999 - 20/06/2012	137	EDF - Irstea
	Turbidimètre	30/10/2008 - 31/08/2012	97 %	EDF
Rhône - *Bugey*	Ponctuelle	19/05/2003 - 20/06/2012	192	CNR - EDF - Irstea
	Turbidimètre	29/10/2008 - 31/08/2012	100 %	EDF
Bourbre - *Tignieu*	Ponctuelle	02/01/2012 - 11/02/2013	42	Irstea
	Turbidimètre	20/10/2011 - 30/03/2012	92 %	Irstea
Ain - *Port Galland*	Ponctuelle	01/10/1998 - 21/11/2012	92	CNR - Irstea
	Turbidimètre	20/07/2012 - 16/01/2013	89 %	Irstea
Rhône - *Jons*	Ponctuelle	21/06/2011 - 05/02/2013	322	Irstea
	Turbidimètre	15/09/2010 - 22/01/2013	98 %	Véolia
Rhône - *Neyron*	Ponctuelle	04/06/2012 - 16/06/2012	23	Irstea
	Turbidimètre	01/06/2012 - 20/06/2012	100 %	Irstea
Rhône - *Vieux-Rhône amont*	Ponctuelle	04/06/2012 - 16/06/2012	55	Véolia - Irstea
	Turbidimètre	31/05/2012 - 17/06/2012	100 %	Irstea
Rhône - *Vieux-Rhône aval*	Ponctuelle	04/06/2012 - 16/06/2012	55	Irstea
	Turbidimètre	31/05/2012 - 16/06/2012	100 %	Irstea
Rhône - *Perrache*	Ponctuelle	04/06/2012 - 14/07/2012	111	Irstea
	Turbidimètre	31/05/2012 - 26/06/2012	100 %	Irstea
Saône - *Lyon*	Ponctuelle	17/08/1999 - 08/02/2013	131	CNR - Irstea
	Turbidimètre	02/12/2009 - 21/03/2013	67 %	CNR - Irstea
Isère - *Grenoble*	Ponctuelle	17/08/1999 - 08/02/2013	131	LTHE
Isère - *Beaumont-M.*	Turbidimètre	01/01/2011 - 31/08/2012	100 %	EDF
Durance - *Bonpas*	Turbidimètre	01/01/2011 - 31/08/2012	97 %	EDF
Rhône - *Arles*	Ponctuelle	17/08/1999 - 08/02/2013	131	IRSN - MIO

Tableau I.3 – Nombre de prélèvement (n), fréquence de quantification (FQ), teneur moyenne et écart-type du carbone organique particulaire (COP), du mercure et du PCB 28 du suivi OSR (2011-2013) aux stations de l'Arve à Bout du Monde, du Rhône à Pougny, des Usses à Pont Rouge, du Rhône à Seyssel, du Fier à Motz, du Canal de Savière, du Guiers à Belmont, de la Bourbre à Tignieu, de l'Ain à Pont de Chazey, du Rhône à Jons, du Rhône à Perrache, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay (rive gauche et rive droite), de la Durance et du Rhône à Arles ; LQ : limite de quantification

	Carbone organique particulaire											
	LQ = 0,05 g/kg											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (g/kg)	Ecart-type (g/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (g/kg)	Ecart-type (g/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (g/kg)	Ecart-type (g/kg)
Arve	4	100	55,2	44,3	0	-	-	-	1	100	20,4	-
R_Pougny					5	100	9,9	1,9	5	100	9,1	0,9
Usses	1	100	80,4	-								
R_Seyssel					10	100	13,3	4,6	10	100	8,6	2,8
Fier	1	100	45,6	-								
Canal de Savière	1	100	57,3	-								
Guiers	2	100	53,7	18,5	0	-	-	-	4	100	17,0	15,0
R_Creys	6	100	13,2	2,9					4	100	12,9	1,8
Bourbre	6	100	55,7	17,0	0	-	-	-	5	100	67,0	24,1
Ain	7	100	51,1	35,3	0	-	-	-	5	100	44,0	12,1
R_Jons	42	100	29,3	16,3	0	-	-	-	40	100	23,5	8,4
R_Perrache	0		-	-					0		-	-
Saône	13	100	42,9	11,6	0	-	-	-	3	100	39,8	5,8
R_Ternay (RD)									0	-	-	-
R_Ternay (RG)									0	-	-	-
Durance					6	100	12,2	6,9				
R_Arles	0	-	-	-	0		-	-				

	Mercure											
	LQ = 0,010 mg/kg											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (mg/kg)	Ecart-type (mg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (mg/kg)	Ecart-type (mg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (mg/kg)	Ecart-type (mg/kg)
Arve	3	100	0,046	0,016	0	-	-	-	1		0,029	-
R_Pougny					5	100	0,029	0,003	5	100	0,017	0,004
Usses	1	100	0,083	-								
R_Seyssel					10	100	0,038	0,012	10	100	0,024	0,007
Fier	1	100	0,143	-								
Canal de Savière	1	100	0,065	-								
Guiers	2	100	0,042	0,003	0	-	-	-	4	100	0,018	0,016
R_Creys	6	100	0,042	0,011					4	100	0,048	0,009
Bourbre	6	100	0,136	0,044	0	-	-	-	7	100	0,153	0,082
Ain	7	100	0,054	0,017	0	-	-	-	6	100	0,056	0,033
R_Jons	48	100	0,054	0,014	0	-	-	-	42	100	0,049	0,018
R_Perrache	0	-	-	-					2	100	0,061	0,004
Saône	14	100	0,221	0,157	0	-	-	-	4	100	2,304	2,448
R_Ternay (RD)									0	-	-	-
R_Ternay (RG)									2	100	0,192	0,035
Durance					6	100	0,071	0,011				
R_Arles	35	100	0,140	0,069	4	100	0,095	0,029				

	PCB 28											
	LQ = 0,50 (μg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (μg/kg)	Ecart-type (μg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (μg/kg)	Ecart-type (μg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (μg/kg)	Ecart-type (μg/kg)
Arve	4	0	0,3	0,0	0	-	-	-	2	0	0,3	0,0
R_Pougny					5	0	0,3	0,0	5	0	0,3	0,0
Usses	1	0	0,3	-								
R_Seyssel					10	0	0,3	0,0	10	0	0,3	0,0
Fier	1	100	1,9	-								
Canal de Savière	1	0	0,3	-								
Guiers	2	0	0,3	0,0	0	-	-	-	4	0	0,3	0,0
R_Creys	6	0	0,3	0,0					4	0	0,3	0,0
Bourbre	6	83	1,9	1,3	0	-	-	-	9	78	1,9	1,6
Ain	6	0	0,3	0,0	0	-	-	-	4	0	0,3	0,0
R_Jons	49	0	0,3	0,0	0	-	-	-	43	0	0,3	0,0
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	7	0,3	0,4	0	-	-	-	7	43	1,8	2,4
R_Ternay (RD)									1	0	0,3	-
R_Ternay (RG)									4	0	0,3	0,0
Durance					6	0	0,3	0,0				
R_Arles	34	12	0,3	0,2	3	0	0,3	0,0				

Tableau I.4 – Nombre de prélèvement (n), fréquence de quantification (FQ), teneur moyenne et écart-type des PCB 52, 101 et 118 du suivi OSR (2011-2013) aux stations de l'Arve à Bout du Monde, du Rhône à Pougny, des Usses à Pont Rouge, du Rhône à Seyssel, du Fier à Motz, du Canal de Savière, du Guiers à Belmont, de la Bourbre à Tignieu, de l'Ain à Pont de Chazey, du Rhône à Jons, du Rhône à Perrache, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay (rive gauche et rive droite), de la Durance et du Rhône à Arles ; LQ : limite de quantification

	PCB 52											
	LQ = 0,75 (µg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)
Arve	4	0	0,4	0,0	0	-	-	-	2	0	0,4	0,0
R_Pougny					5	0	0,4	0,0	5	0	0,4	0,0
Usses	1	0	0,4	-								
R_Seyssel					10	0	0,4	0,0	10	0	0,4	0,0
Fier	1	100	1,9	-								
Canal de Savière	1	0	0,4	-								
Guiers	2	0	0,4	0,0	0	-	-	-	4	0	0,4	0,0
R_Creys	6	33	0,6	0,3					4	0	0,4	0,0
Bourbre	6	100	3,6	1,6	0	-	-	-	9	100	6,5	3,4
Ain	6	0	0,4	0,0	0	-	-	-	4	0	0,4	0,0
R_Jons	49	0	0,4	0,0	0	-	-	-	43	0	0,4	0,0
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	13	0,5	0,4	0	-	-	-	7	43	5,4	7,9
R_Ternay (RD)									1	0	0,4	-
R_Ternay (RG)									4	0	0,4	0,0
Durance					6	0	0,4	0,0				
R_Arles	34	38	0,7	0,6	3	0	0,4	0,0				

	PCB 101											
	LQ = 0,50 (µg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)
Arve	4	75	2,4	1,9	0	-	-	-	2	100	1,1	0,2
R_Pougny					5	0	0,3	0,0	5	0	0,3	0,0
Usses	1	100	1,6	-								
R_Seyssel					10	0	1,0	0,3	10	100	0,7	0,6
Fier	1	100	6,6	-								
Canal de Savière	1	0	1,5	-								
Guiers	2	0	0,3	0,0	0	-	-	-	4		0,3	0,0
R_Creys	6	83	0,9	0,5					4	50	0,7	0,6
Bourbre	6	100	7,8	2,6	0	-	-	-	9	100	11,9	4,0
Ain	6	33	0,4	0,2	0	-	-	-	4		0,3	0,0
R_Jons	49	4	1,4	0,8	0	-	-	-	43	100	1,4	0,6
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	100	2,5	0,9	0	-	-	-	7	100	9,2	9,7
R_Ternay (RD)									1	100	3,7	-
R_Ternay (RG)									4	100	6,4	1,8
Durance					6	17	0,3	0,1				
R_Arles	34	100	2,7	1,0	3	67	0,8	0,7				

	PCB 118											
	LQ = 0,75 (µg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)
Arve	4	75	1,1	0,5	0	-	-	-	2	50	0,6	0,3
R_Pougny					5	0	0,4	0,0	5	0	0,4	0,0
Usses	1	0	0,4	-								
R_Seyssel					10	10	0,4	0,0	10	0	0,4	0,2
Fier	1	100	4,9	-								
Canal de Savière	1		0,4	-								
Guiers	2	0	0,4	0,0	0	-	-	-	4	0	0,4	0,0
R_Creys	6	17	0,5	0,2					4	0	0,4	0,0
Bourbre	6	100	5,8	1,7	0	-	-	-	9	100	9,9	3,2
Ain	6	17	0,5	0,2	0	-	-	-	4	0	0,4	0,0
R_Jons	49	47	0,8	0,6	0	-	-	-	43	51	0,7	0,5
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	100	1,8	0,9	0	-	-	-	7	100	7,7	9,8
R_Ternay (RD)									1	100	1,5	-
R_Ternay (RG)									4	100	3,8	0,7
Durance					6	0	0,4	0,0				
R_Arles	34	94	2,0	1,7	3	0	0,4	0,0				

Tableau I.5 – Nombre de prélèvement (n), fréquence de quantification (FQ), teneur moyenne et écart-type des PCB 132, 153 et 180 du suivi OSR (2011-2013) aux stations de l'Arve à Bout du Monde, du Rhône à Pougny, des Usses à Pont Rouge, du Rhône à Seyssel, du Fier à Motz, du Canal de Savière, du Guiers à Belmont, de la Bourbre à Tignieu, de l'Ain à Pont de Chazey, du Rhône à Jons, du Rhône à Perrache, de la Saône à Lyon, du Rhône à Ternay (rive gauche et rive droite), de la Durance et du Rhône à Arles ; LQ : limite de quantification

	PCB 138											
	LQ = 0,50 (µg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)
Arve	4	100	3,1	2,3	0	-	-	-	2	100	1,4	0,8
R_Pougny					5	100	0,7	0,1	5	60	0,5	0,2
Usses	1	100	10,0	-								
R_Seyssel					10	100	1,6	0,4	10	100	1,1	0,7
Fier	1	100	12,9	-								
Canal de Savière	1	100	6,0	-								
Guiers	2	100	0,8	0,2	0	-	-	-	4	25	0,4	0,4
R_Creys	6	100	1,9	0,8					4	100	2,0	0,8
Bourbre	6	100	8,0	2,2	0	-	-	-	9	100	13,0	5,7
Ain	6	100	1,8	0,6	0	-	-	-	4	100	0,9	0,3
R_Jons	49	100	2,6	1,4	0	-	-	-	43	100	2,5	1,2
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	100	6,7	6,9	0	-	-	-	7	100	9,8	8,6
R_Ternay (RD)									1	100	9,1	-
R_Ternay (RG)									4	100	11,7	3,4
Durance					6	67	0,7	0,3				
R_Arles	34	100	7,4	4,1	3	100	1,4	0,8				

	PCB 153											
	LQ = 0,50 (µg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)
Arve	4	100	3,3	2,1	0	100	-	-	2	100	1,6	1,1
R_Pougny					5	100	0,7	0,1	5	60	0,4	0,2
Usses	1	100	8,8	-								
R_Seyssel					10	100	1,5	0,4	10	90	1,0	0,7
Fier	1	100	12,8	-								
Canal de Savière	1	100	5,8	-								
Guiers	2	100	1,2	0,5	0	-	-	-	4	25	0,4	0,4
R_Creys	6	100	1,8	0,9					4	100	1,9	1,1
Bourbre	6	100	9,6	3,1	0		-	-	9	100	13,3	4,8
Ain	6	100	1,7	0,4	0	-	-	-	4	75	1,0	0,7
R_Jons	49	100	2,7	1,4	0	-	-	-	43	100	2,5	1,0
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	100	5,7	4,4	0	-	-	-	7	100	9,8	8,9
R_Ternay (RD)									1	100	7,9	-
R_Ternay (RG)									4	100	11,0	2,6
Durance					6	67	0,5	0,2				
R_Arles	34	100	6,0	2,7	3	100	1,4	0,7				

