



**HAL**  
open science

# Première étude sur la contamination aux microplastiques des environnements lacustres français, en étages alpin et subalpin

Julia Dusaucy

► **To cite this version:**

Julia Dusaucy. Première étude sur la contamination aux microplastiques des environnements lacustres français, en étages alpin et subalpin. Biodiversité et Ecologie. Université Savoie Mont Blanc, 2023. Français. NNT : 2023CHAMA020 . tel-04500629

**HAL Id: tel-04500629**

**<https://theses.hal.science/tel-04500629>**

Submitted on 12 Mar 2024

**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.



## THÈSE

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ SAVOIE MONT BLANC**

Spécialité : **Biodiversité, Écologie, Environnement**

Arrêté ministériel : 25 Mai 2016

Présentée par

**Julia DUSAUCY**

Thèse dirigée par **David Gateuille** et **Emmanuel Naffrechoux**

préparée au sein du **Laboratoire Environnements, Dynamiques et Territoires de la Montagne (EDYTEM) - UMR 5204**

dans l'**École Doctorale Sciences, Ingénierie et Environnement (SIE)**

## Première étude sur la contamination aux microplastiques des environnements lacustres français

Thèse soutenue publiquement le **12/07/2023**,  
devant le jury composé de :

**Mme, Marie-Élodie Perga**

Professeure, UNIL, Lausanne, Rapporteuse

**M, Johnny Gaspéri**

Directeur de recherche, Université Gustave Eiffel, Nantes, Rapporteur

**Mme, Marina Coquery**

Directrice de recherche, INRAE, Lyon, Présidente du jury

**M, Florian Breider**

Responsable d'unité, EPFL, Lausanne, Examineur

**M, Lionel Navarro**

Chargé d'études, Agence de l'eau RMC, Lyon, Invité

**M, Sébastien Cachera**

Responsable de pôle, CISALB, Chambéry, Invité

**M, David Gateuille**

Maître de conférences, USMB, Le Bourget-du-Lac, Directeur de thèse

**M, Emmanuel Naffrechoux**

Professeur, USMB, Le Bourget-du-Lac, Directeur de thèse

A watercolor illustration of a serene lake scene. In the upper right, a large, bright orange sun is partially obscured by a white, cloud-like shape. The sky is a mix of light yellow and orange. The lake is depicted with various shades of blue and green, suggesting depth and reflection. On the left side, a small island or peninsula is covered with several green, conical trees. The overall style is soft and artistic, typical of watercolor painting.

POLLUTION AUX  
**MICROPLASTIQUES**  
DES ENVIRONNEMENTS LACUSTRES

*Julia Dusaucy*





*À mes grands-parents,  
Qui chérissaient tant  
le lac Léman*



*La nature sauvage inspire l'émerveillement, l'émerveillement inspire le respect, parce qu'on respecte ce qui nous émerveille, on ne le détruit pas, on ne le dénature pas*

Matthieu Ricard



| 1975 |

*La pollution visuelle due aux polymères synthétiques, en particulier les plastiques, est évidente pour quiconque visite une plage dans la plupart des régions du monde. Cependant, ils ne semblent pas constituer une menace biologique sérieuse. Ils ne sont ni toxiques ni solubles dans l'eau, ne pénètrent pas dans les chaînes alimentaires et, lorsqu'ils sont finalement dégradés, les produits sont généralement inoffensifs.*

Traduit depuis l'ouvrage

The Chemistry and Microbiology of Pollution

I. J. Higgins and R. G. Burns

University of Kent at Canterbury, England

1975



## Remerciements

Je dois avouer avoir effectué quelques recherches en ligne pour rédiger de manière optimale les remerciements de ma thèse de Doctorat. Les ressources disponibles proposent de nombreux conseils tels que limiter le nombre de personnes mentionnées, ne pas inclure les membres de la famille, se limiter à une page, utiliser un ton professionnel et éviter le sentimentalisme... Autant vous dire que j'ai rapidement refermé ces pages web et opté pour l'authenticité, en laissant parler mon cœur, pour rédiger des remerciements sincères qui reflètent mes sentiments envers toutes les personnes qui ont contribué à cette aventure épique qu'a été ma thèse.

Je souhaite tout d'abord remercier les financeurs de la thèse, l'Agence de l'Eau Rhône-Méditerranée-Corse et la Fondation Université Savoie Mont Blanc pour avoir permis de rendre possible ce projet. Je voudrais également remercier les membres du jury qui ont accepté d'examiner ce travail, Marie-Élodie Perga, Marina Coquery, Johnny Gaspéri et Florian Breider. Je tiens à remercier particulièrement Marie-Élodie Perga et Johnny Gaspéri pour avoir consacré généreusement leur temps à lire et rapporter mon travail.

Ma thèse a commencé en Février 2020, cette année qui nous a marqués... Un mois plus tard, le premier confinement a démarré et aura duré plusieurs mois. Merci à la meilleure des équipes David, Manu et Yves pour avoir dirigé mes travaux. Merci d'avoir été présents pendant cette période au téléphone, en visio et même autour de quelques bières chez Manu (c'était à moins d'un kilomètre, je vous assure !) pour m'accompagner au mieux dans ce début de thèse un peu chaotique. Merci pour votre accompagnement tout au long de cette thèse, votre soutien et votre bienveillance mais aussi votre patience et disponibilité pour répondre à toutes mes questions et calmer mes doutes. Merci également pour vos encouragements et votre aide à la rédaction de ce manuscrit. Je suis vraiment heureuse d'avoir fait partie de votre équipe et un peu triste, je vous avoue, de la quitter pour d'autres aventures qui j'espère seront à la hauteur de celle vécue à vos côtés.

L'été qui a suivi je me souviens être allée apprendre les manips de terrain avec vous, David et Manu, et l'équipe AQUALTI, Fred, Florian, Grégory, Dorothée et Claire mais aussi les équipes du CEN de Haute-Savoie et des Parcs Nationaux, dans les plus beaux décors qu'offrent la montagne : la Vanoise, les Écrins, le Mercantour, les Aiguilles Rouges... J'ai vécu des moments



mémorables à dormir dans des refuges (plus ou moins confortables), à me transformer en Sherpa avec des kilos sur le dos, à faire mes premiers gros dénivelés en rando, à briser de la glace de lac dès l'aube, à admirer chaque coucher et lever de soleil, à croiser des chamois, observer les marmottes et discuter avec les bouquetins... Maintenant que j'y pense, je serais presque tentée de recommencer ma thèse. J'en profite pour remercier Fred de m'avoir tout de suite parfaitement intégrée à l'équipe AQUALTI. J'ai vraiment apprécié réaliser de nombreux terrains en ta compagnie. Florian et Grégory merci de vous être mouillés à près de 2 500 mètres d'altitude au lac Merlet pour réaliser les échantillonnages de sédiments. Florian, je me souviendrai toujours de ce jour où tu as retrouvé ma trappe à sédiment en plusieurs morceaux... J'en profite pour m'excuser auprès du pêcheur inconnu qui a dû croire l'espace d'un instant avoir une sacrée prise...

J'aimerais aussi prendre le temps de remercier Philippe, qui a eu un rôle essentiel dans le développement des méthodes d'échantillonnage. Tu m'as accompagné maintes et maintes fois sur le terrain, toujours avec le sourire, même dans des conditions météo pas toujours clémentes. Merci pour le temps que tu as passé à mes côtés au cours de ces trois années. Je me souviens d'une petite anecdote un jour sur le terrain au lac du Bourget, seule aux commandes du bateau. Le vent s'était levé et il me semblait impossible de rentrer au port sans causer de dégâts. Je t'ai appelé au téléphone et tu m'as dit « Julia, mets les gaz, tu peux le faire ! ». Et tu avais raison, j'ai réussi à rentrer sans encombre. Grâce à toi, je pense pouvoir dire que j'ai gagné en confiance en mes capacités, et maintenant je suis une vraie capitaine !

J'aimerais également exprimer ma reconnaissance envers toutes les personnes des CEN de Savoie et de Haute-Savoie, ainsi que les équipes du Parc de la Vanoise, du SILA et du CISALB pour leur disponibilité à répondre à mes questions et à partager des données précieuses pour l'interprétation de mes résultats. Merci particulièrement au SILA et au CISALB pour avoir mis à ma disposition leurs bateaux respectifs, ce qui m'a permis de mener mes campagnes de terrain. Je tiens à remercier chaleureusement Jérémy du CISALB et Laura du SILA pour m'avoir formé sur le fonctionnement des bateaux. Je tiens également à remercier Baptiste et Jérôme du CEN de Savoie pour m'avoir permis de mettre en place un système de collecte des retombées atmosphériques sur l'espace naturel du sud du lac du Bourget. Je remercie également Raphaëlle et Carole du CEN de Haute-Savoie pour m'avoir proposé de présenter mes recherches lors de l'évènement Une Montagne de Recherches. Je souhaite également

remercier le service technique de la mairie du Veyrier-du-Lac, en particulier Alain Antoine, pour avoir mis à ma disposition un espace pour un dispositif de collecte. Enfin, un grand merci aux équipes du Parc de la Vanoise, je pense à Danièle, Wilfried, Nicolas, Patrick et Vincent.

Je suis également reconnaissante envers mes collègues pour leur soutien tout au long de cette aventure. En particulier, je veux mentionner Lise, qui a été ma complice de bureau. Nous avons eu tant de discussions passionnantes et de chouettes aventures, bien plus qu'une collègue, tu es devenue une amie. Tanguy, j'ai adoré nos pauses baignade au lac en toutes saisons, une nouvelle habitude que je garderai à vie. En tout cas, on a bien progressé en quelques années ! Fabrice, toutes nos discussions au labo et nos rigolades m'ont fait beaucoup de bien, merci pour ta bonne humeur constante. Merci aussi pour tes conseils et ton soutien pour ma fin de thèse. Alexandre, c'était génial de faire ensemble MT180, partager nos déjeuners l'été dernier quand il n'y avait que nous au labo et toutes nos courses à pied. Charlotte et Vanille, merci de m'avoir chaleureusement accueillie au sein du pôle Chartreuse. Votre présence a été très importante pour moi et j'ai apprécié les moments passés avec vous. Violaine, partager avec toi la passion du yoga a été un véritable plaisir. Je tiens à te remercier pour ton accueil toujours chaleureux et souriant, ainsi que pour ton attitude bienveillante envers les autres. En tant que collègue, cela a été plus qu'appréciable. Nathalie, merci pour ta disponibilité et ton aide concernant le fonctionnement du laboratoire. Et comment oublier notre excursion au lac Pavé ? C'était un véritable périple dont je me souviendrai toujours. Bernard, merci de t'être occupé à plusieurs reprises de la chambre climatique qui sonnait en permanence et que je n'entendais plus, ou que je ne voulais plus entendre. Et Cindy, je ne t'oublie pas non plus, merci pour ton soutien précieux sur tous les fronts administratifs, ta disponibilité et ta bonne humeur contagieuse.

J'aimerais remercier particulièrement toutes les personnes qui ont répondu présents pour m'accompagner sur mes nombreux terrains : Lise, Tanguy, Léna, Stéphane, Philippe, Christine, Manu, David, Timothé, Aurélie, Audrey, Julia, Charlotte, Manon, Franck, Violaine, Fabien, William, Manu M., Fred, Florian, Grégory mais aussi exceptionnellement mes proches. Il y a eu quelques moments mémorables, dont le démêlage du fameux treuil avec Stéphane et Timothé... Je voudrais vous remercier d'avoir gardé patience pour le démêler, car ce n'était pas une tâche facile ! David et Fred, je me souviendrai toujours de notre premier terrain sur le lac

du Bourget où dès les premières minutes on a déchiré le filet... Bref, je pourrais écrire un roman sur toutes ces aventures.

J'aimerais de façon plus globale remercier le laboratoire EDYTEM, que ce soit en Chartreuse ou au pôle Montagne, pour m'avoir accueillie en tant que doctorante, j'aurai aimé avoir plus de temps pour apprendre à connaître chacune et chacun d'entre vous.