	PCB 180											
	LQ = 0,50 (µg/kg)											
	Centrifugation				Manuel composite				Piège à sédiments			
	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)	n	FQ (%)	Moyenne (µg/kg)	Ecart-type (µg/kg)
Arve	4	75	2,0	1,6	0	-	-	-	2	50	0,9	1,0
R_Pougny					5	40	0,4	0,1	5	0	0,3	0,0
Usses	1	100	6,3	-								
R_Seyssel					10	90	0,8	0,3	10	20	0,4	0,3
Fier	1	100	13,2	-								
Canal de Savière	1	100	1,9	-								
Guiers	2	0	0,3	0,0	0	-	-	-	4	0	0,3	0,0
R_Creys	6	83	1,0	0,5					4	100	1,2	0,4
Bourbre	6	100	3,5	0,9	0	-	-	-	9	100	5,5	2,8
Ain	6	100	1,0	0,3	0	-	-	-	4	50	0,5	0,4
R_Jons	49	94	1,4	0,9	0	-	-	-	43	100	1,4	0,8
R_Perrache	0	-	-	-					0	-	-	-
Saône	15	100	3,8	2,7	0	-	-	-	7	100	7,7	6,9
R_Ternay (RD)									1	100	11,5	-
R_Ternay (RG)									4	100	10,7	1,6
Durance					6	50	0,4	0,2				
R_Arles	34	94	3,1	1,4	3	67	0,8	0,7				

J Difficulté des comparaisons de bilans de dépôt et de flux

Dans son étude sur l'Arve, Collet (1925) applique un facteur de 2,1 au flux de MES obtenu à partir de prélèvement de surface pour obtenir le flux de "suspension totale" (sables en suspension hétérogène inclus) circulant dans la section. Selon la problématique étudiée, il est capital de ne pas confondre les deux flux qui correspondent à des populations sédimentaires très différentes en termes de granulométrie, d'affinité pour les contaminants hydrophobes, et de comportement mécanique (cohésion, transport, dépôt et resuspension). Il est toutefois courant que la distinction ne soit pas clairement établie et que les deux flux soient comparés ; c'est notamment le cas dans l'Etude Globale Rhône (Hydratec, 2003), qui fait actuellement référence pour les flux de MES moyen dans le Rhône et ses affluents.

Dans cette thèse, notre propos est centré sur les flux de MES de surface, excluant les sables. Il peut toutefois être intéressant d'établir une comparaison entre les flux de MES de surface et les flux de suspension totale. L'application d'un simple facteur 2,1 pour englober le flux de sables dans la valeur de flux total, comme proposé par Collet (1925), est extrêmement hasardeuse, comme le soulignait déjà Pardé (1942). En l'absence de mesures récentes, fréquentes et directes de ce flux de suspension grossière, la meilleure information à notre disposition provient du suivi des dépôts de sédiments dans les retenues des aménagements hydroélectriques.

Nous disposons ainsi des données du suivi suisse du comblement et de la granulométrie des sédiments de la retenue de Verbois, qui reçoit un flux de sédiments quasi exclusivement issu de l'Arve, le Rhône en sortant du Léman ne transportant qu'une charge sédimentaire négligeable. Les variations annuelles de stock sédimentaire volumique de la retenue du barrage de Verbois sont en effet estimées depuis 2004 par SIG au moyen d'un modèle 3D construit sur des relevés bathymétriques réalisés une fois tous les trois ans. De plus, durant la chasse de 2012, Irstea a effectué des mesures de la granulométrie des dépôts et des MES prélevées manuellement en surface et à l'aide d'un piège à

sédiments à Pougny.

Le comblement moyen annuel de la retenue de Verbois est estimé à 360 000 m^3/an par les SIG qui réalisent depuis 2004 des mesures bathymétriques de la retenue une fois tous les trois ans. Ces dépôts présentent une granulométrie fine, par conséquent ils ne sont pas uniquement constitués par le piégeage de la suspension de sables, mais aussi en partie par de la suspension fine (MES). En 2009, des carottes de sédiment ont été prélevées dans quatre zones de l'amont à l'aval de la retenue de Verbois, dans des dépôts remobilisables par les chasses (Loizeau, 2009). L'analyse granulométrique des matériaux indique un fort gradient longitudinal, avec un taux de particules de diamètre supérieur à 63 μm égal à 9 %, 49 %, 77 % et 84 % pour les quatre zones de l'amont vers l'aval. La fraction argileuse est quasiment négligeable partout.

Ces mesures sont cohérentes avec les analyses granulométriques qui ont été effectuées par l'OSR en juin 2012 sur des sédiments remobilisés par les opérations de chasse du barrage de Verbois. Les prélèvements ont été effectués à Pougny soit manuellement en surface (MES), soit à l'aide d'un piège à sédiments placé en berge sur un escalier immergé (incluant de la suspension hétérogène). Dans les deux types d'échantillons, les modes granulométriques suivants ont été obtenus en décomposant les distributions granulométriques (cf. détail de la méthode au §3.4.2) : sable fin (d=85-107 mum), limon (d=15–63 mum), limon fin/argile (d=3-8 mum). Les proportions de ces fractions diffèrent cependant pour les deux types de prélèvement. Le sable est absent des prélèvements manuels en surface mais représente de 50 à 60 % des particules du piège à sédiments, exposé à la suspension hétérogène. La fraction la plus fine ne représente que 10 % des deux types d'échantillons.

Convertir les volumes de dépôt en masses de sédiment sec nécessite de connaître la densité des matériaux en place. Les densités de matériau sec des carottes prélevées par l'institut Forel (Loizeau, 2009) présentent une décroissance de l'amont vers l'aval de la retenue : 1400, 1315, 1365, 1200 kg/m^3, avec une moyenne de 1320 kg/m^3. Ces valeurs sont cohérentes avec celles classiquement indiquées pour des sédiments de retenue immergés en permanence, notamment par le Erosion and Sedimentation Manual (USDI, 2006), voir Tab.J.1. En considérant les valeurs minimale, maximale et moyenne des densités observées, la masse stockée annuellement dans Verbois serait donc comprise entre 0,43 Mt et 0,50 Mt, avec une valeur la plus probable de 0,47 Mt/an.

Des prélèvements automatisés de MES sont réalisés par les services de l'OFEV en aval des turbines de Verbois depuis 2008. Le prélèvement est effectué à 1-2 mètres de profondeur avec un échantillonneur automatique asservi au débit, qui transfère de l'eau dans un bidon de 12 L sur une semaine. La section de mesure est considérée comme bien mélangée. Cependant, la position en aval

Tableau J.1 – Densité des sédiments en fonction de leur classe granulométrique, issu du Erosion and Sedimentation Manual (USDI, 2006)

	W (kg/m^3)
Argiles (d<4 μm)	416
Limons (4<d<62 μm)	1200
Sables (d>62 μm)	1500

de l'usine peut faire rater le prélèvement des fortes concentrations engendrées par l'ouverture des vannes du barrage, comme cela s'est produit pendant la chasse de juin 2012 typiquement.

A la fin de la semaine, une analyse MES par filtration est effectuée et indique la concentration moyenne (pondération par rapport au débit) sur la semaine. Une limite de la méthode de mesure de la concentration en MES réside dans le faible nombre d'échantillons par an (52), ce qui donne un poids important à chaque valeur et une mesure erronée peut influencer significativement le bilan annuel. En effet, il arrive que le volume prélevé excède les 12 L disponibles et conduise à une surverse du surnageant. Cette surestimation des concentrations est susceptible de survenir surtout pendant les périodes de fort débit, d'où une surestimation potentiellement importante des flux calculés. Le flux d'eau sur la semaine évalué à partir des débits journaliers est multiplié à la concentration moyenne sur la semaine pour obtenir le flux de MES hebdomadaire. On obtient une moyenne de 0,90 Mt/an sur les années 2008 à 2011, avec une valeur plus faible en 2011 (0,63 Mt) liée à la faible hydraulicité de l'année.

Avec ce bilan, le flux de suspension totale (sables et MES) issu de l'Arve serait donc d'environ de 1,3 Mt/an à 1,4 Mt/an ces dernières années, soit à peu près le double du flux de MES moyen quantifié sur l'Arve. Cependant, il n'est pas réaliste que le flux à l'aval de Verbois soit égal voire légèrement supérieur à la totalité du flux de MES de l'Arve, et cette mesure est jugée surestimée et peu fiable. Les mesures de concentration MES à l'aval de Verbois pour l'année 2012 sont en moyenne supérieures aux concentrations calculées à partir des apports amont. En effet, sur les 28 enregistrements de la période de fonctionnement de la station turbidimétrique de l'Arve, 18 valeurs présentent un flux supérieur aux entrants, avec en moyenne un écart de +77 %. Les 10 autres valeurs présentent des écarts négatifs énormes, notamment pendant la chasse de juin 2012 (seulement 130 mg/L pendant la semaine de chasse de Verbois), ce qui doit être dû à la zone de stagnation créée au niveau du point de prélèvement lorsque l'aménagement ne turbine pas.

En faisant l'hypothèse pas si irréaliste que la totalité du sable issu de l'Arve est piégé dans la retenue de Verbois, et en considérant que la moitié voire les trois quarts de ces 0,45 Mt/an sont

constitués de MES fines, on aboutit à un flux d'Arve de 0,11 à 0,22 Mt de sables pour 0,64 à 0,78 Mt de MES, dont seulement 0,22 à 0,33 Mt, soit du quart à la moitié, seraient arrêtées dans la retenue de Verbois. De telles estimations du flux de sables et du taux de dépôt dans la retenue de Verbois restent très incertaines, et appelleraient des observations plus détaillées.

Cet exemple nous permet de souligner l'importance de distinguer les flux de MES et de suspension totale. Le problème de la quantification du flux de suspension totale réside dans la quantification du sable, qui est difficilement mesurable. Il n'est par exemple pas échantillonné lorsqu'on réalise des prélèvements de surface. Il n'est en général pas mesuré par un turbidimètre placé dans la partie supérieure de l'écoulement, et lorsqu'il est mesuré par le turbidimètre, il fausse la relation de calibration entre turbidité et MES.

La réalisation de bilan entre les dépôts dans les retenus et les flux de MES est au cœur de cette question de mesure du sable. En effet, les bilans ne peuvent pas être équilibrés, puisque les dépôts dans les retenus sont composés en partie de sable, qui n'est pas mesuré dans les flux de MES. La présence de ce sable est très dépendante des aménagements.

Bilans de flux de MES annuels sur le Haut-Rhône

Les flux de MES calculés pour les années hydrologiques de 2000 à 2012 pour les stations du Rhône amont, les principaux affluents et la Saône sont présentés dans les Tab. K.1, Tab. K.2, Tab. K.3 Tab. K.4 et Tab. K.5, qui représentent cinq zones géographiques de l'amont vers l'aval du Haut-Rhône. L'écart entre les apports amont et le flux passé au niveau de la station située sur le Rhône à l'aval de ces apports est présenté pour chaque tableau. Pour les stations de Jons, Creys, Bugey, de l'Arve et de la Saône, où la concentration en MES est mesurée en continu, les flux mesurés sont indiqués en rouge à côté des flux calculés.

Pour les stations permanentes situées sur le Rhône, le flux mesuré de l'année 2010-2011 est supérieur au flux mesuré, tandis que pour l'année 2011-2012, le flux mesuré est supérieur. L'année 2011-2012 comprend la période des chasses du Haut-Rhône, en juin 2012, et il semble que la méthode de calcul des flux utilisée, i.e. l'établissement d'une relation Cs(Q) pondérée par la racine du flux (cf. §4.2.1), conduit à une sous-estimation du flux en période de chasse, alors que la concentration en MES est plus importante que celle ordinairement mesurée pour un même débit. L'année hydrologique 2002-2003 correspond également à une année de chasse des barrages du Haut-Rhône et il est donc probable que les flux de MES calculés au niveau des stations sur le Rhône soit sous estimé.

Les écarts entre les apports amont et le flux de MES calculé au niveau de la station correspondante située sur le Rhône à l'aval de ces apports permettent d'établir des bilans de masse. Des écarts négatifs indiquent que la somme des apports amont est plus importante que le flux calculé à l'aval. Des écarts négatifs peuvent indiquer qu'une partie des MES apportées par les affluents et le Rhône amont s'est déposée entre les stations de mesure amont et la station aval.

Le Tab. K.1 présente la zone la plus à l'amont du Haut-Rhône, entre le lac Léman et le Pont de la Loi. Le bilan de matière est réalisé en faisant l'hypothèse que les eaux sortant du Léman ne transportent pas de MES et que les apports du Rhône en amont de la confluence avec l'Arve sont

Tableau K.1 – Flux de MES annuels calculés de l'Arve, de la Valserine, des Usses, du Fier et du Rhône à Pont de la Loi pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge.

	Apports MES amont (Mt)				F_{MES} Aval (Mt)	Ecart
	Arve	Valserine	Usses	Fier	*Pont de la loi*	(%)
2000 - 2001	1.25	0.043	0.13	0.54	2.1	+5
2001 - 2002	0.37	0.017	0.034	0.11	0.35	-52
2002 - 2003	0.58	0.036	0.066	0.31	1.3	+22
2003 - 2004	0.50	0.028	0.023	0.21	1.0	+26
2004 - 2005	0.30	0.031	0.056	0.11	0.50	+2
2005 - 2006	0.65	0.033	0.051	0.23	0.85	-14
2006 - 2007	0.97	0.034	0.046	0.26	1.2	-10
2007 - 2008	0.45	0.035	0.031	0.17	0.57	-22
2008 - 2009	0.31	0.020	0.038	0.12	0.55	+11
2009 - 2010	0.43	0.025	0.042	0.16	0.45	-45
2010 - 2011	0.32	0.016	0.012	0.16	0.33	-52
2011 - 2012	0.42 0.35	0.030	0.050	0.20	0.55	-27
Moyenne	0.54	0.029	0.048	0.21	0.81	-4
Ecart-type	0.29	0.0082	0.030	0.12	0.51	+12
CV (%)	53.4	28.2	61.7	56.1	63.4	-215

négligeables. L'alternance d'écarts positifs et négatifs dans cette zone indiquent des années de dépôt des MES et des années de reprise. Les dépôts de MES se font probablement derrière les retenues de Verbois, de Génissiat et de Seyssel présentes dans cette zone et les variations des écarts d'une année à l'autre doivent être liées à la gestion des ouvrages en période de crues et notamment en cas de crue de l'Arve.

Dans la zone entre le Pont de la Loi et Creys, présentée dans le Tab. K.2, les écarts entre les apports amont et le flux aval sont négatifs pour la plupart des années. La section du Rhône entre le Pont de la Loi et Creys semble donc être une zone d'important dépôt des MES, avec en moyenne sur les années 2000 à 2012 un écart de -27 % entre les flux amont et le flux à Creys. Sur ce tronçon, les aménagements CNR de Belley et Brégnier-Cordon, où le Rhône se sépare en deux bras, constituent des zones de diminution des vitesses et de dépôt des MES. Notons également que dans cette zone, deux apports ne sont pas pris en compte dans les calculs, ceux du Séran et du Canal de Savière, qui bien qu'étant probablement modeste, viennent augmenter la différence entre les apports amont et le flux aval.

La section entre Creys et Bugey (cf. Tab. K.3) semble également être une zone de dépôt de MES, avec un écart moyen de -22 % entre les deux stations. Ce qui s'explique notamment par la présence de l'aménagement de Sault-Brénaz sur ce tronçon du Rhône. Le dépôt des MES est favorisé par la

Tableau K.2 – Flux de MES annuels calculés du Rhône à Pont de la Loi, du Guiers et du Rhône à Creys pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge.

	Apports MES amont (Mt)		F_{MES} Aval (Mt)	Ecart
	Pont de la loi	Guiers	*Creys*	(%)
2000 - 2001	2.1	0.13	1.7	-30
2001 - 2002	0.35	0.24	0.46	-29
2002 - 2003	1.3	0.073	0.98	-36
2003 - 2004	1.0	0.031	0.53	-99
2004 - 2005	0.50	0.062	0.42	-35
2005 - 2006	0.85	0.036	0.66	-33
2006 - 2007	1.2	0.047	0.93	-33
2007 - 2008	0.57	0.054	0.61	-1
2008 - 2009	0.55	0.073	0.50	-24
2009 - 2010	0.45	0.043	0.50	0
2010 - 2011	0.33	0.045	0.33 0.29	-12
2011 - 2012	0.55	0.070	0.60 0.73	-3
Moyenne	0.81	0.076	0.69	-29
Ecart-type	0.51	0.059	0.38	-52
CV (%)	63.4	77.9	54.8	-158

présence de la retenue, comme nous l'avons montré au §4.3.1.

Tableau K.3 – Flux de MES annuels calculés du Rhône à Creys et à Bugey pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge.

	F Amont (Mt)	F_{MES} Aval (Mt)	Ecart
	Creys	*Bugey*	(%)
2000 - 2001	1.7	1.7	+ 1
2001 - 2002	0.46	0.35	-33
2002 - 2003	0.98	0.94	-4
2003 - 2004	0.53	0.43	-21
2004 - 2005	0.42	0.31	-32
2005 - 2006	0.66	0.56	-18
2006 - 2007	0.93	0.82	-13
2007 - 2008	0.61	0.50	-25
2008 - 2009	0.50	0.39	-27
2009 - 2010	0.50	0.36	-36
2010 - 2011	0.33 0.29	0.25 0.23	-34
2011 - 2012	0.60 0.73	0.48 0.54	-26
Moyenne	0.69	0.60	-16
Ecart-type	0.38	0.41	+ 9
CV (%)	54.8	69.5	+ 21

Tableau K.4 – Flux de MES annuels calculés du Rhône à Bugey, de la Bourbre, de l'Ain et du Rhône à Jons pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Comparaison des apports amont avec le flux aval. Les flux de MES mesurés aux stations permanentes sont indiqués en rouge.

	Apports MES amont (Mt)			F_{MES} Aval (Mt)	Ecart
	Bugey	Bourbre	Ain	*Jons*	(%)
2000 - 2001	1.7	0.025	0.11	1.9	+2
2001 - 2002	0.35	0.012	0.028	0.25	-55
2002 - 2003	0.94	0.024	0.093	1.4	+22
2003 - 2004	0.43	0.013	0.041	0.51	+5
2004 - 2005	0.31	0.016	0.059	0.43	+10
2005 - 2006	0.56	0.012	0.063	0.68	+7
2006 - 2007	0.82	0.012	0.069	0.88	-2
2007 - 2008	0.49	0.012	0.074	0.59	+2
2008 - 2009	0.39	0.018	0.045	0.41	-11
2009 - 2010	0.36	0.016	0.035	0.35	-19
2010 - 2011	0.25 0.23	0.010	0.027	0.28 0.29	-1
2011 - 2012	0.48 0.54	0.016	0.064	0.60 0.69	+7
Moyenne	0.59	0.015	0.059	0.69	+3
Ecart-type	0.41	0.0049	0.026	0.49	+9
CV (%)	69.5	31.9	44.4	71.0	-105

La zone entre Bugey et Jons détaillée dans Tab. K.4 présente un écart moyen de -2 % pour les années 2000 à 2012. Les apports amont transitent donc en moyenne sans dépôt ni reprise dans cette zone, dans laquelle aucun aménagement n'est présent.

Pour la Saône, dont les flux sont présentés dans le Tab. K.5, l'écart relatif entre le flux mesuré et le flux calculé est variable pour les trois années de mesure, allant de -20 % à +20 %. Cette variabilité est due à la grande dispersion des données autour de la relation Cs(Q) établie pour cette station et présentée au Chap. 4. Le nuage de points semble constitué de deux ensembles, l'un pour lequel les concentrations en MES augmentent en même temps que les débits, et l'autre pour lequel les concentrations en MES sont élevées, jusqu'à 1 g/L, pour des débits restant faibles, de 20 à 200 m^3/s. Ce double fonctionnement hydro-sédimentaire de la Saône n'est pas du tout reproduit par la relation Cs(Q) pondérée par la racine du flux utilisée pour les calculs. La recherche d'une relation prenant en compte les apports par les affluents de la Saône proches de Lyon, tels que l'Azergues, devrait permettre d'améliorer le calcul des apports en MES de la Saône.

Les flux de MES annuels aux stations du Rhône à Perrache et Neyron n'ont pas pu être calculés par cette méthode de calcul. Les données de MES disponibles couvrent principalement la période des chasses de juin 2012, pour laquelle les flux ont pu être déterminés. Mais la relation Cs(Q) obtenue à partir de ces données uniquement ne permet pas de déterminer le flux hors période de chasse. En effet, en chasse, la concentration en MES correspondant à un débit est supérieure à la concentration

Tableau K.5 – Flux de MES annuels calculés de la Saône à Lyon pour les années hydrologiques de 2000 à 2012. Les flux de MES mesurés sont indiqués en rouge.

	F (Mt)
	Saône
2000 - 2001	0.78
2001 - 2002	0.34
2002 - 2003	0.52
2003 - 2004	0.34
2004 - 2005	0.42
2005 - 2006	0.43
2006 - 2007	0.44
2007 - 2008	0.39
2008 - 2009	0.35
2009 - 2010	0.30 0.25
2010 - 2011	0.33 0.41
2011 - 2012	0.35 0.27
Moyenne	0.42
Ecart-type	0.13
CV (%)	31.0

en MES correspondant à ce débit hors période de chasse. Les flux annuels déterminés à l'aide de la relation Cs(Q) obtenues pour la période de chasse uniquement seraient donc largement surestimés. Il est regrettable de ne pas disposer de suffisamment de données de concentrations en MES dans Lyon, notamment à Perrache. Le calcul des flux à cette station pourrait permettre d'estimer l'impact de la zone de Miribel-Jonage sur les flux de MES et de connaître les apports du Rhône avant sa confluence avec la Saône.

Calibrating pollutant dispersion in 1-D hydraulic models of river networks, article soumis

Launay, M., Le Coz, J. , Camenen, B. , Walter, C. , Angot, H. , Dramais, G. , Faure, J.-B. et Coquery, M. (2013).

Calibrating pollutant dispersion in 1-D hydraulic models of river networks.

Soumis dans Journal of Hydro-environment Research

*Manuscript
Click here to view linked References

Calibrating pollutant dispersion in 1-D hydraulic models of river networks

M. Launay[a], J. Le Coz[a,*], B. Camenen[a], C. Walter[a], H. Angot[b], G. Dramais[a], J.-B. Faure[a], M. Coquery[b]

[a] *Irstea, UR HHLY, Hydrology-Hydraulics, 5 rue de la Doua - CS 70077 - F-69626 Villeurbanne, France.*
[b] *Irstea, UR MALY, Freshwater Systems Ecology and Pollution, 5 rue de la Doua - CS 70077 - F-69626 Villeurbanne, France.*

Abstract

The objective of this article is to investigate the major issues associated with the calibration of the pollutant dispersion in 1-D hydraulic models applied to river networks, especially large, complex, artificialized ones where ecological and socio-economical threats are important. Such issues are illustrated and discussed using the results of five fluorescent tracing experiments conducted in contrasted open-channel systems, ranging from a simple trapezoidal canal to a more complex river network. Experimental dispersion values were quantified using both the change of moment method and a simple fit-by-eye procedure for eight river reaches with homogeneous hydraulic conditions and an achieved tracer mixing and dispersive equilibrium. Since dispersion coefficient values depend on the assumed dispersion model, ideally they should be calibrated using the same model in which they are to be used, as was done in this study. We also derived concurrent longitudinal dispersion values using the velocity field measured by hydro-acoustic profilers (ADCP), which appears as a promising and cost-efficient technique for documenting dispersion in large river systems. It appears that the formulae for which the fit was mainly based on the cross-sectional aspect ratio are generally more appropriate for field data than those which are sensitive to the velocity to shear velocity ratio. The interpretation of complex dispersion and mixing

*Corresponding author. Tel: +33 472208786; fax: +33 478477875
Email address: jerome.lecoz@irstea.fr (J. Le Coz)

processes, along with the selection of relevant dispersion coefficient predictors are key to minimizing errors in the numerical simulation of pollution dynamics in river networks.

Keywords: longitudinal dispersion, river, pollution, 1-D hydraulic modelling, ADCP

1. Introduction

The pollution of rivers due to accidental spills represents a major threat to ecology and to various uses of water (*Leibundgut et al.*, 2009). The environmental management of river systems requires accurate and efficient tools to predict pollutant concentration, propagation and dispersion, especially near water intakes when rivers are used as a source of drinking water (*Biron et al.*, 2004). A commonly used tool is numerical modelling, which is developed to simulate the hydraulic conditions and the transport and fate of solute or particulate pollutants along river systems (*Fassnacht*, 1997; *Duarte and Boaventura*, 2008; *Marion et al.*, 2008; *Kilic and Aral*, 2009).

At the river network scale, the application of two- and three-dimensional transport models is generally not appropriate because of their time consuming computations (*Leibundgut et al.*, 2009) and because of the lack of data for the construction of such models and their validation. One-dimensional (1-D) transport models are generally preferred for real-time predictions of the spatio-temporal dynamics of a pollution in large river networks. While simple, most 1-D models are able to simulate complex, multi-reach hydraulic networks, including artificial structures as well as bifurcations and confluences.

In conventional 1-D hydraulic models, the transport of a fully mixed, passive pollutant or tracer is described by the 1-D advection-dispersion equation, also known as the Fickian model (*Scheidegger*, 1961; *Leibundgut et al.*, 2009):

$$\frac{\partial C}{\partial t} + U\frac{\partial C}{\partial x} = D_L\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \tag{1}$$

in which C is the section-averaged concentration, t the time, U the section-averaged velocity, x the distance in the longitudinal direction, and D_L the longitudinal dispersion coefficient. The Fickian model for longitudinal dispersion applies when dispersive equilibrium is reached, i.e. when the effects of velocity shear are balanced by the effect of turbulent mixing

(*Rutherford*, 1994). Downstream of the injection point (or transverse line), this condition is achieved in the equilibrium zone, which establishes after the so-called advective zone. Equilibrium is reached when the tracer has sampled the entire flow, which generally occurs after the tracer concentration is homogeneous throughout the cross-section. However, this is not a sufficient condition for checking dispersion equilibrium.

In rivers and canals, longitudinal dispersion is mainly due to vertical and transverse velocity gradients, while molecular diffusion and turbulent diffusion are generally negligible. According to the literature, the longitudinal dispersion varies within a range of 10^{-1} to 10^{7} m^2/s (*Fischer*, 1968; *Liu*, 1977; *Iwasa and Aya*, 1991; *Seo and Cheong*, 1998), while the molecular and turbulent diffusion are in the order of 10^{-9} and 10^{-2} m^2/s, respectively (*Rutherford*, 1994). Note that turbulent diffusion may vary from 10^{-3} to 1 m^2/s, according to the hydraulic conditions. Usually, in rivers vertical velocity gradient effects on longitudinal dispersion are negligible compared to transverse velocity gradient effects (*Fischer et al.*, 1979). It is therefore possible to accurately estimate longitudinal dispersion in natural streams from the transverse velocity profile, as done by *Seo and Baek* (2004) by fitting a beta function to the observed velocity distribution.