Je souhaiterais chaleureusement remercier toutes les équipes de France 3 et France 5 pour avoir mis en lumière mes travaux de thèse, ainsi qu'envers la RTS, Dorothée Adam-Mazard, Alice Roy, Mathilde Bourreau, les journaux locaux des DNA et du Dauphiné. J'en profite ici aussi pour remercier l'accompagnement de Pascale et Jean-Yves dans la participation à MT180, Aurore et le Club des Entreprises de l'USMB pour leur aide lors du TEDxUSMB. Un grand merci également à la fondation Surfrider, en particulier Océane et Antoine, avec qui j'ai eu l'opportunité de passer quelques jours en Suisse en rafting sur le Rhin. Je suis également reconnaissante envers les collègues de Jean Monnet et Jean-Jacques Perret pour leur accueil auprès des élèves, pour discuter de la pollution aux microplastiques dans le cadre du projet de sciences participatives Plastiques à la Loupe. Pour finir merci à AQUALIS, le Pôle Média-Culture de Colmar, Hubert d'Alsace Nature, l'association Les Blairoudeurs, le GDR P&O et l'entreprise EXPLORA Project pour m'avoir donné l'opportunité de parler de la problématique de la pollution aux microplastiques dans les environnements lacustres et de montagne.

J'en profite ici pour exprimer ma gratitude envers mes proches, amis(es) et famille, pour leur soutien inconditionnel. Votre amour, vos encouragements et votre fierté m'ont permis de persévérer même dans les moments les plus difficiles. Maman, Papa, c'est officiel, j'ai terminé mes études. Merci de m'avoir accompagné tout au long de mon parcours, que ce soit en Bourgogne, en Hongrie, à Paris, en Bretagne, au Svalbard, en Islande et en Savoie. Vous m'avez toujours encouragé à poursuivre mes rêves, malgré la distance, et pour cela, je vous en suis reconnaissante.

Mes pensées vont également à mes grands-parents qui sont partis vers d'autres horizons au cours de la réalisation de cette thèse. Je tiens à leur dédier cette thèse, eux qui ont passé de nombreux étés au bord du lac Léman et qui ont toujours été émerveillés par les paysages qui façonnent cette magnifique région. Maintenant, je comprends mieux l'admiration que vous aviez, Mamie et Papy, pour ces grands lacs et ces majestueuses montagnes. J'espère que là où

vous êtes, vous contemplez des paysages tout aussi splendides, peut-être même plus beaux que ceux que vous avez connus ici-bas.

Pour terminer ces remerciements, je souhaiterais adresser un immense merci à mon compagnon de vie. Tout au long de cette aventure qu'a été ma thèse, tu as été présent à mes côtés pour me soutenir dans les moments difficiles mais aussi célébrer les moments de réussite, m'encourager et me conseiller. Tu m'as épaulé pour terminer cette thèse en gérant mes hauts et mes bas avec brio, comme toujours. Ta patience et ta compréhension ont été inestimables pour moi, et je ne pourrais pas avoir demandé un partenaire plus aimant et attentionné.

Pour ceux que j'aurais pu oublier, je vous demande pardon, mais je suis sûre que vous comprendrez que mon cerveau est en mode « pleine capacité » depuis un moment maintenant, et je crois qu'il y a un peu de surchauffe là-haut.

Ju.



## Financements

Ces travaux de thèse ont été financés par l'Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse à hauteur de 165 544 €, la Fondation Université Savoie Mont Blanc à hauteur de 60 000 €, ainsi que l'Université Savoie Mont Blanc à hauteur de 105 544 €.

L'agence de l'eau est un établissement public de l'État qui œuvre pour la protection de l'eau et des milieux. Elle perçoit des taxes sur l'eau payées par tous les usagers et les réinvestit auprès des maîtres d'ouvrages (collectivités, industriels, agriculteurs et associations) selon les priorités inscrites dans son programme « Sauvons l'eau 2019-2024 ».

La fondation Université Savoie Mont Blanc a pour vocation de soutenir, valoriser la recherche et l'innovation ainsi que partager les connaissances.

Plus d'informations sur [www.eaurmc.fr](http://www.eaurmc.fr) et [www.fondation-usmb.fr](http://www.fondation-usmb.fr)







## Contributions scientifiques

### Articles scientifiques issus du doctorat

- ◆ **Dusaucy J.**, Gateuille D., Perrette Y., Naffrechoux E., 2021. Microplastic pollution of worldwide lakes. *Environ. Pollut.* 284, 117075. doi.org/10.1016/j.envpol.2021.117075
- ◆ Nava V., Chandra S., Aherne J., Alfonso M., Antão-Geraldes A. M., Attermeyer K., Bao R., Bartrons M., Berger S., Biernaczyk M., Bissen R., Brookes J., Brown D., Cañedo-Argüelles M., Canle M., Capelli C., Carballeira R., Cereijo J. L., Chawchai S., Christensen S., Christoffersen K., De Eyto E., Delgado J., Dornan T., Doubek J., **Dusaucy J.**, Erina O., Ersoy Z., Feuchtmayr H., Frezzotti M. L., Galafassi S., Gateuille D., Gonçalves V., Grossart H.-P., Hamilton D., Harris T., Kangur K., Kankılıç G. B., Kessler R., Kiel C., Krynak E., Leiva-Presa À., Lepori F., Matias M. G., Matsuzaki S., McElarney Y., Messyas B., Mitchell M., Mlambo M., Motitsoe S., Nandini S., Orlandi V., Owens C., Özkundakci D., Pinnow S., Pociecha A., Raposeiro P., Rõõm E.-I., Rotta F., Salmaso N., Sarma S.S.S., Sartirana D., Scordo F., Sibomana C., Siewert D., Stepanowska K., Tavşanoğlu Ü. N., Tereshina M., Thompson J., Tolotti M., Verburg P., Welsh B., Wesolek B., Weyhenmeyer G., Wu N., Zawisza E., Zink L., Leoni B., 2023. Plastic debris in lakes and reservoirs. *Nature*, *article accepté en attente de publication*

### Participation articles scientifiques hors doctorat

- ◆ Thor Adalsteinsson B., Kristjansdóttir T., Merre W., Helleux A., **Dusaucy J.**, Tourigny M., Fridjonsson O., Oli Hreggvidsson G., 2021. Efficient genome editing of an extreme thermophile, *Thermus thermophilus*, using a thermostable Cas9 variant. *Sci. Rep.* 11, 9586. doi.org/10.1038/s41598-021-89029-2
- ◆ Aevarsson A., Kaczorowska A.-K., Thor Adalsteinsson B., Ahlqvist J., Al-Karadaghi S., Altenbuchner J., Arsin H., Ágúst Átlason Ú., Brandt D., Cichowicz-Cieślak M., Cornish K., Courtin J., Dabrowski S., Dahle H., Djefane S., Dorawa S., **Dusaucy J.**, Enault F., Fedøy A.-E., Freitag-Pohl S., Fridjonsson O., Galiez C., Glomsaker E., Guérin M., Gundesø S., Gudmundsdóttir E., Gudmundsson H., Håkansson M., Henke C., Helleux A., Henriksen J., Hjörleifdóttir S., Hreggvidsson G., Jasilionis A., Jochheim A., Jónsdóttir I., Björk Jónsdóttir L., Jurczak-Kurek A., Kaczorowski T., Kalinowski J., Kozłowski L., Krupovic M., Kwiatkowska-Semrau K., Lanes O., Lange J., Lebrat J., Linares-Pastén J., Liu Y., Lorentsen S., Lutterman T., Mas T., Merré W., Mirdita M., Morzywołek A., Olo Ndela A., Nordberg Karlsson E., Olgudóttir E., Pedersen C., Perler F., Pétursdóttir S., Plotka M., Pohl E., Prangishvili D., Ray J., Reynisson B., Róbertsdóttir T., Sandaa R.-A., Sczyrba A., Skírnisdóttir S., Söding J., Solstad T., Steen I., Stefánsson S. K., Steinegger M., Stange Overå K., Striberny B., Svensson A., Szadkowska M., Tarrant E., Terzian P., Tourigny M., Van Den Bergh T., Vanhalst J., Vincent J., Vroling B., Walse B., Wang L., Watzlawick H., Welin M., Werbowy O., Wons E., Zhang R., 2021. Going to extremes - a metagenomic journey into the dark matter of life. *FEMS Microbiol. Lett.* 368, 12. doi.org/10.1093/femsle/fnab067
- ◆

## Participation projet international

- ◆ Projet international GALACTIC Global Lake microplastics, 2021

## Conférences internationales

- ◆ Congrès Society International of Limnology SIL, Gwangju, Republic of Korea, 2021

## Conférences nationales

- ◆ Journées Lacs Sentinelles, 2020
- ◆ Fête de la Science 2021, événement Une Montagne de Recherches, Sallanches
- ◆ « Les microplastiques, des polluants ubiquistes ? », Auditorium du Pôle Média-Culture de Colmar, 2022
- ◆ « Microplastiques et lacs alpins », Université Savoie Mont Blanc dans le cadre des conférences de l'association naturaliste les Blairoudeurs, 2022
- ◆ « Les microplastiques au lac du Bourget », centre d'interprétation du lac du Bourget AQUALIS, 2022
- ◆ Congrès Groupement de Recherche Polymères et Océans (GDR PO), Brest, 2022
- ◆ « Pollution plastique en montagne », EXPLORA Project, Annecy, 2022

## Vulgarisation scientifique et sciences participatives

- ◆ Fête de la Science 2020, Centre des Congrès Le Manège, Chambéry
- ◆ TEDxUSMB, « Le plastique : une espèce vulnérable en devenir », 2020
- ◆ Expédition Plastic Origins avec Surfrider Europe, 2021
- ◆ Interventions au Collège Jean-Jacques Perret d'Aix-les-Bains au sein du club scientifique de la professeure encadrante Céline Prissimitzis dans le cadre du projet de sciences participatives TARA, 2021-2022
- ◆ Intervention au Collège Jean Monnet de Saint-Jorioz en présence de la professeure Joëlle Gonnachon dans le cadre du projet de sciences participatives TARA, 2022
- ◆ Concours Ma Thèse en 180 secondes, Université Savoie Mont-Blanc, 2022 et membre du jury MT180 2023

## Communications médias

- ◆ Reportage par TV8 Mont-Blanc, 2020
- ◆ Articles journaux DNA et L'Alsace, 2020
- ◆ Podcast « Les Chercheurs » de Mathilde Bourreau, 2020
- ◆ Reportage émission Courants d'Est (France 3 Grand-Est) et Les Nouveaux Nomades spéciale Préserve ta Montagne (France 3 National), 2021

- ◆ Reportage émission Chroniques d'en Haut (France 3 ARA), 2021
- ◆ Reportage sonore émission Prise de Terre (Radio Télévision Suisse), 2021
- ◆ Reportage documentaire « L'or bleu des Alpes » de Dorothee Adam-Mazard (France 3 ARA, TV5 Monde et projections publiques), 2022
- ◆ Reportage émission Échappées Belles Spéciale Savoie Mont Blanc (T. Curin, France 5), 2023
- ◆ Reportage documentaire « Des cimes aux abysses » de l'ONG WeOcean, *en cours de réalisation*

## Abréviations

### | A |

ABS ▪ acrylonitrile-butadiène-styrène

### | B |

BSR ▪ bassin de stockage/restitution

### | C |

CEN ▪ conservatoire d'espaces naturels

CISALB ▪ comité intercommunautaire pour l'assainissement du lac du Bourget

### | E |

EH ▪ équivalent-habitant

ERU ▪ eaux résiduaires urbaines

### | F |

FTIR ▪ spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier

μ-FTIR ▪ microscopie FTIR

### | I |

INRAE ▪ Institut national de recherche pour l'agriculture, l'alimentation et l'environnement

INSEE ▪ Institut national de la statistique et des études économiques

IR ▪ infrarouge

### | M |

MP ▪ microplastique(s)

## | P |

PE • polyéthylène

PEBD • polyéthylène basse densité

PEHD • polyéthylène haute densité

PP • polypropylène

PVC • polychlorure de vinyle

PS • polystyrène

ps • poids sec

PES • polyester

PET • polyéthylène téréphtalate

PTFE • polytétrafluoroéthylène

PUPR • particules d'usure de pneus et routes

PUR • polyuréthane

## | S |

SILA • syndicat mixte du lac d'Annecy

siMPle • systematic identification of microplastics in the environment (logiciel d'identification de polymère par analyse spectrale infrarouge)

## | U |

UDEP • usine de dépollution des eaux usées



## Avant-propos

Les microplastiques sont aujourd’hui bien connus des sphères politique, industrielle et citoyenne. En quelques années, ces particules sont devenues de véritables stars des médias. De nombreux·ses chercheur·ses, bénévoles d’associations ou d’organisations non gouvernementales prennent la parole afin d’alerter les autorités publiques, entreprises et le grand public des conséquences avérées ou potentielles que posent ces particules. Il est de notre responsabilité de scientifiques de s’ouvrir au monde non académique afin de transmettre nos expertises et découvertes à tous·tes. Depuis le début de la pandémie (2020) de la Covid-19, jamais les scientifiques n’ont autant exposé leurs savoirs. À travers mes trois années de doctorat, la médiation scientifique a eu une place essentielle. Les actions de sensibilisation à la préservation de l’environnement et à la problématique des microplastiques ont permis, je l’espère du fond du cœur, de donner envie d’agir aux personnes qui ont croisé mon chemin.



## Table des matières

<b>Remerciements</b> .....	<b>7</b>
<b>Financements</b> .....	<b>13</b>
<b>Contributions scientifiques</b> .....	<b>15</b>
<b>Abréviations</b> .....	<b>18</b>
<b>Avant-propos</b> .....	<b>21</b>
<b>Liste des figures</b> .....	<b>25</b>
<b>Liste des tableaux</b> .....	<b>27</b>
<b>Introduction et contexte général</b> .....	<b>29</b>
<b>  Chapitre I   État de l’art</b> .....	<b>37</b>
<b>Estimation de la pollution aux microplastiques dans les lacs du monde</b> .....	<b>39</b>
Introduction .....	39
Surface de l’eau .....	42
Colonne d’eau.....	44
Sédiments .....	45
<b>Caractéristiques des particules</b> .....	<b>47</b>
Gammes de taille .....	47
Types de polymère .....	47
<b>Sources et vecteurs des microplastiques</b> .....	<b>48</b>
Fragmentation des macroplastiques .....	49
Eaux résiduaires urbaines .....	51
Eaux pluviales .....	52
Retombées atmosphériques.....	53
<b>Conclusion du chapitre</b> .....	<b>56</b>
<b>  Chapitre II   Matériels et méthodes</b> .....	<b>57</b>
<b>Sites d’étude</b> .....	<b>59</b>
Lac du Bourget.....	65
Lac d’Annecy .....	69
Lac Merlet supérieur.....	74
<b>Protocoles</b> .....	<b>77</b>
Méthodes de prélèvement .....	77
Développement des protocoles d’échantillonnage .....	88
Développement des protocoles de traitement des échantillons .....	94
Synthèse des échantillons réalisés .....	98

Développement des protocoles d'analyse des échantillons.....	99
Contrôles qualité .....	103
Limites.....	106
<b>Analyses supplémentaires .....</b>	<b>107</b>
Perte au feu .....	107
Spectrométrie par fluorescence des rayons X .....	107
Tests statistiques .....	108
<b>  Chapitre III   Évaluation de la contamination aux microplastiques des milieux lacustres .....</b>	<b>110</b>
<b>Évaluation de la contamination aux microplastiques dans l'eau de surface .....</b>	<b>115</b>
Quantification des microplastiques .....	115
Comparaison inter-sites.....	118
Caractérisation des microplastiques.....	121
Limites méthodologiques et hypothèses.....	122
<b>Évaluation de la contamination aux microplastiques dans la colonne d'eau .....</b>	<b>124</b>
Quantification des microplastiques .....	124
Saisonnalité de la contamination .....	126
Caractérisation des microplastiques.....	129
Limites méthodologiques et hypothèses.....	130
<b>Estimations des stocks de microplastiques dans la matrice eau.....</b>	<b>130</b>
<b>Évaluation de la contamination aux microplastiques dans les sédiments lacustres .....</b>	<b>132</b>
Quantification des microplastiques .....	132
Variation spatiale de la contamination aux MP : comparaisons inter-sites .....	134
Caractérisation des microplastiques.....	137
Accumulation des MP dans les sédiments lacustres .....	138
Estimations des stocks et flux de microplastiques .....	143
<b>Conclusion du chapitre .....</b>	<b>144</b>
<b>  Chapitre IV   Sources et vecteurs de la pollution aux microplastiques dans les milieux lacustres</b>	<b>146</b>
<b>Retombées atmosphériques .....</b>	<b>149</b>
Importance du choix du site et de la méthode de prélèvement .....	149
Quantification des microplastiques .....	154
Caractérisation des microplastiques.....	155
Comparaison inter-sites.....	157
Influence des conditions météorologiques .....	157
Estimation des dépôts atmosphériques de microplastiques sur les lacs étudiés.....	159
<b>Apport des affluents.....</b>	<b>161</b>
Quantification des microplastiques selon conditions hydrologiques .....	161
Caractérisation des microplastiques.....	164
Estimations des flux de microplastiques via les affluents .....	166
<b>Apport des eaux résiduaires urbaines épurées .....</b>	<b>169</b>

Quantification des microplastiques .....	169
Caractérisation des microplastiques.....	170
Estimation des flux de microplastiques liés aux ERU.....	173
<b>Apport des eaux pluviales.....</b>	<b>174</b>
Quantification des microplastiques .....	174
Caractérisation des microplastiques.....	174
Estimation des flux de microplastiques .....	174
<b>Export des microplastiques par l'exutoire du lac.....</b>	<b>177</b>
<b>Conclusion du chapitre .....</b>	<b>181</b>
<b>Conclusion générale &amp; perspectives .....</b>	<b>182</b>
<b>Bilan à l'échelle des trois lacs étudiés.....</b>	<b>184</b>
<b>Bilan des sources de microplastiques aux lacs .....</b>	<b>187</b>
<b>Conclusion générale .....</b>	<b>189</b>
<b>Perspectives.....</b>	<b>189</b>
<b>Références .....</b>	<b>192</b>
<b>Abstract .....</b>	<b>224</b>
<b>Résumé.....</b>	<b>225</b>

## Liste des figures

FIGURE 1 DISTRIBUTION DE LA DEMANDE EN PLASTIQUE SELON LES TYPES DE POLYMÈRE POUR L'ANNÉE 2019.....	32
FIGURE 2 ÉVOLUTION DES ÉTUDES SUR LA POLLUTION AUX MP DES ENVIRONNEMENTS LACUSTRES À TRAVERS LE MONDE DE 2012 À 2023 .....	39
FIGURE 3 RÉPARTITION DES ÉTUDES SUR LA POLLUTION AUX MP DES ENVIRONNEMENT LACUSTRES À TRAVERS LE MONDE DE 2012 À 2023 .....	41
FIGURE 4 REPRÉSENTATION DE LA POLLUTION AUX MP DE L'EAU DE SURFACE DES LACS SELON LEUR CLASSIFICATION ...	43
FIGURE 5 REPRÉSENTATION DE LA POLLUTION AUX MP DES SÉDIMENTS DES LACS SELON LEUR CLASSIFICATION ET EN FONCTION DES DONNÉES DISPONIBLES.....	46
FIGURE 6 POLLUTION AUX MICROPLASTIQUES ET RESUSPENSION DES SÉDIMENTS DANS UN LAC EUTROPHE SOUS L'INFLUENCE DU CHANGEMENT CLIMATIQUE.....	49
FIGURE 7 RETOMBÉES ATMOSPHÉRIQUES DE MP ENTRE DIFFÉRENTES LOCALISATIONS GÉOGRAPHIQUES.....	54
FIGURE 9 LOCALISATION DES TROIS SITES D'ÉTUDE.....	59
FIGURE 10 REPRÉSENTATION DE L'OCCUPATION DES SOLS DES BASSINS VERSANTS DES LACS DU BOURGET ET D'ANNECY AINSI QUE LES RÉSEAUX HYDROLOGIQUES.....	60
FIGURE 11 IMAGE SATELLITE DU LAC MERLET SUPÉRIEUR ET DÉLIMITATION APPROXIMATIVE DE SON BASSIN VERSANT ..	62
FIGURE 12 CARTE BATHYMÉTRIQUE DU LAC DU BOURGET .....	67
FIGURE 13 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DE LA STRATIFICATION THERMIQUE D'UN LAC EN SAISON ESTIVALE .....	68
FIGURE 14 CARTE BATHYMÉTRIQUE DU LAC D'ANNECY .....	72
FIGURE 15 CARTE BATHYMÉTRIQUE DU LAC DU MERLET SUPÉRIEUR ET CARTOGRAPHIE HABITATIONNELLE DES BERGES ET DE LA ZONE LITTORALE.....	75
FIGURE 16 REPRÉSENTATION DES CYCLES SAISONNIERS D'UN LAC DIMICTIQUE COMME LE LAC MERLET SUPÉRIEUR .....	76
FIGURE 17 ZONES D'ÉCHANTILLONNAGE DE L'EAU DE SURFACE ET COLONNE D'EAU DU LAC DU BOURGET .....	78
FIGURE 18 ZONES D'ÉCHANTILLONNAGE DE L'EAU DE SURFACE ET COLONNE D'EAU DU LAC D'ANNECY .....	79
FIGURE 19 ZONES D'ÉCHANTILLONNAGE DE SÉDIMENTS DU LAC DU BOURGET.....	79
FIGURE 20 ZONES D'ÉCHANTILLONNAGE DE SÉDIMENTS DU LAC D'ANNECY.....	80
FIGURE 21 ZONES D'ÉCHANTILLONNAGE DE SÉDIMENTS DU LAC MERLET SUPÉRIEUR .....	80
FIGURE 22 TRAPPE À SÉDIMENTS SÉQUENTIELLE INSTALLÉE AU LAC DU BOURGET.....	81
FIGURE 23 COLLECTEUR INTÉGRATIF DES PARTICULES SÉDIMENTANT INSTALLÉ AU LAC MERLET SUPÉRIEUR.....	82
FIGURE 24 COLLECTEUR DE RETOMBÉES ATMOSPHÉRIQUES INSTALLÉE AU LAC MERLET SUPÉRIEUR .....	82
FIGURE 25 TABLE ATMOSPHÉRIQUE INSTALLÉE SUR LA RIVE SUD DU LAC DU BOURGET .....	84
FIGURE 26 REPRÉSENTATION DES ZONES D'ÉCHANTILLONNAGES SUR LES TROIS SITES D'ÉTUDE .....	87
FIGURE 27 ÉVOLUTION DU SYSTÈME D'ÉCHANTILLONNAGE DE LA SURFACE DE L'EAU .....	88
FIGURE 28 SCHÉMA DÉTAILLÉ DU DRONAMARAN.....	90
FIGURE 29 PLAN TECHNIQUE DU DRONAMARAN.....	90
FIGURE 30 REPRÉSENTATION DES CONCENTRATIONS EN MP/M <sup>3</sup> D'ÉCHANTILLONS DE SURFACE DES TROIS SITES D'ÉTUDE EN FONCTION DES VOLUMES D'EAU FILTRÉE.....	91
FIGURE 31 TAILLES MINIMALES DES MP À TRAVERS DES ÉCHANTILLONNAGES DE SURFACE, RÉALISÉS AU DRONAMARAN, EN FONCTION DU VOLUME D'EAU FILTRÉ.....	92
FIGURE 32 LE MANTAMARAN : SYSTÈME D'ÉCHANTILLONNAGE INITIAL DU LAC MERLET SUPÉRIEUR .....	93
FIGURE 33 DISPOSITIF UTILISÉ DANS LE CADRE DES ÉCHANTILLONNAGES DE LA COLONNE D'EAU .....	93
FIGURE 34 PLAN TECHNIQUE DU SYSTÈME DE FILET COLONNE .....	94
FIGURE 35 ÉCHANTILLONS D'EAU DE SURFACE DU LAC MERLET SUPÉRIEUR EN PÉRIODE DE BLOOM.....	95
FIGURE 36 BOÎTE MOTODA .....	97