Other mechanisms, such as trapping in recirculation zones, laminar boundary layers or porous media, can also cause dispersion. Such processes are usually designated as transient storage effects. Indeed, the observed "tails" of breakthrough curves are often longer than can be accounted for by Eq. 1 applied analytically to solute tracer pulses (*Nordin and Troutman*, 1980). Hence, *Bencala and Walter* (1983) introduced the effect of the transient storage in the right-hand side of Eq. 1. Such model has been widely used to better understand physical processes in experimental results (*Cheong and Seo* (2003); *Gooseff et al.* (2005); *Wörman and Wachniew* (2007); *Bottacin-Busolin et al.* (2011); *Szeftel et al.* (2011) among others). However, it remains difficult to be applied in predictive models since it introduces two additional variables (solute concentration and cross-section area of the storage zone) and one additional parameter (stream storage exchange coefficient), which may be difficult to evaluate. Moreover, in large river cases dead-zones may be less relevant

than in the small rough streams studied in the literature focussing on transient storage mechanisms.

In 1-D hydraulic models, the longitudinal dispersion coefficient has to be predicted through formulae accounting for the mainstream longitudinal dispersion, usually ignoring the transient storage effects that were highlighted by research in the last decades (*Rutherford*, 1994). Such semi-empirical formulae were established against experimental data sets to relate the longitudinal dispersion coefficient to the bulk characteristics of the flow. However, the predictive accuracy of such formulae is often questionable, which can be explained by the scatter and lack of representativeness of the underlying data set.

Soluble tracer experiments are the most direct method to collect field data on longitudinal dispersion in rivers (*Hubbard et al.*, 1982). Passive tracers injected into a stream behave in the same way as conservative pollutants and their monitoring is feasible using either in-situ recording instruments or water samples to be analysed in the laboratory. An ideal tracer should be readily water soluble, easily detectable, harmless at low concentrations, stable, and inexpensive (*Davis et al.*, 1980; *Wilson et al.*, 1986; *Field et al.*, 1995). However, field data remain scarce in large river networks, mainly due to the logistical difficulty and the high cost of tracing operations. Most large-scale river tracer tests were performed in the 1960s and 1970s (*Wilson et al.*, 1986). Among recent studies at a large scale (i.e. at least 10 km length), those performed on the Hudson River, USA (*Ho et al.*, 2002; *Caplow et al.*, 2004), in several Portuguese rivers (*Duarte and Boaventura*, 2008) and on the Narew River, Poland (*Rowinski et al.*, 2008) should be mentioned.

In recent years, some authors (*Carr and Rehmann*, 2007; *Shen et al.*, 2010; *Kim*, 2012) used ADCP data in order to compute the longitudinal shear-driven dispersion at a cross-section of a river. For two decades indeed, acoustic Doppler current profilers (ADCP) have been increasingly used by hydrometric services to efficiently measure discharge in rivers. The most common procedure is the mobile-boat method for which the vessel-mounted ADCP scans both flow depth and velocity field during a crossing of the river section. While the derivation of longitudinal dispersion from the velocity field throughout a cross-section was known for long (*Fischer et al.*, 1979), velocity sampling by ADCP offers an

attractive and cost-efficient solution for measuring dispersion in rivers, especially in the largest ones.

The objective of this article is to investigate the major issues associated with the calibration of pollutant dispersion in 1-D hydraulic models applied to river networks, especially large, complex, artificialized ones where ecological and socio-economical threats are important. From the modeller's standpoint, the major questions are the following: Is most of the pollutant fully mixed and is the dispersive equilibrium reached so that the Fickian model applies? Are transient storage effects negligible or would they require the consideration of additional terms? How accurate are the dispersion coefficient values predicted by conventional formulae, and how sensitive are the modelling results to the choice of a formula? Such issues are illustrated and discussed using the results of new, comprehensive fluorescent tracing experiments, with concurrent ADCP-based velocity surveys and dispersion estimation.

2. Longitudinal dispersion in 1-D river models

2.1. Numerical simulation tools

In this study, the river systems were simulated using Mage, a typical 1-D loop-meshed hydrodynamic code (*Souhar and Faure*, 2009) with AdisTS, an advection-dispersion resolution for pollutant and suspended-sediment transport (*Andries et al.*, 2011). Mage is a 1-D hydrodynamic model simulating flow in transient regime. The 1-D Barré de Saint-Venant equations (shallow water equations) are solved using a four point finite difference scheme. The real geometry of the river bed is represented by a set of cross-sections that is used for the calculation. The network topology may be looped to represent islands or multi-branched networks with confluences and bifurcations. This model presents very low computation times, which allow for real-time simulation or simulation of long time series (*Andries et al.*, 2011). The partitioning of discharges at bifurcations is governed either by the geometry of the river bed or by the representation of flow controlling structures such as dams.

AdisTS solves the Fickian model (Eq. 1), using a numerical resolution of the advection-dispersion equation which is based on operator splitting. The advection part is solved using a TVD scheme (Total Variation Diminishing) with the Superbee flux limiter and is adapted to non uniform space steps. This scheme is well known to dramatically reduce the numerical dispersion. AdisTS allows the user either to set a fixed value for D_L or to use a predictive formula, by setting the a, b, and c calibration parameters of the following equation:

$$\frac{D_L}{HU_*} = a\left(\frac{U}{U_*}\right)^b\left(\frac{W}{H}\right)^c \tag{2}$$

where W is the river width, H is the section-averaged water depth, $U_* = \sqrt{\tau/\rho}$ is the shear velocity, τ the section-averaged bed shear stress, ρ the water density. Different authors have established numerous empirical formulae of this type, based on a dimensional analysis of the dispersion coefficient. Since longitudinal dispersion in open channels is mainly driven by velocity gradients and turbulent mixing, the main control factors are the U/U_* ratio, which captures turbulent shear intensity, and the W/H aspect ratio, which captures the transversal velocity gradient and the secondary currents intensity. The different authors suggested contrasted values for parameters a, b, and c as presented in Tab. 1. From the following review of the literature, it is a relevant question whether conventional formulae do accurately predict the real Fickian dispersion coefficient values, especially in large river systems.

2.2. Review of predictive formulae used in 1-D models

Most of the authors who suggested an empirical formula in the form of Eq. 2 used a very similar data set. *Seo and Cheong* (1998) gave a listing of these data, which mainly correspond to measurements in US rivers during the sixties and early seventies. In order to investigate more situations, we added laboratory data from *Fischer* (1966), and additional field data from *Carr and Rehmann* (2007) to the data set. Although a large scatter is observed, Fig. 1 clearly indicates positive values for the coefficients b (Fig. 1b) and c (Fig. 1a), respectively, as observed by several authors. However, because of the scatter and

because of the lack of data for extreme values of the parameters W/H and U/U_*, it is very difficult to assess an accurate value for b or c.

In Fig. 1a, laboratory data appear to follow the same trend as field data according to W/H, which indicates their efficiency in scaling the geometry effects observed in the field. Conversely, in Fig. 1b it appears that the cluster of laboratory data corresponding to narrow channels ($\circ$, $W/H < 30$) yields lower D_L values compared to field experiments with similar U/U_* values, which indicates that roughness is not properly scaled in laboratory experiments. This may be due to a scaling effect of edge roughness, because flow regimes are different: smooth flow regimes in the laboratory experiments may not be fully representative of rough turbulent flows in natural conditions.

Four scores were used to estimate the performance of the proposed formulae in predicting the longitudinal dispersion values of the experimental data set. We calculated the mean value, mean(E), and the standard deviation, std(E), of the error function E defined as follows:

$$E = \log_{10}\left(\frac{D_{L,pred}}{D_{L,exp}}\right) \tag{3}$$

where $D_{L,pred}$ and $D_{L,exp}$ are the predicted and experimental values of the longitudinal dispersion coefficient, respectively. Additionally, we determined the scores $G2$ and $G5$ corresponding to the percentage of data points correctly predicted by an equation within a factor 2 or 5 allowed, respectively. The values of mean(E), std(E), $G2$ and $G5$ are presented in Tab. 2 for the different formulae presented in Tab. 1.

From Tab. 2, it appears that the Elder equation systematically underestimates the D_L values by two orders of magnitude by comparison to the field values (mean(E) = -1.9). *Elder* (1959) adapted the *Taylor* (1954) study of dispersion through a pipe to an open channel of infinite width, assuming a logarithmic distribution of velocity in the vertical direction. This equation does not consider velocity variations in the transversal direction. According to *Fischer* (1966), this may explain the underestimation of the longitudinal dispersion coefficient in natural streams, where the transversal velocity gradient effects are much more important than the vertical velocity gradient effects.

The other formulae studied in this work account for the transversal velocity gradient effects through the W/H ratio. However, they systematically overestimate the value of D_L (mean(E) $>$ 0). With respect to the four scores, the best results are obtained with the formula from *Iwasa and Aya* (1991), then with the formulae from *Liu* (1977) and *Seo and Cheong* (1998). The formulae of *Fischer* (1975) and *Koussis and Rodriguez-Mirasol* (1998) show poorer performance for most of the four criteria.

3. Experimental sites and data

3.1. Presentation of the five tracing experiments

The results of five tracing experiments conducted at two sites are used for this study: one experiment in the Gentille canal in 2011 (GE11), and four experiments in the Miribel and Jonage river system in 2000 (JN00), 2001 (MI01), and 2011 (JN11, MI11). Experimental conditions for the five tracing experiments are summarized in the maps of the experimental sites in Fig. 2, and further details for each experiment are provided in the following paragraphs.

In all experiments, Rhodamine was used as a fluorescent tracer, which is considered as an efficient tracer for large open-channel flows (*Smart and Laidlaw*, 1977). Whereas Rhodamine B was used in 2000 and 2001 tracing experiments, we preferred Rhodamine WT in 2011 since it is considered much less toxic. Except for the 2000-2001 experiments for which only water sampling was performed to monitor tracer concentrations, the concentration was monitored in situ using several field fluorimeters (Albillia FL30 GGUN) and one fluorimeter in the laboratory (Datalink FL200-R). Field fluorimeters allow for a continuous recording of the river fluorescence level but their quantification limits are poorer (4 μg/L) than those of laboratory devices (1 μg/L). Water sampling and the slightly postponed analysis in the laboratory provided accurate data to calibrate the continuous monitoring by field fluorimeters.

The Gentille Canal (Fig. 2a) is a 14 m wide, 2 m deep concrete canal for a hydropower plant on the Garonne River, France. It differs in scale and complexity from the other experimental site. This 2 km long, trapezoidal canal was used to compare tracing experiments

conducted in large rivers with results from a smaller scale stream, with a prismatic geometry and smooth bed and walls. During the tracing experiment, the flow was nearly uniform over the whole reach, and the discharge continuously recorded by ADCP was nearly constant. Rhodamine WT was injected as a slug in the centre of the cross-section. Three to five fluorimeters were hung from bridges and immersed approximately 50 cm below the surface in order to monitor the lateral mixing of the tracer, as well as its longitudinal propagation and dispersion.

The Miribel and Jonage river system (Fig. 2b and c) is an artificialized section of the Rhône River upstream of Lyon, France. The Miribel and Jonage canals were built in the anastomosing system of the Rhône River during the XIXth century. Only a small stretch of the former river bed is remaining, which is called Vieux-Rhône. The bed of these reaches is mainly composed of coarse sediments (grain size varying from 5 to 10 cm). Several structures were built for hydropower purpose: Jons dam on the Miribel canal, which in normal hydrological conditions deviates most of the flow to the Jonage canal, and Jonage dam and Cusset hydropower plant situated on the Jonage canal. The Grand Large lake is located along the Jonage canal but a wall made of sheet pile prevents exchanges between the canal and the reservoir. Visual inspection and sampling survey during the experiment confirmed that tracer concentrations in the lake were negligible.

First experiments had been conducted by others in the Miribel and Jonage system in 2001 (Miribel) and in 2000 (Jonage). Unfortunately, the discharge was not continuously recorded within the traced river branches. The discharge in the Miribel channel was claimed to be 30 m^3/s by the dam managers, which may be underestimated based on our recent direct observations for similar conditions.

The fluorescent tracer Rhodamine B was injected continuously from a bank during one hour at a constant rate, in the vicinity of Jons dam. Manual samples were taken at a limited number of sites as shown in Fig. 2b, for subsequent laboratory analysis of their fluorescence. In spite of the rather poor temporal resolution, the collected data provide valuable indications on the dispersion processes. to determine the dispersion coefficient.

During the experiments conducted in 2011 in Miribel and Jonage channels, the discharges were monitored continuously using vessel-mounted ADCP set up on boats. Discharge was measured at the injection point, at each bifurcation and at the downstream end of hydraulically homogeneous reaches, with a typical uncertainty of 5%. Discharge in Miribel channel remained constant over the experiment period, whereas discharge in Jonage channel increased from 150 m^3/s to almost 300 m^3/s. The injection into the Miribel canal was achieved 6 to 7 km further downstream than the 2000-2001 injections, and the injection point for the Jonage canal was located just downstream of the Jonage dam. For these two experiments, the fluorescent tracer Rhodamine WT was injected from a boat as a slug distributed over a transect line, in order to enhance the initial transversal mixing.

Field fluorimeters were either hung from bridges and immersed at mid-depth, or set up from banks on the river bed, as far from the bank as possible. At some monitoring points, two or three fluorimeters were set up at different positions within the same cross-section, in order to verify the complete mixing of tracer across the section. Water sampling was performed either from banks or bridges using plastic buckets or automatic samplers. The sampling frequency was every 10 minutes during the peak concentration and every 30 minutes before and after the peak. The water samples were stored in plastic bottles and transported immediately to the laboratory to be analysed using the laboratory fluorimeter. Specific attention was paid to the transport and storage of samples in order to minimize potential variations of the water characteristics (temperature, light exposure).

3.2. Assessment of the equilibrium zones

The breakthrough curves for all the 2011 experiments differ from pure Gaussian curves, especially in that they are skewed (Fig. 3). *Rutherford* (1994) acknowledged that breakthrough curves recorded from laboratory or field experiments are actually never found to be Gaussian. He further explained that this is not only due to transient storage effects by dead zones and laminar near-bed layers, but also notably due to the skewness induced by the propagation of the non-mixed tracer along the advective zone, between the source cross-section and the equilibrium zone.

From our observations downstream of the injection points, and in the absence of significant dead zones or hyporheic flows, the advective effects are the most realistic cause for the skewed breakthrough curves in our tracing experiments.

As explained in the introduction, the Fickian model (Eq. 1) used in most 1-D models applies in the equilibrium zone, downstream of the advective zone. The length of the advective zone, L_x, may be estimated using the following formula (*Fischer et al.*, 1979; *Rutherford*, 1994):

$$L_x = \alpha \frac{U L_t^2}{D_y} \tag{4}$$

with α =0.3-0.6 in smooth channels, and α =1-5 and even more for rough, small channels. L_t is the distance from the maximum velocity point to the nearest bank, and D_y is the transverse dispersion coefficient. Following *Rutherford* (1994), we will consider that L_t =0.5-0.7W and that D_y =0.3-0.9HU_* for irregular but only gently meandering natural channels. We also assume that $\alpha \approx 1$.

The assessment of the advective zone length (Eq. 4), along with verification of the tracer mixing and mass continuity (see e.g. *Jobson* (1997)), will be further used to identify the river reaches where reliable longitudinal dispersion values can be derived from our tracing results. According to *Hubbard et al.* (1982), the transversal and vertical mixing is complete if the areas of the time-concentration curves observed at different points in the cross-section are the same. The comparison of the time of peak concentration and of the shape of breakthrough curves on both sides of the river also provides information on mixing and equilibrium.

3.3. Review of the exploitable tracing results

Eight reaches (see Tab. 4) were selected where hydraulic conditions were found to be nearly uniform, and where sufficient mixing and tracer equilibrium were checked, according to the methods described in the previous section. Fig. 2 presents the masses computed from the concentration curves recorded by each fluorimeter for all tracing experiments. The L_x distances computed with Eq. 4 are also reported in Tab. 4.

In the Gentille canal, the distances between the injection point and the sampling positions are greater than L_x, which suggests that dispersive equilibrium should be acceptably achieved in this canal. However, the concentrations recorded on the right part of the flow remained slightly higher than on the left part at all monitoring stations along the reach (Fig. 3a).

Full mixing was more questionable in the Miribel canal experiments. In 2001, the distance from the injection position B1 to the bifurcation B2 between the Miribel canal and the Vieux-Rhône stream (Fig. 2b) is slightly larger than L_x. It can therefore be reasonably assumed that mixing was at least partially reached, though not totally. The difference between the injected mass and that recorded at B2 may be explained by the uncertainty in the discharge claimed by the dam manager and used for the calculation.

While mass continuity is observed in 2001 at the bifurcation between Miribel canal and the Vieux-Rhône, the masses recorded in 2011 at M3-LB and M3-RB are not equivalent (see Fig. 2c). The breakthrough curves along Miribel channel (Fig. 3b) show different shapes and times of the peak concentration, according to the measurement positions. This is consistent with the fact that in 2011 the distance between the injection point and the bifurcation was shorter than in 2001, and smaller than L_x. Experimental data in the downstream part of Miribel channel in 2011 should therefore be interpreted carefully, considering the incomplete transversal mixing at M3.

Based on the comparison of tracer masses, full mixing seems to be achieved in the Vieux-Rhône in 2001 (Fig. 2b) and in the Vieux-Rhône and Canal Sud area for the 2011 experiments (Fig. 2b and Fig. 3c). The L_x values reported in Tab. 4, compared to the distances from injection to monitoring positions, confirm that mixing was complete in 2001, and at least partially achieved in 2011.

In the Jonage canal in 2000, the distance between the injection point A1 and the monitoring positions is lower than L_x. It was not possible to compare the masses at the right and left banks, as the samples were taken at only one point of the section. Based on our observations in 2011, we nevertheless assumed that mixing was at least partially achieved at A2 (Fig. 2b). The difference between the injected mass and the masses recorded

at A2 may be explained either by a loss of tracer, or by the incomplete recording of the breakthrough curve tail.

In 2011 in the Jonage canal, by comparing the intensity and arrival time of the tracer cloud (Fig. 3d), we conclude that the complete mixing was acceptably achieved at J3 point. However, since the distance to injection point, L_i, was even shorter than in 2001, while L_x is even larger than for 2001, we must acknowledge that mixing and equilibrium were certainly only partially matched. Nevertheless, the experimental data obtained at J3 and at J6 allow to compute the D_L value for this reach. Data in J5 are more difficult to use, especially because in J5-RB the fluorimeter was located too close to the bank, and not sufficiently exposed to the mainstream tracing.

4. Experimental methods and results

4.1. Quantification of longitudinal dispersion from tracing results

In the equilibrium zone, the average dispersion coefficient may be estimated from records collected upstream and downstream of a hydraulically homogeneous reach. Such homogeneous reaches are river sections with no bifurcations or confluences and with nearly uniform hydraulic characteristics (velocity, water depth, width, and flow resistance as quantified by the Strickler coefficients, K_s, of the calibrated hydraulic model). The change of moments method (*Taylor*, 1954; *Fischer*, 1966; *Ho et al.*, 2002), the Chatwin method (*Chatwin*, 1971, 1980), the routing procedure (*Fischer*, 1968) or the use of a numerical modelling tool are different methods commonly used for the determination of D_L from experimental data. *Fischer* (1966) as well as *Seo and Baek* (2004) mentioned that the change of moment method, though theoretically exact for any initial distribution of a finite tracer cloud, may be difficult to apply to field results because of long tails in the measured distributions. The change of moment method also assumes that the flow is uniform, steady throughout the whole reach. It is therefore advised to check the results with the routing procedure. However, *Fischer* (1966) explained that the routing procedure cannot be applied analytically without some uncomfortable approximations, and that it would be better to solve it numerically, which is actually equivalent to applying a 1-D numerical model.

In this study, we used the 1-D numerical model to explicitly determine the experimental value for D_L in homogeneous reaches. The concentration breakthrough curve measured at the upstream cross-section was set as an upstream boundary condition into the 1-D numerical model in order to route the tracer cloud all the way to the downstream section. The longitudinal dispersion coefficient was calibrated to get the best agreement of the results with the concentration breakthrough curve measured at the downstream cross-section. A simple fit-by-eye procedure was followed (Fig. 4), which was proved by *Wörman and Wachniew* (2007) to yield reliable results and to be difficult to improve using automated fitting procedure.

Such a methodology implies an accurate hydraulic calibration of the model in order to reduce the uncertainty related to a poor estimation of the advective effects. The hydraulic performance of the model was checked by comparing velocities given by the model, with velocities recorded by ADCP and observed peak-to-peak velocities along uniform reaches (Tab. 3). It should be noted that U_{model} and U_{ADCP} are local velocities at a given position along the river whereas U_{cloud} is a spatially averaged velocity estimated between two monitoring points. In all experiments, simulated velocities are similar to observed velocities, which validated that the hydraulic calibration of the model was acceptable.

It seems logical to use the model to estimate longitudinal dispersion coefficient values that are to be used in the same model, i.e. applying exactly the same computational assumptions. However, as the easiest and the most traditional method, the change of moment method was also applied to our tests, following Eq. 75 of *Fischer* (1966):

$$D_{L,mmt} = \frac{1}{2}\, U^2\, \frac{\sigma_{t,2}^2 - \sigma_{t,1}^2}{\bar{t}_2 - \bar{t}_1} \tag{5}$$

where U is the cross-sectional average velocity estimated from the reach length and the times, $\bar{t}_1$ and $\bar{t}_2$, of the centroids of the upstream and downstream breakthrough curves, respectively. The variance, σ_t, of each breakthrough curve is computed as the second central moment of each curve.

331 *4.2. The ADCP velocity survey method*

Building on the works by *Fischer et al.* (1979), different authors (*Carr and Rehmann*, 2007; *Shen et al.*, 2010; *Kim*, 2012) recently applied the following equation to the discrete sampling of velocity and depth made by ADCP in order to estimate the longitudinal dispersion due to the transverse velocity gradient:

$$D_{L,t} = -A \int_0^W \left\{ \overline{u'}h \int_0^y \left[\frac{1}{D_y h} \int_0^{y'} \overline{u'}h \, \mathrm{d}y'' \right] \mathrm{d}y' \right\} \mathrm{d}y \tag{6}$$

with A the wetted area of the cross-section, y the transverse position varying from 0 to W, the river width, $\overline{u'}$ the local depth-average streamwise velocity difference from the cross-sectional mean velocity, U, h the local flow depth, and D_y the transverse mixing coefficient. The latter parameter is usually assessed with the following approximation (*Fischer et al.*, 1979):

$$D_y = 0.6 u_* h \tag{7}$$

332 where u_* is the local shear velocity. Recalling that the coefficient in Eq. 7 may vary from 0.3
333 to 0.9 for natural channels (*Rutherford*, 1994), the related uncertainty in the $D_{L,t}$ estimate
334 can easily reach 100%.

335 In uniform flows with known longitudinal slope, J, u_* can be assumed to be roughly
336 the same across the river and equal to $U_* = \sqrt{\rho R J}$, with ρ the water density and R
337 the hydraulic radius. $D_{L,t}$ is proportional to $1/\sqrt{J}$ and thus is not very sensitive to the
338 slope. In the case described in this paper, J was derived from 1-D numerical models.
339 Alternatively, vertical velocity profiles measured by ADCP can be regressed to derive the
340 local value for u_* from the logarithmic slope of the law of the wall, for a fully developed
341 uniform turbulent layer. These local u_* values may be either used directly in Eq. 6 or
342 beforehand cross-section averaged (see the manual of the AdcpXP software, *Kim* (2012)).
343 We prefer using the bulk shear velocity, U_*, since the derivation of local u_* from ADCP
344 vertical profiles may lack of accuracy, especially due to the near-bottom unmeasured area.

Kim (2012) further stresses that in situations for which the longitudinal dispersion is mainly driven by the vertical velocity gradient, rather than the transverse velocity gradient,

the local longitudinal dispersion coefficient, D_L, can also be derived from ADCP data, as (*Taylor*, 1954):

$$D_{L,v} = -\frac{1}{h}\int_0^h \left\{ u' \int_0^z \left[\frac{1}{D_z} \int_0^{z'} u' \, \mathrm{d}z'' \right] \mathrm{d}z' \right\} \mathrm{d}z \tag{8}$$

with z the vertical position above the bed varying from 0 to h, u' the local streamwise velocity difference from the depth-average velocity, and D_z the vertical mixing coefficient, which may be approximated as (*Fischer et al.*, 1979):

$$D_z = 0.067 u_* h \tag{9}$$

The longitudinal dispersion coefficient due to transverse velocity gradients $D_{L,t}$ (Eq. 6) is representative of the transport of a fully mixed tracer along a uniform reach, and can typically be used in 1-D hydraulic models. In contrast, the longitudinal dispersion coefficient due to vertical velocity gradients $D_{L,v}$ (Eq. 8) is more appropriate for a tracer slug which would be fully mixed vertically but with limited transversal extension. For intermediate situations, which are likely to occur for tracing experiments in large rivers, the longitudinal dispersion is expected to lie in between both estimates. To apply the ADCP method, we used the AdcpXP software developed by *Kim* (2012), which computes the $D_{L,t}$ and $D_{L,v}$ values by applying Eqs. 6 and 8 to velocities throughout the whole cross-section: velocities in unmeasured near-bottom and near-edges areas are extrapolated based on a 1/6 power function and included in the computation.

4.3. Experimental dispersion values

The morphological and hydraulic characteristics of the uniform reaches for the different tracing experiments are given in Tab. 4 as well as the dispersion coefficients obtained with the tracing and ADCP methods. For three of the homogeneous reaches, especially the prismatic Gentille canal (GE11), the dispersion coefficients obtained from the tracing experiments by fitting the 1-D model ($D_{L,exp}$) or by applying the change of moment method ($D_{L,mmt}$) are in very close agreement, within a few %. The results of the change of moment method agree by no more than a factor 2 for all experiments except in the Canal Sud

channel (CS11) where $D_{L,mmt}$ is roughly 5 times greater than $D_{L,exp}$. This can be explained because simulated velocities and depth are actually less uniform throughout that reach than in the others. $D_{L,mmt}$ can be either lower or greater than $D_{L,exp}$, which suggests that the 1-D model is not biased by excessive numerical dispersion. Dispersion values obtained using the 1-D model, $D_{L,exp}$, will be kept as the reference values precisely because they are consistent with the computational assumptions of the model to be calibrated.

The experimental results presented in this work are comparable to the data from literature (see Fig. 1, our data). The aspect ratio, W/H, of the homogeneous reaches ranges from 5 to 50 and the velocity ratio, U/U_*, is spread from 5 to 15, which are situations commonly encountered on the Rhône River and similar medium-sized rivers. The $D_L/(HU_*)$ values obtained from the tracing method vary between 10 and 1000.

Fig. 5 presents the dimensionless dispersion values obtained with the ADCP method versus the reference values obtained from tracing results. As expected, $D_{L,t}$ is always higher than $D_{L,v}$, and the discrepancy between the two values spreads from one to four orders of magnitude. This confirms that in most of our field cases, the longitudinal dispersion is mainly driven by the transverse velocity gradient, rather than by the vertical velocity gradient.

For all experiments with available ADCP data, $D_{L,t}$ is in the same order of magnitude as the value obtained from the tracing method, which suggests that the ADCP method may be an acceptable surrogate to the costly tracing method. Except for the JN11 experiment, $D_{L,t}$ is always lower than $D_{L,exp}$. Some explanations can be proposed to such underestimating trend. First, the ADCP method relies on velocity recorded throughout the whole cross-section. In the GE11 case, the transversal velocities measured by the ADCP at G4 present a very flat profile and unmeasured areas near edges represent almost 15% of the cross-section. Then, the transversal velocity gradient may not be well captured in such a situation, leading to an underestimation of the $D_{L,t}$ value. Moreover, the spatial resolution of the ADCP grid and the spatial averaging by the software may also lead to underrating of the transversal gradient. Both types of issues might be mitigated by fitting a continuous function to the

transverse profile of the longitudinal velocity, as *Seo and Baek* (2004) did using the beta probability distribution function.