FIGURE 37 EXEMPLE D'UN ÉCHANTILLON D'EAU DE SURFACE DU LAC DU BOURGET FILTRÉ SUR FILTRE EN SILICIUM EN IMAGE VISIBLE.....	100
FIGURE 38 SPECTRES INFRAROUGES PRÉSENTÉS EN TRANSMITTANCE EN FONCTION DU NOMBRE D'ONDE DES CINQ PRINCIPAUX POLYMÈRES CONSIDÉRÉS DANS CETTE ÉTUDE.....	101
FIGURE 39 SCHÉMA REPRÉSENTANT LES SOURCES ET VECTEURS POTENTIELS DE MICROPLASTIQUES EN ZONES SUBALPINE ET ALPINE.....	114
FIGURE 40 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES ÉCHANTILLONS DE L'EAU DE SURFACE DES LACS D'ANNECY, DU BOURGET ET DU MERLET SUPÉRIEUR .....	115
FIGURE 41 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES ÉCHANTILLONS DE LA COLONNE D'EAU DES LACS D'ANNECY ET DU BOURGET.....	124
FIGURE 42 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES ÉCHANTILLONS DE LA COLONNE D'EAU DES LACS SUBALPINS EN PÉRIODES DE BRASSAGE ET DE STRATIFICATION THERMIQUE .....	127
FIGURE 43 SCHÉMA DES SOURCES ET PERTES DES MICROPLASTIQUES DANS LES LACS .....	128
FIGURE 44 ESTIMATIONS DES STOCKS DE MP EN NOMBRE ET EN MASSE DANS LA MATRICE EAU À TRAVERS LES SITES ÉTUDIÉS.....	131
FIGURE 45 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES ÉCHANTILLONS PONCTUELS DE SÉDIMENTS DES LACS D'ANNECY, DU BOURGET ET DU MERLET SUPÉRIEUR .....	132
FIGURE 46 CONTAMINATION AUX MP DES SÉDIMENTS DES TROIS SITES LACUSTRES.....	135
FIGURE 47 REPRÉSENTATION DES FLUX DE MP/M <sup>2</sup> /JOUR SELON LES PÉRIODES ÉCHANTILLONNÉES.....	140
FIGURE 48 ESTIMATIONS DES STOCKS DE MP EN NOMBRE ET EN MASSE DANS LA MATRICE SÉDIMENT SUR LES DIX PREMIERS CENTIMÈTRES ET ESTIMATION DU FLUX SÉDIMENTAIRE À TRAVERS LES SITES ÉTUDIÉS.....	144
FIGURE 49 PHOTOGRAPHIE AÉRIENNE DES DEUX ZONES DE COLLECTE DES RETOMBÉES ATMOSPHÉRIQUES SUR LE SITE DU LAC DU BOURGET .....	149
FIGURE 50 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES DEUX PÉRIODES D'ÉCHANTILLONNAGES SUR LE SITE CEN AU BOURGET-DU-LAC.....	153
FIGURE 51 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES FLUX DE MP AU SEIN DES RETOMBÉES ATMOSPHÉRIQUES SUR LES SITES DU LAC DU BOURGET, D'ANNECY ET DU MERLET SUPÉRIEUR .....	154
FIGURE 52 ESTIMATIONS DES DÉPÔTS ATMOSPHÉRIQUES SUR LES TROIS LACS ÉTUDIÉS.....	160
FIGURE 53 CONCENTRATIONS EN NOMBRE MP/M <sup>3</sup> ; ET EN MASSE NG MP/M <sup>3</sup> EN PÉRIODE DE BASSE EAUX ET DE HAUTES EAUX DES AFFLUENTS .....	162
FIGURE 54 REPRÉSENTATION GRAPHIQUE DES DÉBITS JOURNALIERS SUR L'ANNÉE 2022 POUR LA LEYSSE .....	166
FIGURE 55 ESTIMATIONS DES FLUX DE MP PAR LES AFFLUENTS À TRAVERS LES SITES ÉTUDIÉS.....	167
FIGURE 56 CARTE DU BASSIN VERSANT DU REJET D'EAUX PLUVIALES À ANNECY-LE-VIEUX.....	175
FIGURE 57 ESTIMATIONS DES FLUX DE MP PAR LES ERU BRUTES ET ÉPURÉES, ET EAUX PLUVIALES SELON LES SITES ÉTUDIÉS.....	176
FIGURE 58 CONCENTRATIONS EN MP DES ÉCHANTILLONS DE L'EXUTOIRE DES LACS D'ANNECY, DU BOURGET ET DU MERLET SUPÉRIEUR.....	177
FIGURE 59 ESTIMATIONS DES FLUX DE MP DES EXUTOIRES À TRAVERS LES SITES ÉTUDIÉS .....	180
FIGURE 60 ESTIMATIONS DES STOCKS DE MP EN NOMBRE ET EN MASSE DANS LES MATRICES EAUX, SÉDIMENTS ET ESTIMATIONS DES FLUX SÉDIMENTAIRE, ATMOSPHÉRIQUE, DES AFFLUENTS, ERU ÉPURÉES ET BRUTES, EAUX PLUVIALES ET DES EXUTOIRES À TRAVERS LES TROIS SITES ÉTUDIÉS.....	185
FIGURE 61 ESTIMATIONS DES FLUX ANNUELS DE MP PROVENANT DE DIFFÉRENTES SOURCES .....	187

## Liste des tableaux

TABLEAU 1 CLASSIFICATION DES AGGLOMÉRATIONS SELON LE NOMBRE D'HABITANTS .....	59
TABLEAU 2 REPRÉSENTATION DES CARACTÉRISTIQUES SPÉCIFIQUES AUX TROIS SITES D'ÉTUDE ET BASSINS VERSANTS. ...	63
TABLEAU 3 CARACTÉRISTIQUES PRINCIPALES DES COURS D'EAU MAJEURS ET EXUTOIRE DU LAC DU BOURGET .....	66
TABLEAU 4 CARACTÉRISTIQUES PRINCIPALES DES COURS D'EAU MAJEURS ET EXUTOIRE DU LAC D'ANNECY .....	71
TABLEAU 5 RÉCAPITULATIF DES DIFFÉRENTES SOURCES DE MP AU LAC ET SORTIES DE MP AU LAC EN RELATION AVEC LES DIFFÉRENTS POINTS D'ÉCHANTILLONNAGE .....	86
TABLEAU 6 SYNTHÈSE DES ÉCHANTILLONS RÉALISÉS ET CONSIDÉRÉS DANS CES TRAVAUX SELON LES SITES ET TYPES DE MATRICES ENVIRONNEMENTALES .....	99
TABLEAU 7 CONTAMINATION AUX MP DES BLANCS LABORATOIRE ET TERRAIN .....	104
TABLEAU 8 CARACTÉRISTIQUES DES MP STANDARDISÉS UTILISÉS POUR LES TESTS DE RENDEMENT .....	105
TABLEAU 9 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LA MATRICE EAU DE SURFACE .....	116
TABLEAU 10 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LA MATRICE COLONNE D'EAU .....	125
TABLEAU 11 CONCENTRATIONS MOYENNES EN NOMBRE ET EN MASSE DE MP SELON LA MATRICE ET LE SITE .....	130
TABLEAU 12 VOLUMES D'EAU ESTIMÉES DE CHAQUE MATRICE SELON LE SITE .....	131
TABLEAU 13 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LA MATRICE SÉDIMENT .....	133
TABLEAU 14 RÉSULTATS DE LA MÉTHODE PAF : TAUX DE MATIÈRE ORGANIQUE EN FONCTION DE LA PÉRIODE ÉCHANTILLONNÉE ET DU FLUX .....	142
TABLEAU 15 RÉSULTATS DE LA MÉTHODE XRF : TAUX DE $Al_2O_3$ , $SiO_2$ ET $CaO$ EN FONCTION DE LA PÉRIODE ÉCHANTILLONNÉE ET DU FLUX .....	143
TABLEAU 16 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LES DÉPÔTS ATMOSPHÉRIQUES SUR LES DEUX SITES DU LAC DU BOURGET .....	151
TABLEAU 17 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LES DÉPÔTS ATMOSPHÉRIQUES SUR LES TROIS SITES DU BOURGET, D'ANNECY ET DU MERLET .....	156
TABLEAU 18 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LES AFFLUENTS .....	165
TABLEAU 19 ESTIMATION DES FLUX DE MP APPORTÉS PAR LES AFFLUENTS .....	167
TABLEAU 20 ESTIMATION DES FLUX DE MP DÉPOSÉS DEPUIS L'ATMOSPHÈRE SUR LES BASSINS VERSANTS RESPECTIFS DE CHAQUE AFFLUENT ÉTUDIÉ .....	168
TABLEAU 21 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LES ERU ET EAUX PLUVIALES .....	172
TABLEAU 22 RÉCAPITULATIF DES RÉSULTATS SUR LES EXUTOIRES .....	178





## Introduction et contexte général



À partir de la fin de la Seconde Guerre mondiale, les plastiques ont été produits abondamment. Dans les années 70, les centres de traitement de déchets ne s'installent pas aussi rapidement que les plastiques dans l'environnement. À cette époque, les chercheurs alertent déjà le monde scientifique sur la présence et l'augmentation rapide des déchets plastiques à la surface des océans (Carpenter and Smith, 1972). En effet, la pollution plastique a été observée pour la première fois dans les années 1970 dans la mer des Sargasses où la concentration de plastique était proche de 3 500 articles/km<sup>2</sup>, essentiellement constituée de porte-cigarettes (Carpenter and Smith, 1972). En 1973, un chercheur constate de petites sphérules de polystyrène (PS) dans les estomacs de pétrels *Oceanodroma leucorhoa* de l'Atlantique Nord-Ouest (Rothstein, 1973). Il note que cette consommation de particules peut mener à des blessures internes. Cette même année, ce sont 53 objets flottants d'origine anthropique sur 12,5 km<sup>2</sup> qui sont observés au cours d'une expédition dans le Pacifique. Deux tiers d'entre eux se révèlent être en plastique (Venrick et al., 1973). Ainsi, dès le milieu des années 70, il est expliqué que le plastique une fois introduit dans l'environnement ne disparaît pas mais se fragmente en particules plus petites (Colton et al., 1974). De nombreuses particules de plastique sont observées au sein de sternes, mouettes et goélands de l'île Great Gull (état de New-York) ou encore près des effluents d'entreprises (Hays and Cormons, 1974). Dans le Pacifique Est, 34 000 pièces de plastique sont observées par km<sup>2</sup> (Wong et al., 1974). Quelques années plus tard, une concentration très élevée de particules plastique est constatée (100 000 particules/m<sup>2</sup>) sur des plages de Nouvelle-Zélande (Gregory, 1978). La sonnette d'alarme est tirée...

Depuis, la production de matière plastique à travers le monde n'a cessé d'augmenter. En 2021, 390,7 millions de tonnes de plastique ont été produites mondialement dont 57,2 millions de tonnes en Europe (Plastics Europe, 2020). La demande européenne en plastique (Norvège et Suisse inclus) concerne essentiellement les domaines du packaging (40 %) et de la construction (20 %). Ce matériau est considéré comme révolutionnaire de par sa résistance, souplesse et durabilité. Il est possible de l'utiliser dans tous les domaines (*exemples : bâtiment, textile, décoration, automobile, électronique*). Malheureusement l'une de ses plus grandes qualités est aussi son pire défaut, à savoir sa durabilité dans l'environnement.

Le plastique est majoritairement constitué de polymères. Un polymère est une macromolécule composée d'un enchaînement de sous-unités identiques dits monomères. Les polymères peuvent être d'origine naturelle (*exemples : caoutchouc, cellulose*), semi-synthétique par

modification chimique de polymères naturels (exemples : rayonne viscosse, nitrate de cellulose, acétate de cellulose), ou synthétique par la polymérisation de monomères souvent issus de la pétrochimie (exemples : polyéthylène (PE), polypropylène (PP)).

### | DÉFINITION |

*Les polymères synthétiques, objets de ces travaux de thèse, sont définis comme suit :  
« polymères issus de ressources fossiles et synthétisés par l'être humain à partir du naphta,  
ou recyclés à partir de polymères synthétiques »*

Les polymères recherchés dans cette étude correspondent aux PE, PP, polychlorure de vinyle (PVC), PS et polyéthylène téréphtalate (PET). Ces polymères représentaient en 2019, plus de 70 % de la demande européenne (Plastics Europe, 2020). Le PE et le PP représentaient près de 50 % de la demande européenne (Figure 1). Ces polymères sont particulièrement utilisés dans les emballages (exemples : bouteilles de lait, bouteilles de shampoing) et pour la confection de divers objets comme les jouets, articles ménagers et canalisations.

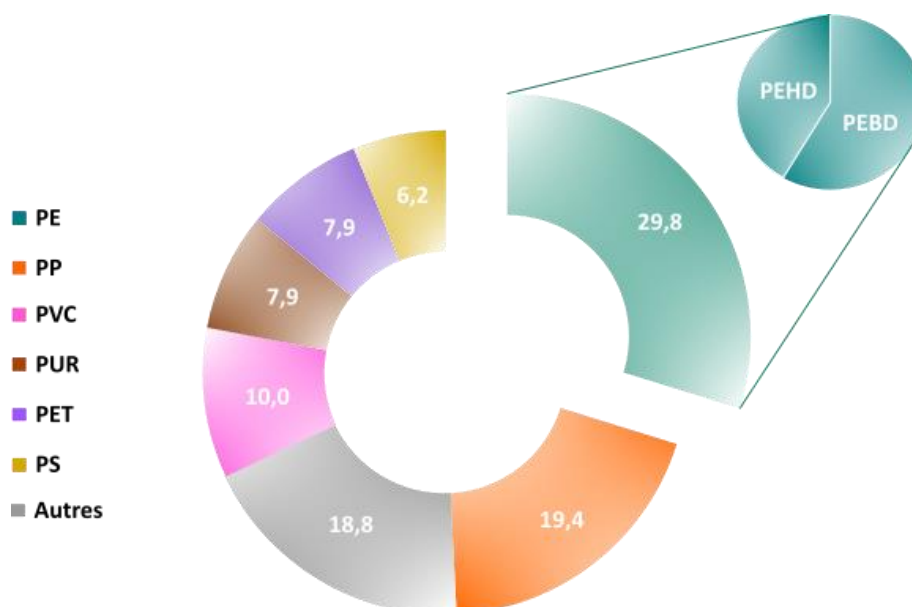


Figure 1 Distribution de la demande en plastique (%) selon les types de polymère pour l'année 2019 (données issues de (Plastics Europe, 2020))

### | DÉFINITIONS |

*Le terme « distribution polymérique » est défini comme la proportion relative de chaque polymère dans un échantillon*

La fabrication des plastiques nécessite également l'utilisation d'additifs et de charge. Les catégories principales d'additifs utilisées dans la production de plastique sont les stabilisateurs UV (exemples : benzotriazoles, benzophénones, dérivés de la tétraméthylpipéridine), antioxydants (exemples : nonylphénol, esters de phosphite), retardateurs de flamme (exemples : hexabromocyclododécane, polybromodiphényléthers), plastifiants (exemples : phtalates comme le DEHP, bisphénol A) et biocides (exemples : oxybisphénoxarsine, isothiazalinones) (Gateuille and Naffrechoux, 2022). Concernant la formulation, la charge peut représenter jusqu'à 50 % de la masse du plastique : charges minérales (exemples : craie, kaolin, talc, etc.), organiques (exemples : pâte de cellulose, farine de bois, etc.), renforçantes (exemples : fibre de verre, microbilles de verre creuses, etc.), nouvelles charges (exemples : argile, céréales, lin, etc.) (Wikipedia).

L'augmentation exponentielle de la production de plastique depuis les années 50, passant d'environ 1,5 million de tonnes à presque 400 millions de tonnes de plastique, a engendré des problématiques mondiales (exemples : taux de recyclage bas, économie linéaire, manque de législations). Une grande partie des plastiques produits ont été rejetés dans l'environnement ou au sein de décharges. D'après une analyse globale des matières plastiques produites mondialement entre 1950 et 2015, il ressort que 79 % des produits en plastique ne sont pas traités efficacement mais rejetés dans les milieux naturels (Geyer et al., 2017). Seulement 9 % des autres produits sont recyclés et 12 % incinérés. Une fois dans l'environnement, le plastique se fragmente sous l'action des UV, microorganismes, de la température, de l'humidité et du stress mécanique, en micro- ou nanoplastiques. Dans le cadre de ces travaux de thèse, les microplastiques (MP) d'une taille  $\geq$  à 50  $\mu\text{m}$  sont étudiés.

### | DÉFINITION |

*Les MP sont définis par Frias and Nash, (2019) comme des particules synthétiques solides ou matrices polymériques insolubles dans l'eau, de forme régulière ou irrégulière et dont la taille est comprise entre 1  $\mu\text{m}$  et 5 mm*

Un MP est soit qualifié de « primaire » : la particule est fabriquée sous sa forme finale (*exemples : microbilles présentes dans certains cosmétiques, peintures, fertilisants agricoles*), soit de « secondaire » : la particule est issue de la fragmentation de plastiques de plus grandes dimensions (*exemple : fragmentation en mer de bouteilles en plastique*).

Les premiers MP ont été identifiés au cours des années 70 dans l'Atlantique Nord (Carpenter and Smith, 1972; Colton et al., 1974). Depuis, les études n'ont cessé de se multiplier afin d'étudier ce polluant, désormais ubiquiste. En effet, ces particules ont été détectées dans les écosystèmes terrestres et aquatiques (Jiang, 2018; Li et al., 2020; Peng et al., 2020; Wong et al., 2020) : au point le plus profond de l'océan (fosse des Mariannes) (Peng et al., 2018) mais aussi au sommet des montagnes (Everest) (Napper et al., 2020), en Arctique (Bergmann et al., 2019; González-Pleiter et al., 2020; Lusher et al., 2015; Obbard et al., 2014; Peeken et al., 2018) et Antarctique (Cincinelli et al., 2017; Kelly et al., 2020; Waller et al., 2017), dans l'air (Dris et al., 2016; Gasperi et al., 2018; Q. Zhang et al., 2020), la neige (Bergmann et al., 2019; Materić et al., 2020; Pastorino et al., 2020; Scopetani et al., 2019), les glaciers (Ambrosini et al., 2019; Cabrera et al., 2020), les sols (Corradini et al., 2019; Qi et al., 2018), les sédiments (Yang et al., 2020; Zobkov et al., 2020). Ces microparticules ont également été observées dans des aliments et boissons (Barboza et al., 2018; Danopoulos et al., 2020; Koelmans et al., 2019; Peixoto et al., 2019; Shruti et al., 2020; Walkinshaw et al., 2020; Q. Zhang et al., 2020) mais aussi dans les organismes (Cadée, 2002; Furness, 1985; Merga et al., 2020) et certains tissus humains : poumons, placentas (Ragusa et al., 2021), tube digestif notamment l'intestin et le colon (Ibrahim et al., 2021), dans les fèces (Schwabl, 2018), le système sanguin (Leslie et al., 2022), jusqu'à de récentes détections dans le lait maternel (Ragusa et al., 2022) et le sputum (expectorations) (Huang et al., 2022).

Les environnements lacustres, sujets de ces travaux de thèse, ne sont pas épargnés par la pollution aux MP (Dusaucy et al., 2021). Cette thèse vise à réaliser un état des lieux de la contamination aux MP des environnements lacustres en quantifiant les concentrations et stocks de MP de trois lacs alpins français : les lacs subalpins du Bourget, d'Annecy et, un lac d'altitude, le Merlet supérieur. Les travaux se concentrent également sur l'identification et la quantification des sources et vecteurs principaux de ces particules à travers l'étude des retombées atmosphériques, affluents, eaux résiduaires urbaines (ERU) et eaux pluviales issues du ruissellement de chaussées.

Les connaissances actuelles sur la contamination des écosystèmes lacustres par les MP sont encore limitées. En 2012, le nombre de publications sur la pollution par les MP étaient de : 30 articles pour les écosystèmes marins (23), d'eau douce (5) et estuariens (2) (Meng et al., 2020). Ces derniers temps, les études sur la pollution aux MP des lacs se sont multipliées. En 2022, 81 publications avec les termes « microplastic » et « lake » dans le titre selon Google Scholar.

Ce manuscrit de thèse est composé de 4 chapitres. Le premier chapitre recense, aussi exhaustivement que possible, un ensemble d'études concernant la contamination aux MP des environnements lacustres à travers le monde. Cette synthèse est fondée sur l'article *Microplastics Pollution of Worldwide Lakes* (Dusaucy et al., 2021) (Annexe 1). Le chapitre souligne l'importance de l'étude des écosystèmes d'eau douce et de l'analyse des vecteurs et sources de la pollution. Les écosystèmes lacustres, représentant 3,7 % de la surface terrestre (Verpoorter et al., 2014), sont des accumulateurs de polluants et, par conséquent, des indicateurs du fonctionnement des bassins versants. Le second chapitre est consacré à la présentation des hypothèses et problématiques de thèse ainsi que des sites d'étude. Il expose également les méthodes employées dans le cadre des prélèvements, traitements et analyses des échantillons ainsi que les limites de l'étude. Le troisième chapitre se concentre sur l'état actuel de la contamination par les MP des lacs subalpins (Bourget et Annecy) et alpin (Merlet supérieur). Nos travaux analysent non seulement la couche de surface des lacs, mais également la colonne d'eau ainsi que la matrice sédimentaire. Dans le quatrième chapitre, ce sont les sources et vecteurs potentiels de la pollution aux MP qui sont examinés (retombées atmosphériques, affluents, ERU et eaux pluviales). Des bilans de stock et estimations de flux sont effectués pour évaluer l'ampleur de la contamination des lacs et son origine. Enfin, une synthèse des résultats est développée à travers un bilan de masse à l'échelle des lacs, en identifiant les principaux vecteurs et sources de MP, et extrapole ces résultats à une échelle plus globale.

Cette thèse vise à identifier les sources principales de contamination des lacs aux MP. À cette fin, l'état des lieux de la pollution aux MP des trois sites lacustres (Bourget, Annecy et Merlet supérieur), soumis théoriquement à des sources différentes, est réalisé par la quantification des concentrations et stocks dans trois compartiments : l'eau de surface, la colonne d'eau et les sédiments.

L'identification des sources, basée sur les connaissances publiées, sera effectuée par caractérisation des dépôts atmosphériques, des affluents de zones urbaines, des affluents de zones rurales ou agricoles, de rejet d'ERU épurées en UDEP et d'eaux pluviales (de lessivage des zones imperméabilisées). Le devenir des MP dans l'environnement lacustre est étudié par mesure des flux sédimentés et des flux à l'exutoire.



| Chapitre I |

État de l'art



## Estimation de la pollution aux microplastiques dans les lacs du monde

### Introduction

Une recherche bibliographique conséquente (dernière *mise à jour* 25/01/2023) a permis de réaliser un état de l'art de la pollution aux MP des lacs à travers le monde. Sur la période 2012-2023, les termes « lake » et « microplastic » ont été recherchés via les plateformes Google Scholar et Researchgate. À l'issue de cette recherche exhaustive, 198 lacs ont été identifiés à travers 90 articles publiés. La Figure 2 ci-dessous représente en bleu l'effectif cumulé des lacs étudiés et en orange l'effectif cumulé des articles publiés entre 2012 et 2023.