We also highlighted in Section 3.3 that partial mixing of the tracer should be reminded in some reaches, which could have an effect on the D_L value from tracing experiment. Nevertheless, for the cases presented in Fig. 5, the ADCP method considering the transverse velocity gradient as the main driver of the longitudinal dispersion produces dispersion estimates, $D_{L,t}$, that are in good agreement with the values obtained from tracing experiment.

5. Calibrating dispersion in 1-D hydraulic models

5.1. Performance of dispersion predictors

For each tracing experiment, the six formulae from the literature presented in Tab. 1 were applied to compute the longitudinal dispersion coefficient, D_L. The results are presented in Fig. 6. The four scores already presented in Section 2.2 were used to evaluate the performance of the formulae in predicting the dispersion values from our tracing experiments (Tab. 5).

The ranking of the formulae is generally very consistent with what was observed against the literature review provided in Section 2.2 (cf. Tab. 2). As observed by *Fischer* (1966), the *Elder* (1959) formula does not apply since it always underestimates the experimental values, from one to two orders of magnitude. The results from other formulae overestimate the experimental values from 10 to 100 % on average, which is consistent with the findings of *Seo and Baek* (2004).

Again, the formula of *Iwasa and Aya* (1991) produces the best results, followed by that of *Liu* (1977), and the formula of *Fischer* (1975) shows poorer results. The main difference with the evaluation against literature data is that the formula of *Koussis and Rodriguez-Mirasol* (1998) shows a performance as good as, if not better than, the formula of *Liu* (1977). On the other hand, the formula of *Seo and Cheong* (1998) yields poorer results. It appears that the formulae for which the fit was mainly based on the parameter W/H (*Liu*, 1977; *Iwasa and Aya*, 1991; *Koussis and Rodriguez-Mirasol*, 1998) are generally more

appropriate for field data. On the contrary, formulae with a large b-value (*Fischer*, 1975; *Seo and Cheong*, 1998) seem to be too sensitive to the calculation of $U/U*$, which often induces larger uncertainties especially in field data. *Seo and Baek* (2004) showed that the formula of *Seo and Cheong* (1998) would give larger estimates than other formulas when $W/H < 40$.

5.2. Uncertainty in modelling a pollution dynamics throughout a complex river network

1-D hydraulic models of large river networks should be able to give reliable estimations of the pollution dynamics in terms of peak concentration and arrival time. Fig. 7 shows the simulation results of a pollution peak injected 56 km upstream of the Miribel-Jonage area. This example illustrates the necessity of using a well-calibrated hydrodynamic model for properly simulating a pollution dynamics through a complex multi-channel artificialized river system such as the Miribel-Jonage system. Indeed, the transformation of the pollution slug through the river network and hydraulic schemes would be impossible to reproduce with analytical models, even those involving a more detailed description of dispersion processes than the simple Fickian model. As the Mage-AdisTS model accounts for the contrasted propagation and dispersion in Miribel canal, Vieux-Rhône channel and Jonage canal with different dams, it is able to simulate the combination of the three pollution travel paths. This is the reason why two, sometimes three, concentration clouds can be distinguished in the breakthrough curve simulated at the downstream end of the river network (cf. Fig. 7).

We have to use a predictive formula, instead of experimental fixed dispersion values, because not all reaches in the river system were documented with tracer measurements, and some of them cannot be considered hydraulically homogeneous. Depending on the formula chosen to compute D_L, the breakthrough curves obtained downstream of the Miribel-Jonage area are widely different. Although we do not have experimental evidence to compare with the numerical tests shown in Fig. 7, we assume that the more realistic dispersion values are provided by the formulae that were best-ranked in the tests using the literature data (cf. Tab. 2), and a fortiori using our experimental data at the same site (cf.

Tab. 5). Accordingly, we can assume that the more realistic signals are provided by the formulae of *Iwasa and Aya* (1991), *Liu* (1977), and *Koussis and Rodriguez-Mirasol* (1998), which produce very similar results.

As expected, the formula of *Elder* (1959) yields a much lower dispersion values, whereas the formula of *Fischer* (1975) and, a fortiori, the formula of *Seo and Cheong* (1998) yield higher dispersion values. The maximum concentration varies from 2 mg/L for the Elder formula to 1 mg/L for the Seo and Cheong formula. The difference in predicted dispersion also induces changes in the temporal dynamics of the simulated pollution. As an effect of the widening of the three pollutant clouds, the maximum concentration is simulated ∼5 hours earlier with the Seo and Cheong formula, compared to the less dispersive results obtained with the the formulae of Iwasa and Aya, Liu, and Koussis and Rodriguez-Mirasol.

6. Conclusions

The issues related to the calibration of pollutant dispersion in 1-D hydraulic models of large river networks were investigated using field cases, ranging from a simple trapezoidal canal to a complex river network. Most of the breakthrough curves we obtained from our fluorescent tracing experiments show some skewness, even in the Gentille canal, where transient storage is unlikely to occur. As already mentioned by *Rutherford* (1994), such skewness is usually inherited from the mixing process in the advective zone, before the equilibrium zone is established, which should not be automatically assigned to transient storage effects.

In eight river reaches with nearly uniform hydraulic conditions and fully or partially achieved tracer mixing and dispersive equilibrium, experimental dispersion values were quantified with the Mage-AdisTS 1-D model using both the change of moment method and a simple fit-by-eye procedure. The obtained experimental dispersion values are consistent with the data available in the literature. However, the ideal conditions may be very difficult to fulfil in large channels with artificial structures and bifurcations such as the Miribel-Jonage system. Even using fluorescent tracers and immersed fluorimeters, such experiments

in large rivers require a huge amount of time, work and money, and cannot be extended to a wide range of sites and hydraulic conditions.

While the ADCP method was already introduced and applied by others, this study is to our best knowledge the first one to report a comparison of ADCP dispersion results in rivers with tracing experiments and application of a 1-D hydraulic model. The ADCP method provided values which were in valuable agreement with the tracing experiments, in spite of the uncertainties on parameters such as the turbulent mixing coefficient or the energy slope of the flow. Through the $D_{L,t}$ and $D_{L,v}$ estimates, the ADCP method also provides a quantification of the relative importance of transversal versus vertical velocity gradients in controlling the longitudinal dispersion. As expected in rivers, the latter dispersion term was always found to be negligible before the former one. Since it is a much more cost-efficient method than tracing experiments, the ADCP-based method appears as a promising technique for improving the calibration of dispersion coefficients in pollutant transport models of large river systems. Actually, a lot of ADCP data acquired by hydrometry staff are already available at many gauging sites in most rivers, including the largest ones in the world where tracing is impossible to perform.

The lack of representativeness of the experimental data set used to calibrate the formulae used to predict longitudinal dispersion coefficients in 1-D models is an important concern, especially for modelling large river networks. With the exception of the *Elder* (1959) formula, all the tested predictive formulae yielded dispersion values that are consistent with the reference values derived from tracing experiments, though generally overestimated by up to one log decade. The best results were obtained with the formula from *Iwasa and Aya* (1991), followed by the formula of *Liu* (1977).

Transient storage effects on the longitudinal dispersion are not accounted for in AdisTS, as is the case in most common 1-D hydraulic models with a water quality module, such as MIKE11 (*DHI*, 2009) for instance. Implementing them in 1-D river models is still an interesting research perspective. An important issue is that calibration fits that account for transient storage effects (see e.g. *Cheong and Seo* (2003)) may provide significantly different values for the Fickian longitudinal dispersion coefficient. This observation reminds us again

that dispersion coefficient values depend on the simulation method used, and that ideally they should be calibrated using the same model in which they are to be used, as was done in this study. So far, introducing transient storage in 1-D hydraulic models might be a negligible improvement, in case the mainstream longitudinal dispersion coefficient is not parameterized accurately based on an appropriate predictive formula.

7. Acknowledgements

This work has been conducted in the framework of the Rhône Sediment Observatory project and was partly funded by the Plan Rhône. The PhD scholarship of Marina Launay was granted by the Région Rhône-Alpes (convention number: 12-013144-01 for the PhD third year).

References

Andries, E., Le Coz, J., Camenen, B., Faure, J.-B., and Launay, M. (2011). Impact of dam flushes on bed clogging in a secondary channel of the Rhône river. *Proceedings of RCEM (River, Coastal and Estuarine Morphodynamics), Beijing, China*, 10 p.

André, H., Audinet, M., Mazeran, G., and Richer, C. (1976). Hydrométrie pratique des cours d'eau. [Practical hydrometry in rivers]. *Direction des études et des recherches d'Électricité de France (EDF)*, 88 p. (in French)

André, J. and Molinari, J. (1976). Mises au point sur les différents facteurs physico-chimiques influant sur la mesure de traceurs fluorescents et leurs conséquences pratiques en hydrologie. [Clarifications on the various physico-chemical factors affecting the degree of fluorescent tracers and their practical implications in hydrology]. *Journal of Hydrology*, 30:257–285. (in French)

Biron, P., Ramamurthy, A., and Han, S. (2004). Three-dimensional numerical modeling of mixing at river confluences. *Journal of Hydraulic Engineering*, 130(3):243–253.

527 Biron, K.E., and Walters, R.A. (1983). Simulation of Solute Transport in a Mountain Pool-
528 and-Riffle Stream: A Transient Storage Model. *Water Resources Research*, 19(3):718–
529 724.

530 Bottacin-Busolin, A., Marion, Musner, T., Tregnaghi, M., and Zaramella M. (2011). Evi-
531 dence of distinct contaminant transport patterns in rivers using tracer tests and a mul-
532 tiple domain retention model. *Advances in Water Resources*, 34:737–746.

533 Boiten, W. (2000). *Hydrometry*. Francis and Taylor publishers, 257 p.

534 Caplow, T., Schlosser, P., and Ho, D. (2004). Tracer study of mixing and transport
535 in the upper Hudson River with multiple dams. *Journal of Hydraulic Engineering*,
536 130(12):1498–1506.

537 Carr, M. and Rehmann, C. (2007). Measuring the dispersion coefficient with acoustic
538 Doppler current profilers. *Journal of Hydraulic Engineering*, 133(8):977–982.

539 Chatwin, P. (1971). On the interpretation of some longitudinal dispersion experiments.
540 *Journal of Fluid Mechanics*, 48(4):689–702.

541 Chatwin, P. (1980). Presentation of longitudinal dispersion data. *Journal of Hydraulic*
542 *Divisions*, 106(1):71–83.

543 Cheong, T., and Seo, I. (2003). Parameter estimation of the transient storage model by a
544 routing method for river mixing processes. *Water Resources Research*, 39(4):1–11.

545 Davis, S., Thompson, G., Bentley, H., and Stiles, G. (1980). Ground-water tracers - A
546 short review. *Ground Water*, 18(1):14–23.

547 DHI (2009). MIKE11 - A Modelling System for Rivers and Channels. *Reference Manual*,
548 524 p.

549 Duarte, A. A. and Boaventura, R. A. (2008). Dispersion modelling in rivers for water
550 sources protection, based on tracer experiments. Case studies. In Mastorakis, N.E.,

551 Poulos, M., Mladenov, V., Bojkovic, Z., Simian, D. and Kartalopoulos, S., editor, *Proc.*
552 *2nd Int. Conf. on Waste Management, Water Pollution, Air Pollution, Indoor Climate*,
553 Energy and Environmental Engineering Series, pages 205–210, Corfu, Greece.

554 Elder, J. (1959). The dispersion of marked fluid in turbulent shear flow. *Journal of Fluid*
555 *Mechanics*, 5(4):544?560.

556 Fassnacht, S. (1997). A multi-channel suspended sediment transport model for the Macken-
557 zie Delta, Northwest Territories. *Journal of Hydrology*, 197:128-145.

558 Field, M., Wilhem, R., Equilan, J., and Aley, T. (1995). An assessment of the potential
559 adverse properties of fluorescent tracer dyes used for groundwater tracing. *Environmental*
560 *Monitoring and Assessment*, 38:7596.

561 Fischer, H. (1966). Longitudinal dispersion in laboratory and natural streams. Report
562 KH-R-12, Keck Laboratory of hydraulics and water resources, California Institute of
563 Technology, Pasadena, California, USA. 265 p.

564 Fischer, H. (1968). Dispersion predictions in natural streams. *J. Sanit. Eng. Div., ASCE*,
565 94(SA5):927–943.

566 Fischer, H. (1975). Discussion of simple method for predicting dispersion in stream by
567 R. S. McQuivey and T. N. Keefer. *Journal of Environmental Engineering Division*,
568 101(3):453?455.

569 Fischer, H., List, E., Koh, R., Imberger, J., and Brooks, N. (1979). *Mixing in Inland and*
570 *Coastal Waters*. Academic Press, New York. 497 p.

571 Flury, M. and Wai, N. (2003). Dyes as tracers for vadose zone hydrology. *Reviews of*
572 *Geophysics*, 41:1002.

573 Gooseff, M.N., Hall JR., R.O., and Tank, J.L. (2005). Relating transient storage to channel
574 complexity in streams of varying land use in Jackson Hole, Wyoming. *Water Resources*
575 *Research*, 43(W01417):1–10.

576 Ho, D., Schlosser, P., and Caplow, T. (2002). Determination of longitudinal dispersion
577 coefficient and net advection in the tidal Hudson River with a large-scale, high resolution
578 SF6 tracer release experiment. *Environmental Science & Technology*, 36(15):3234–3241.

579 Hubbard, E., Kilpatrick, F., Martens, L., and Wilson, J. (1982). Measurement of time
580 of travel and dispersion in streams by dye tracing. *Techniques of Water- Resources*
581 *Investigations*, vol. 3, 44 p.

582 Iwasa, Y. and Aya, S. (1991). Predicting longitudinal dispersion coefficient in open channel
583 flows. In *Int. Symp. on Environmental Hydraulics*, pages 505–510, Hong-Kong, China.