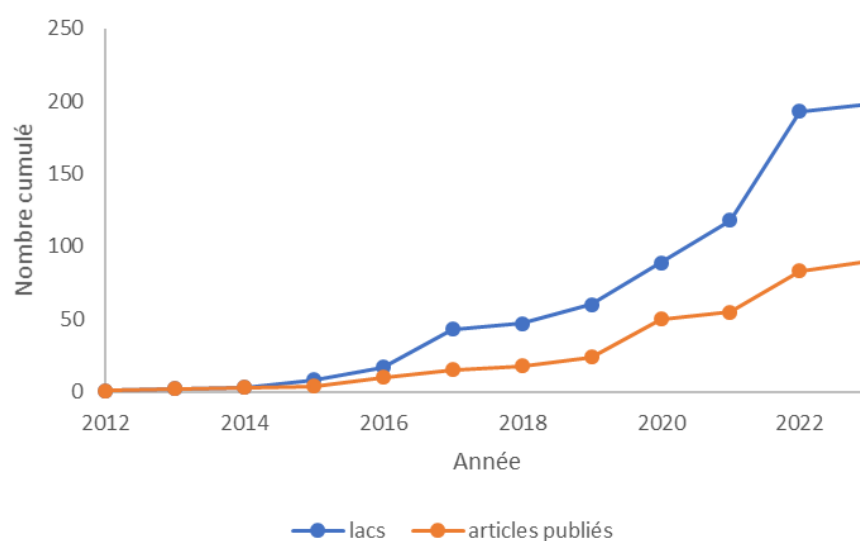


Figure 2 Évolution des études sur la pollution aux MP des environnements lacustres à travers le monde de 2012 à 2023 (dernière mise à jour 25/01/2023)

Faure et al., (2012) ont réalisé la première étude sur les MP dans les environnements lacustres (lac Léman). Entre 2012 et 2015, plusieurs grands lacs suisses, italiens et mongol ont été étudiés (Léman, Garde, Constance, Neuchâtel, Zürich, Brienz, Majeur, Khövsgöl) (Faure et al., 2015, 2012; Free et al., 2014; Imhof et al., 2013). Ainsi, seuls quatre articles publiés sont disponibles en 2015. De 2016 à 2019, l'intérêt porté à la pollution aux MP des lacs s'est accentué. Passant d'un total de 8 lacs étudiés en 2015 à 60 lacs (Chine, Angleterre, Canada, États-Unis, Hongrie) en 2019. Depuis 2019, la contamination aux MP de 138 lacs supplémentaires a été analysée à travers 72 articles. Ces données confirment l'avènement récent de ce nouveau champ disciplinaire.

La majorité des lacs étudiés sont sur les territoires chinois (34 %), espagnol (18 %), italien (6 %) et argentin (5 %) (Figure 3). Très peu d'études ont été réalisées en Afrique. Les lacs d'Océanie et de l'Antarctique n'ont, à ce jour, pas été investigués. Par ailleurs, aucune étude n'a été publiée sur les lacs français excepté pour le lac Léman (franco-suisse). Ainsi, ces travaux de thèse s'intéressant aux lacs du Bourget, d'Annecy et du Merlet supérieur constituent la première étude sur la pollution aux MP des lacs français, sur les étages alpin et subalpin.

Ce premier chapitre propose une comparaison de la contamination en MP entre les sites lacustres recensés dans cette veille bibliographique. Pour cela, les lacs ont été classés. Cette classification se base sur la proximité aux zones urbanisées et la densité de population. L'hypothèse initiale est que les lacs proches de zones densément habitées seraient davantage affectés par la pollution aux MP contrairement aux lacs plus isolés. Cette pollution pourrait être liée à la présence de macrodéchets plastiques, aux ruissellements urbains et rejets d'eaux résiduaux (domestique, agricole, industrielle). Ainsi, les lacs recensés dans cet état de l'art ont été classés en trois groupes : isolés, ruraux et urbains selon les définitions suivantes.

### | DÉFINITIONS |

- ◆ *Un lac **isolé** est défini comme un lac dont le bassin versant ne montre pas d'activités anthropiques significatives qui pourraient amener une pollution aux MP (exemple : lac d'altitude)*
- ◆ *Un lac **rural** est défini comme un lac proche d'un ou plusieurs villages ou villes pour un total  $\leq 100\ 000$  habitants, à une distance  $\leq 10$  km*
- ◆ *Un lac **urbain** est défini comme un lac proche d'au moins une ville ( $> 100\ 000$  habitants) ou d'une métropole ( $> 1$  million d'habitants) située à une distance  $< 50$  km*

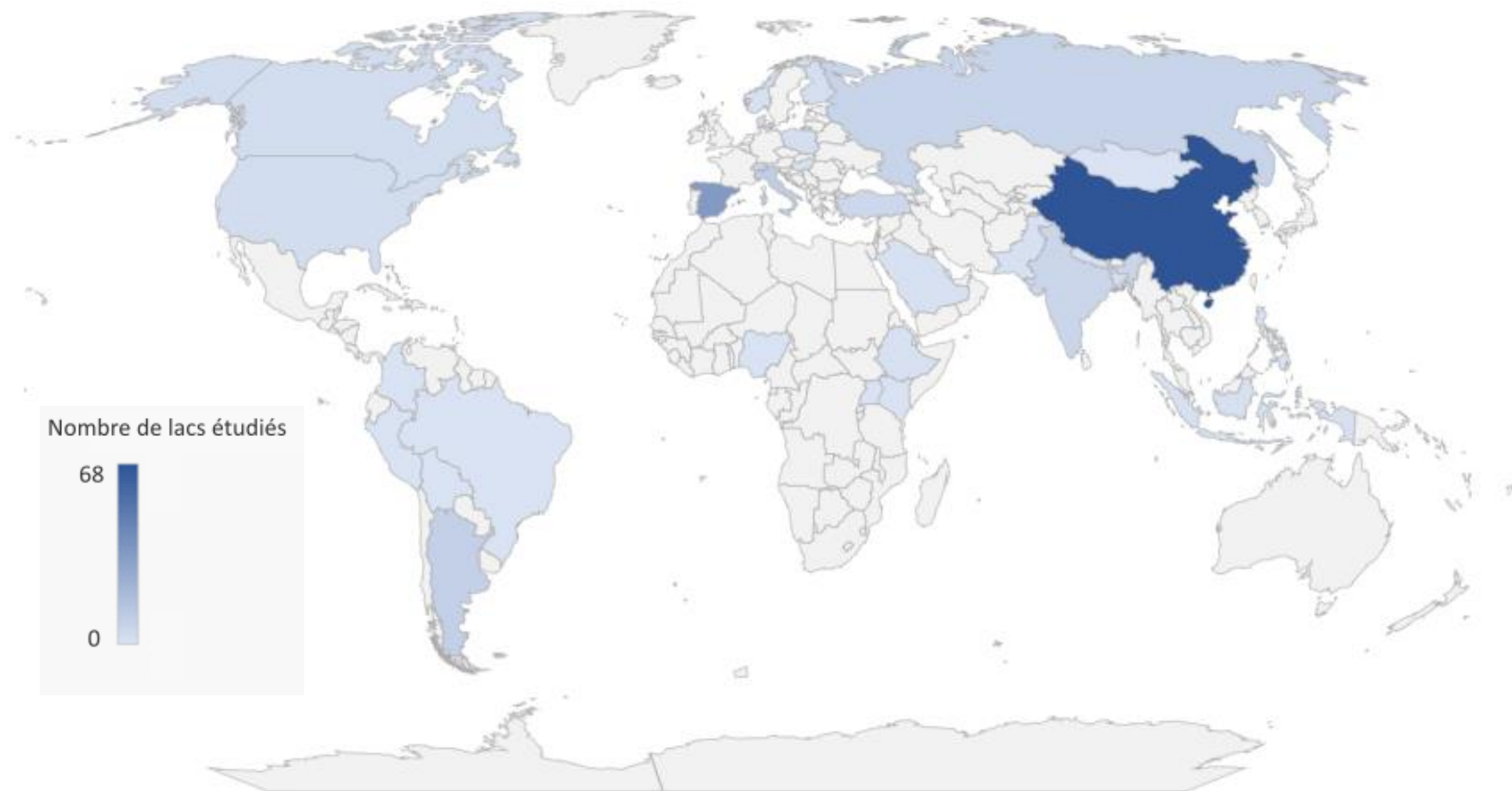


Figure 3 Répartition des études sur la pollution aux MP des environnements lacustres à travers le monde de 2012 à 2023 (dernière mise à jour 25/01/2023 sur la base de la recherche bibliographique réalisée)

À travers cette étude bibliographique, 52 lacs isolés ont été identifiés en Chine, Espagne, Inde, Italie, Russie et Suisse. 35 lacs ruraux en Argentine, Chine, Colombie, États-Unis, Éthiopie, Finlande, Inde, Indonésie, Mongolie, Norvège, Pakistan, Pologne, Russie et Turquie. Enfin, 111 lacs urbains ont été recensés en Angleterre, Arabie-Saoudite, Argentine, Bangladesh, Bolivie/Pérou, Brésil, Canada, Chine, Corée, Danemark, États-Unis, Finlande, Hongrie, Inde, Italie, Kenya, Népal, Nigéria, Norvège, Ouganda, Pakistan, Philippines, Pologne, Russie, Suisse et Turquie. Ainsi, sur la totalité des lacs étudiés de 2012 à 2023, 56 % sont considérés comme urbains, 26 % ruraux et 18 % isolés sur la base des définitions précédentes. À travers ces lacs, les données de contamination dans les matrices environnementales de l'eau de surface, la colonne d'eau ainsi que les sédiments ont été examinées.

Il est important de souligner que les essais de comparaison effectués ultérieurement sont susceptibles d'être entachés d'un biais important, du fait des différences de méthodologie employée à travers les études (prélèvement des échantillons, traitement en laboratoire et analyse). Parmi les principales différences, le volume d'eau prélevé qui peut varier considérablement d'une étude à l'autre, de quelques litres à plusieurs mètres cubes. Les méthodes de prélèvement des échantillons sont variées pour l'eau de surface entre les filets à mailles de taille variable, les prélèvements par pompage ou via l'utilisation de contenant. Le traitement des échantillons en laboratoire est également soumis à différents types de protocoles (attaque oxydante, tri densimétrique). Enfin, les analyses peuvent être menées avec des techniques différentes : spectroscopie infrarouge (IR) à transformée de Fourier (FTIR), spectroscopie Raman, laser direct infrared imaging (LDIR) qui peuvent influencer la quantification et l'identification des MP.

### *Surface de l'eau*

Les concentrations en MP à la surface de l'eau des lacs isolés sont comprises entre 0 MP/m<sup>3</sup> et 21 300 MP/m<sup>3</sup> (pas de données disponibles en MP/km<sup>2</sup>) (Figure 4). Pour les lacs ruraux la contamination en MP est comprise entre 0 MP/m<sup>3</sup> et 18 000 MP/m<sup>3</sup>. Une seule donnée est disponible en MP/km<sup>2</sup> pour l'étude sur le lac Flathead (États-Unis) qui a montré une contamination de 189 000 MP/km<sup>2</sup>. Enfin, les lacs urbains montrent des concentrations allant de 0,27 MP/m<sup>3</sup> à 127 300 MP/m<sup>3</sup> et de 11 479 MP/km<sup>2</sup> à 2 090 000 MP/km<sup>2</sup>.

## EAU DE SURFACE MP/m<sup>3</sup>

Lacs isolés : BV non anthropisé  
Lacs urbains : présence d'une ville à une distance < 50 km

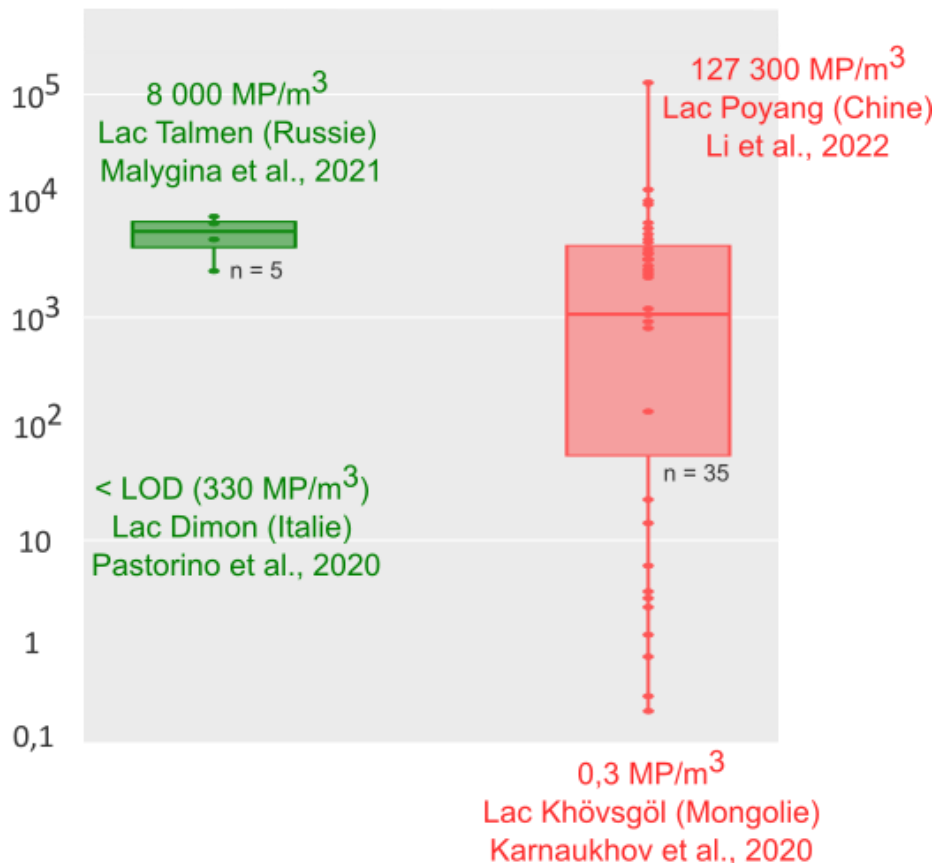


Figure 4 Représentation de la pollution aux MP de l'eau de surface des lacs selon leur classification (isolé, urbain) (moyenne en MP/m<sup>3</sup>)

Les résultats présentés dans la Figure 4 semblent contre-intuitifs, car les lacs isolés seraient tout aussi contaminés par la pollution aux MP que certains lacs urbains. Cela va à l'encontre de l'hypothèse initiale selon laquelle les lacs isolés seraient moins touchés par la pollution aux MP que les lacs urbains.

Concernant les lacs isolés, l'étude de Godoy et al. (2022), sur 35 lacs glaciaires (Sierra Nevada, Espagne) a révélé des concentrations comprises entre 0 MP/m<sup>3</sup> et 21 300 MP/m<sup>3</sup>. Les lacs russes, Talmen et Dzhulukul, ont présenté 8 000 MP/m<sup>3</sup> et 5 000 MP/m<sup>3</sup>, respectivement

(Malygina et al., 2021). En revanche, aucun MP > 50 µm n'a été observé dans l'eau de surface du lac Dimon (Italie) (Pastorino et al., 2020).

Des lacs isolés ou ruraux (*exemple : Sassolo avec 2 600 MP/m<sup>3</sup>*) semblent même plus contaminés que certains lacs urbains. À titre d'exemple, le lac urbain Kallavesi (Finlande) contient  $0,27 \pm 0,18$  MP/m<sup>3</sup> (Uurasjärvi et al., 2020), alors que les lacs ruraux d'Argentine contiennent en moyenne  $0,90 \pm 0,60$  MP/m<sup>3</sup> (Alfonso et al., 2020b). Cela pourrait s'expliquer par les caractéristiques du lac influençant la concentration en MP. Le lac Kallavesi montre une plus grande superficie (473 km<sup>2</sup>) que les lacs argentins (moyenne de 88 km<sup>2</sup>). En estimant, par le calcul, la quantité de MP présents à la surface de chacun des deux lacs, une contamination environ deux fois supérieure du lac urbain Kallavesi est observée par rapport aux lacs argentins,  $4,2 \times 10^8$  MP à la surface du lac Kallavesi (MP  $\geq 333$  µm) et  $2,6 \times 10^8$  MP à la surface des lacs argentins (MP  $\geq 38$  µm), respectivement.

Au contraire, le lac urbain Qinghai (Chine) semble montré neuf fois plus de MP/km<sup>2</sup> dans l'eau de surface que le lac rural Khövsgöl (Mongolie) avec 180 900 particules/km<sup>2</sup> et 20 264 particules/km<sup>2</sup>, respectivement. Ces disparités pourraient être liées à la méthodologie d'échantillonnage (filets 112 µm et 333 µm pour Qinghai et Khövsgöl, respectivement). En considérant les superficies de chaque lac (Qinghai : 4 186 km<sup>2</sup>, Khövsgöl : 2 760 km<sup>2</sup>), le lac Khövsgöl montre une présence en MP à sa surface  $10^4$  fois supérieure qu'au lac Qinghai ( $7,6 \times 10^8$  MP et  $6,2 \times 10^3$  MP, respectivement).

## Colonne d'eau

Il existe peu d'études sur la distribution des MP au sein de la colonne d'eau des lacs. À notre connaissance, seuls trois lacs, Michigan (États-Unis), Tollense (Allemagne) et Supérieur (Canada, États-Unis) ont fait l'objet de travaux sur cette matrice environnementale. À travers ces études, la colonne d'eau a été échantillonnée via l'usage de pompes (lacs Tollense et Supérieur, filtres 63 µm et 100 µm - 300 µm, respectivement) ou de filets tirés à l'horizontal (lac Tollense, maille 333 µm).

Les premiers travaux sur cette matrice datent de 2019 (Lenaker et al., 2019) où des échantillons sont réalisés sur un site proche du rivage (port de Milwaukee) du lac Michigan. Sur 5 profondeurs (-1,5 -2,7 mètres ; -6,1 -7,3 mètres ; -9,8 -10,4 mètres ; -13,4 -13,7 mètres ; -15,2



-15,5 mètres), une concentration moyenne de 0,42 MP/m<sup>3</sup> (filet ≥ 333 μm) est constatée. Aucune différence significative n'est notée entre les profondeurs en termes de concentration. Une seconde étude est parue en 2020, sur le lac Tollense (Tamminga, 2020) portant sur des MP compris entre 63 μm et 5 mm (pompe). Sur trois périodes, huit sites et trois profondeurs (surface, -7 mètres et -10 mètres) sont étudiés. De 12 fibres de MP/m<sup>3</sup> à 24 fibres de MP/m<sup>3</sup> sont identifiées aux profondeurs -7 mètres et -10 mètres. De 19 fragments de MP/m<sup>3</sup> à 47 fragments de MP/m<sup>3</sup> aux mêmes profondeurs. Selon ces travaux, l'intensité des gradients de concentration verticaux pourrait être affectée suite au brassage induit par le vent. Pour terminer, le lac Supérieur a fait l'objet d'études comparatives entre concentrations en MP et paramètres physico-chimiques (chlorophylle, turbidité) (Fox et al., 2022). Les résultats montrent une présence de MP en conditions stratifiées et en période de brassage (de 250 MP/m<sup>3</sup> à - 18 mètres à 1 900 MP/m<sup>3</sup> à - 2 mètres sous la surface). Aucune corrélation significative n'a été observée entre les concentrations en MP et la température ou la transparence des eaux.

## Sédiments

Les concentrations en MP dans les sédiments (hors rivages et plages) des lacs isolés sont comprises entre 17 MP/kg et 2 644 MP/kg (Figure 5). Pour les lacs ruraux, la concentration en MP est comprise entre 924 MP/kg et 2 100 MP/kg. Enfin, les lacs urbains montrent des concentrations allant de 27 MP/kg à 18 100 MP/kg. Comme pour la matrice eau de surface, les résultats de la Figure 5 semblent contraires à l'hypothèse initiale selon laquelle les lacs isolés seraient moins impactés par la pollution aux MP que les lacs ruraux ou urbains.

Sur le plateau tibétain, une étude menée par Liang et al. (2022) a révélé des concentrations de MP allant de 17 MP/kg à 2 644 MP/kg dans 12 lacs isolés chinois. Les auteurs ont constaté que les sédiments riches en limon et argile présentaient des concentrations plus élevées en MP. En ce qui concerne les zones urbaines, le lac Yenagoa (Nigeria) a montré des variations de concentration allant de 347 MP/kg à 4 031 MP/kg pendant la saison sèche et de 507 MP/kg à 7 593 MP/kg pendant la saison des pluies (Oni et al., 2020). Les auteurs ont attribué la contamination pendant la saison sèche à l'absence de système adéquat de traitement des eaux usées, au déversement de déchets provenant des activités agricoles et de pêche dans la région. Ils ont également souligné l'entrée d'eau de l'océan et l'apport de MP par les zones urbaines

pendant la saison des pluies, ainsi que la possibilité que les entreprises de production de plastique avoisinantes déchargent des MP suite à l'érosion. Dans le lac Tollense en Allemagne, une étude menée par Hengstmann et al. (2021) n'a pas montré de variations spatiales ou temporelles dans les échantillons de sédiments lacustres prélevés. Les auteurs ont suggéré que cela pourrait être dû à une accumulation à long terme dans la cuvette lacustre, tandis que des concentrations plus élevées ont été observées à proximité des affluents. Les lacs, qu'ils soient définis dans nos travaux comme urbains, ruraux ou isolés, ne semblent pas présenter nécessairement de différences dans leur contamination aux MP.

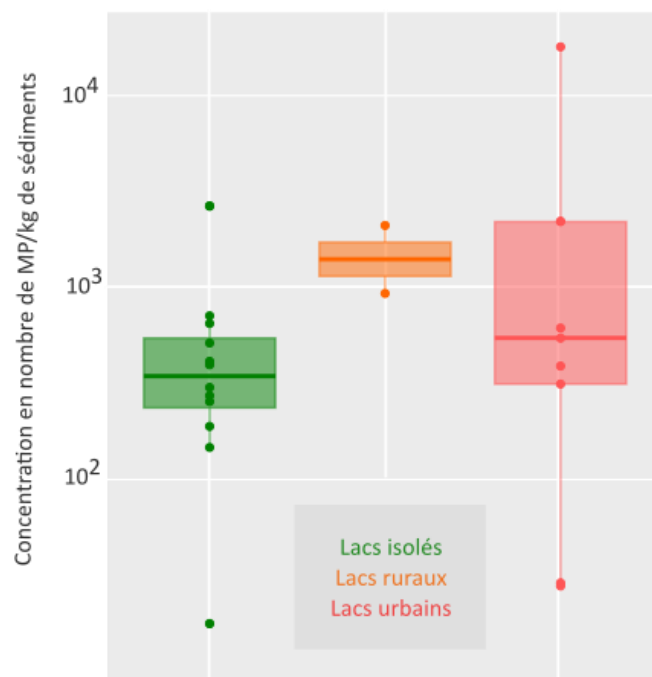


Figure 5 Représentation de la pollution aux MP des sédiments des lacs selon leur classification et en fonction des données disponibles (MP/kg). *Lacs isolés n = 12 ; Lacs ruraux n = 2 ; Lacs urbains n = 8.*

Une étude sur le golfe de Beibu, une zone de pêche traditionnelle (Chine), a montré que plus de 60 % de l'abondance totale de MP dans les sédiments est composé de fibres de PP et PE. Cette abondance a montré une forte corrélation avec l'activité de pêche suggérant que le niveau de pollution aux MP pourrait refléter l'intensité des activités de pêche (Xue et al., 2020). En plus des dispositifs de pêche, les coques de bateau pourraient être une source de MP dans les lacs. En effet, le matériau le plus répandu et utilisé dans la composition des coques de bateau est le plastique (polyester (PES) stratifié, PE principalement et plaques d'acrylonitrile-butadiène-styrène (ABS)), notamment dans la construction de voilier. En effet, l'Union

Internationale pour la Conservation de la Nature a confirmé que les coques de navire, revêtements marins et antifoulings représentent des sources potentielles de pollution aux MP dans les environnements marins (IMO, 2019).