584 Jobson, H. (1997). Predicting travel time and dispersion in rivers and streams. *Journal of*
585 *Hydraulic Engineering-ASCE*, 123(11):971–978.

586 Jobson, H. (2001). Predicting river travel time from hydraulic characteristics. *Journal of*
587 *Hydraulic Engineering-ASCE*, 127(11):911–918.

588 Kilic, S.G., and Aral, M.M. (2009). A fugacity based continuous and dynamic fate and
589 transport model for river networks and its application to Altamaha River. *Science of*
590 *the total environment*,407(12):3855–3866.

591 Kim, D. (2012). Assessment of longitudinal dispersion coefficients using Acoustic Doppler
592 Current Profilers in large river. *Journal of Hydro-Environment Research*, 6(1):29–39.

593 Koussis, A. and Rodriguez-Mirasol, J. (1998). Hydraulic estimation of dispersion coefficient
594 for streams. *Journal of Hydraulic Engineering-ASCE*, 124(3):317–320.

595 Leibundgut, C., Maloszewski, P., and Külls, C. (2009). *Tracers in Hydrology*. Wiley-
596 Blackwell.

597 Liu, H. (1977). Predicting dispersion coefficient of streams. *Journal of the Environmental*
598 *Engineering Division*, 103(1):59–69.

599 Magazine, M., Pathak, S. and Pande, P. (1988). Effect of bed and side roughness on
600 dispersion coefficient in natural streams. *Journal of Hydraulic Engineering*, 114(7):766–
601 782.

602 Marion, A., Zaramella, M., and Bottacin-Busolin, A. (2008). Solute transport in rivers with
603 multiple storage zones: The STIR model. *Water Resources Research*, 44(10), W10406.

604 Nordin Jr., C.F.N. and Troutman, B. M. (1980). Longitudinal dispersion in rivers: The
605 persistence of skewness in observed data. *Water Resources Research*, 16(1):123–128.

606 Rowinski, P., Guymer, I., and Kwiatkowski, K. (2008). Response to the slug injection
607 of a tracer-a large-scale experiment in a natural river. *Hydrological Sciences Journal*,
608 53(6):1300–1309.

609 Rutherford, J. (1994). *River Mixing*. Wiley. 362 p.

610 Scheidegger, A. (1961). General theory of dispersion in porous media. *Journal of Geophys-*
611 *ical Research*, 66:3273–3278.

612 Seo, I. and Cheong, T. (1998). Predicting longitudinal dispersion coefficient in natural
613 streams. *Journal of Hydraulic Engineering-ASCE*, 124(1):25–32.

614 Seo, I. and Baek, K. (2004). Estimation of the longitudinal dispersion coefficient using the
615 velocity profile in natural streams. *Journal of Hydraulic Engineering-ASCE*, 130:227–
616 236.

617 Shen, C., Niu, J., Anderson, E., and Phanikumar, M. (2010). Estimating longitudinal dis-
618 persion in rivers using Acoustic Doppler Current Profilers. *Advances in Water Resources*,
619 33(6):615–623.

620 Smart, P. (1984). A review of the toxicity of twelve fluorescent dyes used for water tracing.
621 *The National Speleological Society Bulletin*, 46:21.

622 Smart, P. and Laidlaw, I. (1977). An evaluation of some fluorescent dyes for water tracing.
623 *Water Resources Research*, 13 (1):15–33.

624 Souhar, O., and Faure, J.-B. (2009). Approach for uncertainty propagation and design in
625 Saint Venant equations via automatic sensitive derivatives applied to Saar river. *Cana-*
626 *dian Journal of Civil Engineering 36 (7)*, 1144–1154.

627 Steinheimer, T. and Johnson, S. (1986). Investigation of the possible formation of diethyl-
628 nitrosamine resulting from the use of rhodamine WT dye as a tracer in river waters.
629 *USGS WSP 2290*, 2290:37.

630 Szeftel, P., Moore, R.D., and Weiler, M. (2011). Influence of distributed flow losses and
631 gains on the estimation of transient storage parameters from stream tracer experiments.
632 *Journal of Hydrology*, 396, 277–291.

633 Taylor, G. (1954). The dispersion of matter in turbulent flow through a pipe. In *Royal*
634 *society*, volume A, pages 446–468.

635 Wilson, J., Cobb, E., and Kilpatrick, F. (1986). Fluorometric procedures for dye tracing.
636 *Techniques of Water-Resources Investigations*, vol. 3, 31 p.

637 Wörman, A. and Wachniew, P. (2007). Reach scale and evaluation methods as limitations
638 for transient storage properties in streams and rivers. *Water Resources Research*, 43,
639 W10405.

Table 1: Values of the parameters in Eq. 2 according to various authors

Authors	a	b	c
Elder (1959)	5.93	0	0
Fischer (1975)	0.011	2	2
Liu (1977)	0.18	0.5	2
Iwasa and Aya (1991)	2	0	1.5
Seo and Cheong (1998)	5.915	1.428	0.62
Koussis and Rodriguez-Mirasol (1998)	0.6	0	2

Table 2: Comparison of the empirical formulae performances using experimental data from the literature

Authors / formula	mean(E)	std(E)	$G2$ (%)	$G5$ (%)
Elder (1959)	-1.87	0.86	5	7
Fischer (1975)	0.23	0.81	3	62
Liu (1977)	0.26	0.55	46	78
Iwasa and Aya (1991)	0.1	0.65	45	83
Seo and Cheong (1998)	0.27	0.56	51	84
Koussis and Rodriguez-Mirasol (1998)	0.38	0.67	39	69

Table 3: Comparison of velocities computed reach by reach using the numerical model (U_{model}), ADCP measurements (U_{ADCP}) and tracing experiments (U_{cloud}). Acronyms standing for tracing experiments and sites are presented in Fig. 2.

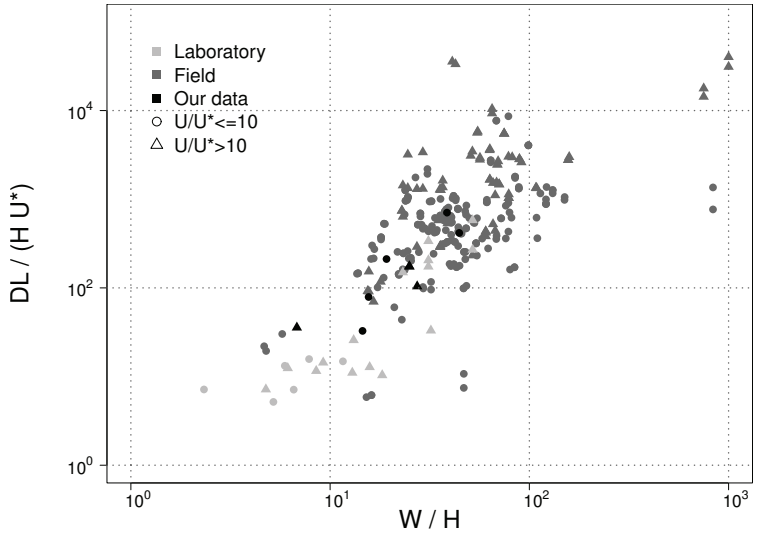
	U_{model}		U_{ADCP}		U_{cloud}	
	Site	[m/s]	Site	[m/s]	Reach	[m/s]
GE11	G3	0.25			G2→G3	0.28
	G4	0.24	G4	0.26	G3→G4	0.25
MI11	M1	0.65	M1	0.55	M1→M3	0.70
	M3	0.81	M3	0.76		
VR11	VR1	0.57	VR1	0.66	M2-LB→VR1-LB	0.75
CS11	CS1	0.54	CS1	0.50	CS1-RB→CS2-RB	0.73
JN11	J1	0.57	J1	0.59	J2→J3	0.55

Table 4: Characteristics of the uniform reaches for the different tracing experiments, as derived from the 1-D model: reach boundaries (1) (cf. Fig. 2), reach length L_r, discharge Q, width W, water depth H, Strickler coefficient K_s, longitudinal slope J, section-averaged velocity U, section-averaged shear velocity U_*, distance between injection position and the homogeneous reach start L_i, advective zone length computed with Eq. 4 ($\alpha = 1$) L_x, qualitative rating of tracer mixing (2), dispersion coefficients obtained from the tracing experiments by fitting the 1-D model ($D_{L,exp}$) or by applying the change of moment method ($D_{L,mmt}$), and dispersion coefficients derived from ADCP measurements using Eq. 6 ($D_{L,t}$) and Eq. 8 ($D_{L,v}$), respectively.

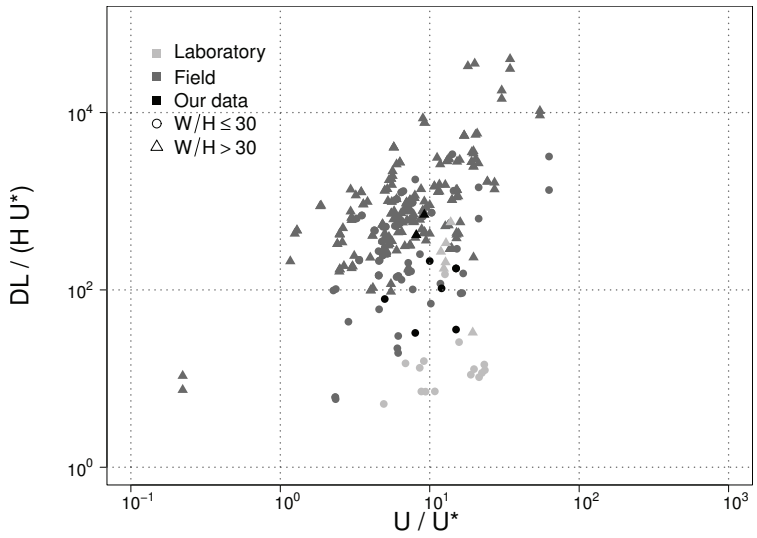
	(1)	L_r [km]	Q [m^3/s]	W [m]	H [m]	K_s [m$^{1/3}$/s]	J [m/m]	U [m/s]	U_* [m/s]	L_i [km]	L_x [km]	(2)	$D_{L,exp}$ [m^2/s]	$D_{L,mmt}$ [m^2/s]	$D_{L,t}$ [m^2/s]	$D_{L,v}$ [m^2/s]
GE11	G2-G4	1.2	10.7	14.3	2.1	40	2×10^{-5}	0.30	0.02	0.8	0.6	full	1.5	1.6	0.32	0.015
MI01	B3-B4	2.6	31.9	65.6	1.7	24	4×10^{-4}	0.46	0.05	14.2	8.8	full	60	59		
MI11	M3-M4	3.2	60.7	66.7	1.5	24	5×10^{-4}	0.65	0.08	4.8	11	partial	50	29	32.2	0.004
VR01	B5-B7	3.3	9.5	59.3	3.8	24	5×10^{-6}	0.05	0.01	14.0	8.8	full	3.0	3.1		
VR11	VR1-VR2	2.7	19.4	49.9	2.6	24	4×10^{-4}	0.20	0.02	5.4	11	full	11	17	3.0	0.01
CS11	CS1-CS2	2.6	6.0	16.0	1.1	24	4×10^{-4}	0.40	0.05	5.4	11	full	1.8	9.3	0.93	0.007
JN00	A2-A4	9.4	425	125	5.0	35	2×10^{-3}	0.74	0.05	8.5	19	partial	35	78		
JN11	J3-J6	5.5	146	131	4.8	35	7×10^{-5}	0.24	0.02	2.9	49	partial	10	6.5	32	0.04

Table 5: Performances of the empirical formulae using our data from tracing experiments

Authors / formula	mean(E)	std(E)	$G2$ (%)	$G5$ (%)
Elder (1959)	-1.65	0.45	0	13
Fischer (1975)	0.57	0.36	38	63
Liu (1977)	0.25	0.28	50	88
Iwasa and Aya (1991)	0.13	0.24	75	100
Seo and Cheong (1998)	0.90	0.42	13	38
Koussis and Rodriguez-Mirasol (1998)	0.27	0.28	50	100



(a)



(b)

Figure 1: Variability of the dimensionless longitudinal dispersion coefficient $D_L/(HU_*)$ with the aspect ratio, W/H (a) and with the roughness ratio, U/U_* (b).

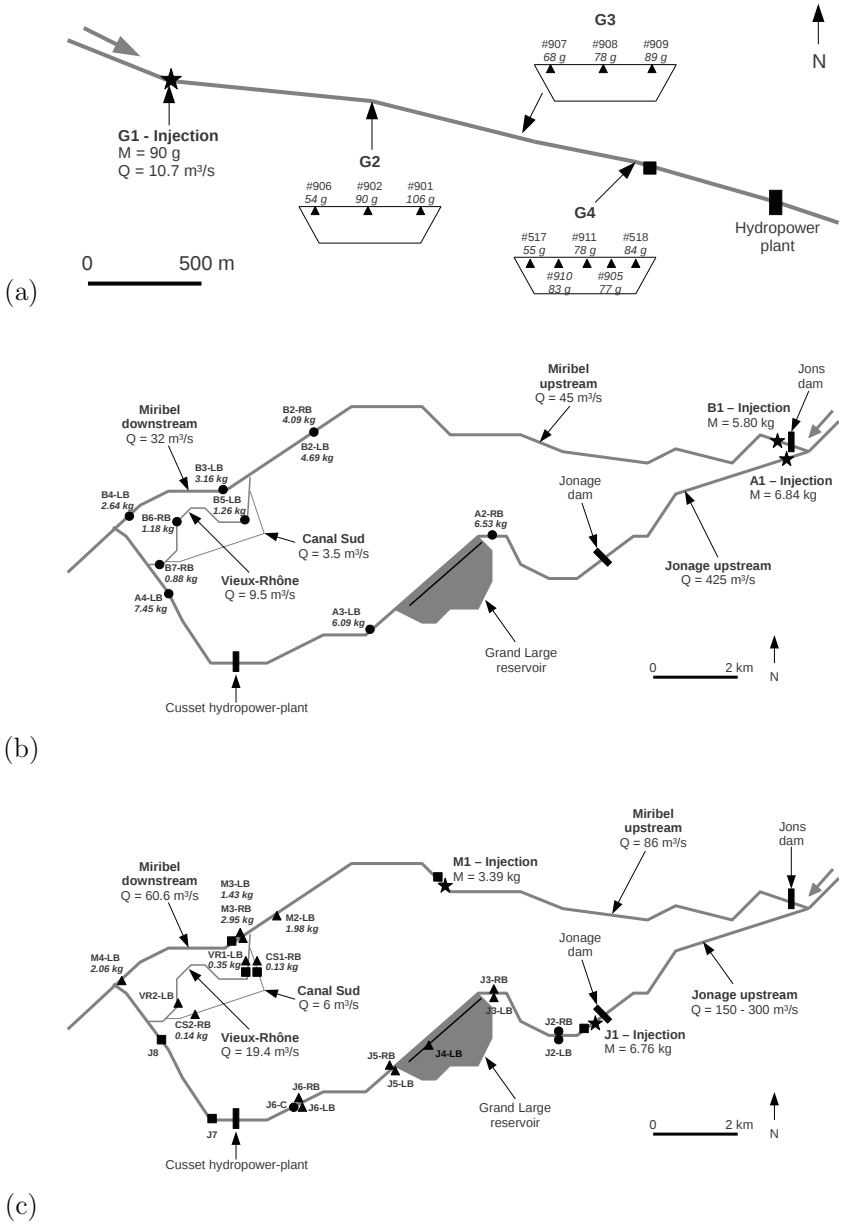


Figure 2: Schematic maps of the tracing experiments in the Gentille canal in 2011 (a, GE11), in the Jonage and Miribel channels in 2000-2001 (b, JN00, MI01) and in 2011 (c, JN11, MI11). Symbols and abbreviations stand for injection points (★), field fluorimeters (▲), manual sampling (●), ADCP measurements (■), discharges (Q), masses (M), left bank (LB), right bank (RB).

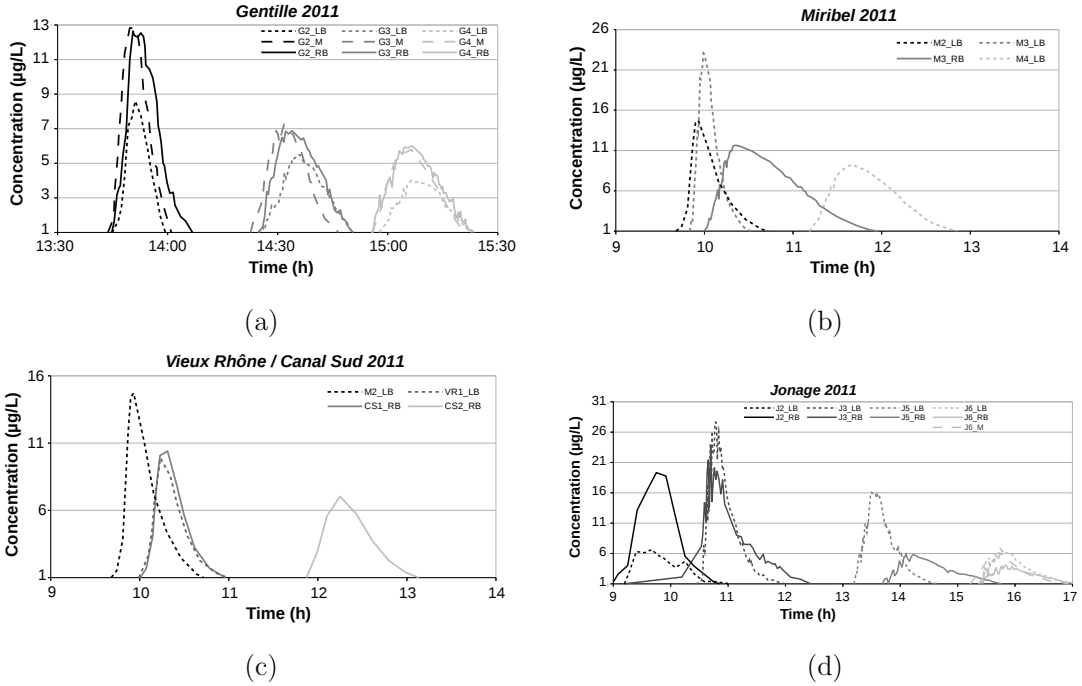


Figure 3: Breakthrough curves monitored during the 2011 tracing experiments along the Gentille canal (a, GE11), the Jonage canal (b, JN11), the Miribel canal (c, MI11) and the Vieux-Rhône and Canal Sud area (d, MI11). The locations of all the stations are presented in Fig. 2.

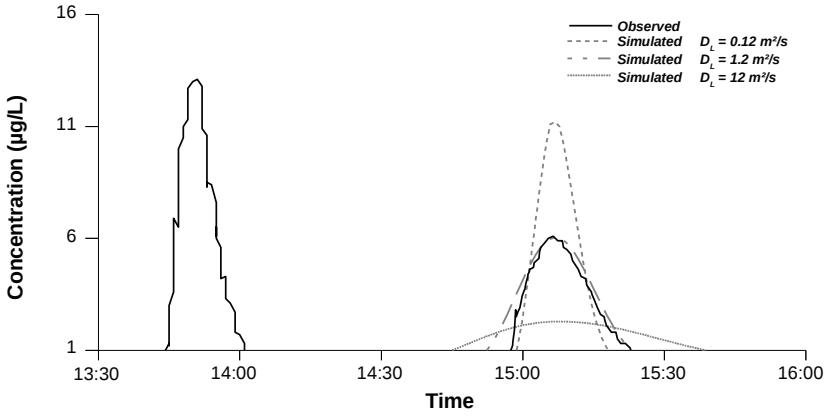


Figure 4: Fit-by-eye procedure to determine the D_L parameter using the numerical model over a homogeneous reach: example of the data supplied by fluorescent tracing experiments in the Gentille canal in 2011 (GE11).

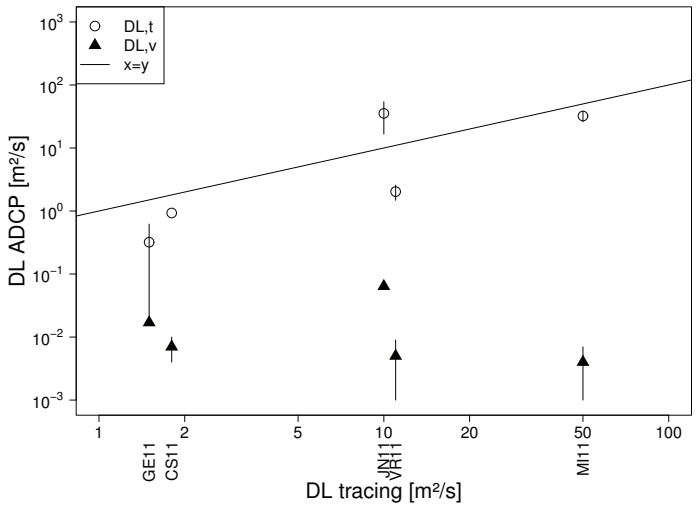


Figure 5: ADCP-based longitudinal dispersion coefficients ($D_{L,t}$, $D_{L,v}$) against the results of the tracing experiments. Error bars show the standard-deviation computed over the successive ADCP transects.

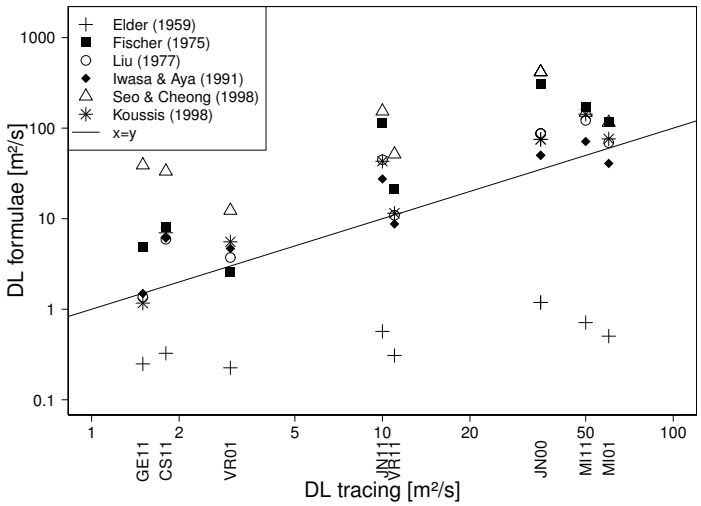


Figure 6: Longitudinal dispersion coefficients predicted by state-of-the-art formulae against the results of the tracing experiments.

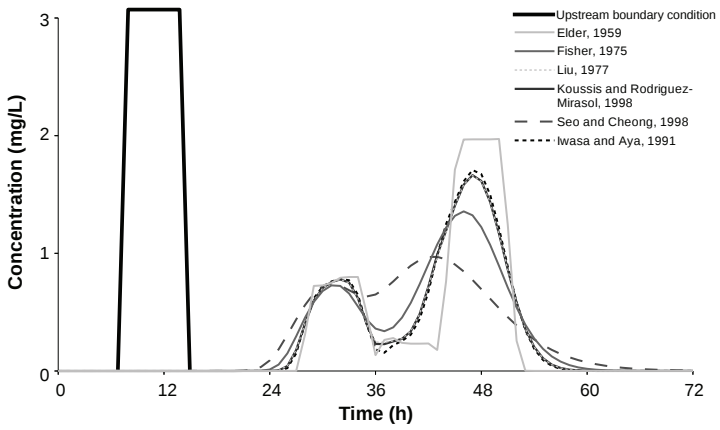


Figure 7: Simulated propagation of a pollution peak through the Miribel-Jonage river network, using six different formulae to compute D_L.

Lyon, March 31 2014

Dr. Jérôme Le Coz
Irstea – Hydrology-Hydraulics
5 rue de la Doua CS 70077
F-69626 Villeurbanne, France.

Title:
Calibrating pollutant dispersion in 1-D hydraulic models of river networks

Authors:
M. Launay, J. Le Coz, B. Camenen, C. Walter, H. Angot, G. Dramais, J.-B. Faure, and M. Coquery

---

Dear Editors,

Please consider the enclosed manuscript submitted for publication in *Journal of Hydro-Environment Research*, after **first revision**.

I look forward to your reply.

Sincerely yours,

Dr. J. Le Coz

Further correspondence to:

Dr. Jérôme LE COZ
Irstea - Hydrology Hydraulics
5 rue de la Doua CS 70077
F-69626 Villeurbanne cedex
FRANCE
phone: 33 4 72 20 87 86
fax: 33 4 78 47 78 75
e-mail: jerome.lecoz@irstea.fr

Flux de matières en suspension, de mercure et de PCB particulaires dans le Rhône, du Léman à la Méditerranée

Résumé : La connaissance des flux de contaminants particulaires véhiculés par les cours d'eau est cruciale pour la gestion des pollutions environnementales, mais elle se heurte à d'importantes difficultés technologiques, méthodologiques et scientifiques. Grâce à un effort d'observation intensive rendue possible par l'Observatoire des sédiments du Rhône, ce travail de recherche s'est concentré sur la dynamique spatio-temporelle des flux de contaminants particulaires – mercure et PCB – au sein du Rhône et de ses principaux affluents contributeurs en matières en suspension (MES) : l'Arve, la Saône, l'Isère et la Durance. La stratégie d'observation choisie et validée privilégie un échantillonnage quasi-continu des débits, concentrations en MES (par turbidimétrie) et teneurs en contaminants (par piège intégratif), associé à des prélèvements de référence (manuels, ou par centrifugation) et à une caractérisation détaillée des particules en termes de granulométrie et de taux de carbone organique. A partir des données ainsi mesurées et existantes, l'étude de la variabilité spatio-temporelle des différents paramètres et de leurs facteurs d'influence a permis de proposer et de valider des méthodes adaptées pour la quantification des flux particulaires à l'échelle événementielle, annuelle et inter-annuelle. Ces résultats fournissent une nouvelle vision des flux particulaires dans le Rhône à l'échelle du réseau hydrographique, et soulignent l'importance des événements hydro-sédimentaires majeurs et des interactions avec les aménagements hydro-électriques. Ces processus hydro-sédimentaires complexes motivent une contribution à l'amélioration de la simulation numérique du Rhône.

Mots-clés : Flux particulaires, matières en suspension, mercure, polychlorobiphényles, Rhône, modélisation hydro-sédimentaire.

Fluxes of suspended particulate matters, particulate mercury and PCBs in the Rhône river from lake Geneva to the Mediterranean Sea

Abstract : The knowledge of particulate contaminant fluxes transported by rivers is crucial for the management of environmental pollution, but it is compromised by significant technological, methodological and scientific difficulties. Through an intensive observational effort made possible by the Rhône Sediment Observatory, this research focused on the spatio-temporal dynamics of particulate contaminant – mercury and PCBs – fluxes in the Rhône and its major tributaries as regards suspended particulate matters (SPM) contribution : the Arve, Saône, Isère and Durance rivers. The chosen and validated observation strategy is based on the quasi-continuous monitoring of discharge, SPM concentrations (by turbidimetry) and contaminant contents (using sediment integrative traps), associated with samples of reference (manual sampling or centrifugation) and a detailed characterization of particles in terms of grain-size and organic carbon contents. From measured and existing data, the study of the spatio-temporal variability of parameters and of their factors of influence allowed us to propose and validate suitable methods for the quantification of particulate fluxes at the event, annual and inter-annual scales. These results provide a new insight into the particulate fluxes throughout the Rhône river system and highlight the importance of major hydro-sedimentary events and of the interactions with hydro-power schemes. Such complex hydro-sedimentary processes motivate the improvement of the numerical simulation of the Rhône river.

Keywords : Particulate fluxes, suspended particulate matters, mercury, polychlorobiphenyls, Rhône river, hydro-sedimentary modeling.