## Caractéristiques des particules

### *Gammes de taille*

Dans la majorité des études, les MP identifiés ont une taille < 1 mm (Alfonso et al., 2020b, 2020a; Boucher et al., 2019; Cable et al., 2017; Di and Wang, 2018; Egessa et al., 2020; Eriksen et al., 2013; Fischer et al., 2016; Free et al., 2014; González-Pleiter et al., 2020; Irfan et al., 2020; Mason et al., 2020, 2016; Su et al., 2016; Uurasjärvi et al., 2020), et même < 500 µm (Boucher et al., 2019; Fischer et al., 2016; González-Pleiter et al., 2020; Jiang et al., 2018; Uurasjärvi et al., 2020; Xiong et al., 2018; Yin et al., 2020; Yuan et al., 2019). À titre d'exemple, dans les Grands Lacs (Canada et États-Unis), le nombre de petits MP (106 µm - 1 mm) est 130 fois plus élevé que les grands MP (1 mm - 4,75 mm) (Cable et al., 2017).

De nombreux paramètres pourraient influencer la distribution de taille des MP. Dans le lac Yenagoa (Nigeria), 75 % des MP dans l'eau et les sédiments sont compris entre 1 mm et 3 mm pendant la saison sèche et 89 % des particules < à 1 mm pendant la saison des pluies (Oni et al., 2020).

### *Types de polymère*

Les types de polymères les plus couramment identifiés dans les lacs (eau de surface et sédiments) sont le PE et le PP. Cela peut être mis en relation avec la demande mondiale en polymères plastiques où les PE et PP sont fortement représentés (Plastics Europe, 2019). La variation de la composition des MP entre l'eau de surface et les sédiments pourrait être due à des différences de densité. Le processus de fragmentation des polymères pourrait également être impliqué, étant donné que les différents types de polymère se fragmentent à des vitesses distinctes (*exemple : les polymères dépourvus d'additifs anti-UV ou biocides pourraient se fragmenter plus rapidement*).

La composition des MP dans l'eau de surface est similaire dans la plupart des lacs, cependant dans certaines zones, des signatures spécifiques ont été rapportées. Ces signatures peuvent

être spécifiques au site d'étude ou liées à la méthode de traitement des échantillons (densité de la solution de tri densimétrique, qualité de la base de données de référence) (Corcoran et al., 2015; Di and Wang, 2018; Negrete Velasco et al., 2020; Sighicelli et al., 2018).

À titre d'exemple, les polymères présents dans le lac Yenagoa (Nigeria) varient selon la saison. Dans l'eau de surface et les sédiments, 73 % de PET et 11 % de PVC sont observés pendant la saison sèche, contre 82 % de PVC et 4 % de PEBD (polyéthylène basse densité) pendant la saison des pluies. La présence élevée de PVC pendant la saison des pluies proviendrait de l'érosion des conduites d'eau. La présence importante de PET pendant la saison sèche a été attribuée à l'importation de matières premières par trois entreprises produisant des bouteilles en PET, situées à quelques kilomètres des rives du lac (Oni et al., 2020).

## Sources et vecteurs des microplastiques

Pour le continent européen, seuls Boucher et al. (2019) ont recensé et quantifié les quatre principaux contributeurs à la pollution plastique du lac Léman (Suisse) : l'abrasion des pneus, le secteur de la construction, l'industrie textile et de l'emballage.

Les sources de MP dans les environnements lacustres sont multiples et de diverses origines. Selon l'Institut national de l'environnement industriel et des risques, la pollution plastique a trois origines majeures : (i) la fragmentation de macroplastiques dans l'environnement, (ii) l'usure des produits contenant des polymères plastiques (fragmentation des fibres textiles lors du lavage, peintures et pneus) et (iii) l'origine intentionnelle (exfoliants, abrasions industrielles et vectorisation de médicaments) (INERIS, 2018).

La pollution des lacs par les MP peut être intensifiée par les conditions climatiques (vent, pluie, ruissellements de chaussées). Selon Yafei Zhang et al. (2020), le changement climatique augmenterait la quantité de plastiques entrant dans les lacs. L'augmentation de l'ensoleillement induit une accélération de la fonte des glaciers ainsi qu'une hausse des précipitations et tempêtes (Figure 6). Le changement climatique pourrait être susceptible d'entraîner une augmentation de la fréquence des événements extrêmes, ce qui pourrait accroître le ruissellement et diminuer l'efficacité des UDEP (Usine de dépollution des eaux usées). Ainsi, davantage de plastiques pourraient rejoindre les lacs par les rivières et

l'atmosphère. La Figure 6 représente la pollution aux MP et la resuspension des sédiments dans un lac sous l'influence du changement climatique.

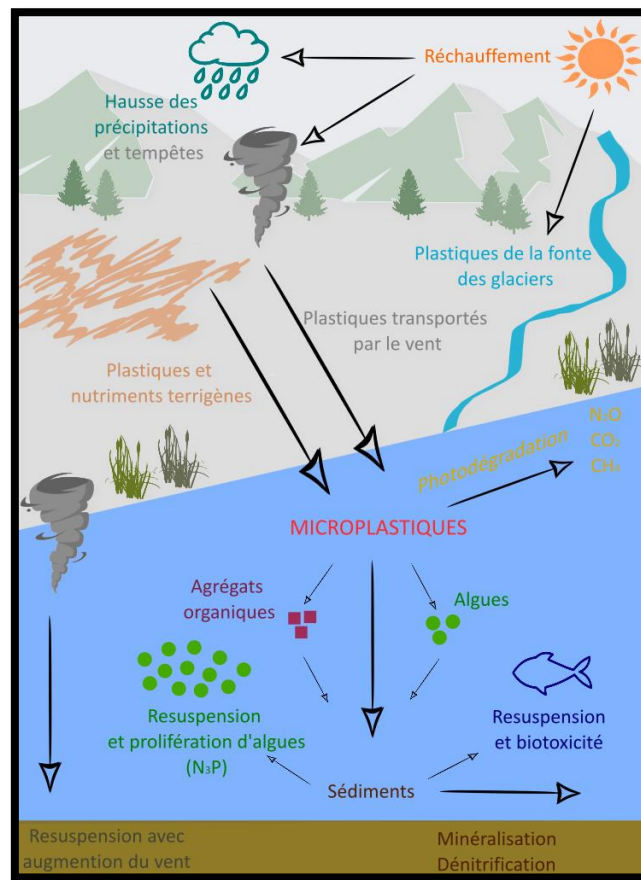


Figure 6 Pollution aux microplastiques et resuspension des sédiments dans un lac eutrophe sous l'influence du changement climatique, basée sur Yafei Zhang et al. (2020)

L'étude des bassins versants est indispensable afin de comprendre l'implication de chaque source et vecteur de contamination potentielle aux MP dans les lacs (*exemples : le lessivage des sols et ruissellement des routes, les rejets des UDEP, les retombées atmosphériques*). L'intensité des sources et l'efficacité de transfert des MP aux lacs sont influencés par la densité de population, l'imperméabilisation des bassins versants, l'activité industrielle de production et transformation des plastiques et les conditions climatiques.

### Fragmentation des macroplastiques

La plupart des connaissances sur la fragmentation des plastiques sont basées sur des expériences en laboratoire avec dégradation photochimique (UV), thermique ou biologique. Des connaissances limitées ont été acquises en conditions environnementales réelles dans

lesquelles les mécanismes de dégradation se produisent simultanément ou successivement. Les conditions environnementales (intensité lumineuse, pH et température), les propriétés chimiques et physiques des polymères plastiques (densité, cristallinité et présence d'additifs) jouent un rôle crucial dans la fragmentation des plastiques.

Dans un milieu oligotrophe, les polymères plastiques se fragmentent plus facilement due à la forte pénétration des UV et au faible « biofouling » (Andrady, 2011, 2003; Free et al., 2014). Song et al. (2017) ont démontré une photo-oxydation UV des polymères accélérant la fragmentation des plastiques, d'autant plus rapidement que l'intensité lumineuse est forte. Dans les lacs de haute altitude, les basses températures et la couverture du manteau neigeux aident au maintien de l'intégrité des particules de plastique (Andrady, 2003; Free et al., 2014). La dégradation des plastiques serait également plus faible dans les lacs que dans les écosystèmes marins en raison d'un courant moindre et d'une action limitée des vagues (Vaughan et al., 2017), entraînant une persistance de la pollution. Toutefois, les vagues littorales, notamment dans les grands lacs, peuvent provoquer des taux de fragmentation plus élevés (Imhof et al., 2013).

Le plastique est connu pour avoir une durée de vie allant de plusieurs centaines à plusieurs milliers d'années (Barnes et al., 2009). À titre d'exemple, une étude a extrapolé la durée de vie d'objets en polyéthylène haute densité (PEHD) en se basant sur le taux de dégradation de leur surface spécifique (Chamas et al., 2020). Cette étude a montré que la durée de vie du PEHD dans l'environnement marin était comprise entre 58 ans (pour une bouteille) à 1 200 ans (pour un tuyau).

En 2016, des particules de plastique ont été trouvées dans chacun des échantillons de sédiment du lac Léman (Suisse), qui provenaient principalement de la fragmentation des macroplastiques (Faure and De Alencastro, 2016). Près des lacs Dongting (Chine) et Victoria (Ouganda), les filets de pêche synthétiques constituent une source majeure de MP secondaires (Egessa et al., 2020; Yin et al., 2020). Par ailleurs, une grande quantité d'acétate de cellulose, principal constituant des filtres de cigarette, a été mesurée dans le lac Ontario (Canada/États-Unis) (Grbić et al., 2020). La prévalence de petites particules de plastique issues du processus de fragmentation a également été signalée dans le lac Khövsgöl (Mongolie) (Free et al., 2014) et dans les lacs Taihu et Poyang (Chine) (Su et al., 2016; Yuan et al., 2019).

Les processus de fragmentation du plastique, à savoir la fissuration et la scission, semblent globalement similaires dans les écosystèmes d'eau douce et marins (Imhof et al., 2013; Li et al., 2020; Zbyszewski and Corcoran, 2011). Des films de PEBD en suspension dans l'eau, irradiés 25 semaines sous lampe Xénon (irradiance lumineuse de 60 W/m<sup>2</sup>) ont subi une fragmentation partielle, suggérant que de longues durées d'exposition sont nécessaires pour provoquer la fragmentation des macroplastiques et, par conséquent, conduire à la contamination en MP de l'environnement aquatique (Julienne et al., 2019). À titre de comparaison, nous pouvons estimer qu'à la latitude des lacs étudiés dans ces travaux de thèse, l'énergie totale reçue durant un mois d'été à la surface lacustre est comprise entre 150 et 200 kWh/m<sup>2</sup> (irradiation en lumière naturelle).

La distribution de taille des MP peut être liée non seulement à la nature du polymère, mais aussi au processus de fabrication (Julienne et al., 2019). Selon Song et al. (2017), douze mois d'exposition aux UV (UV-A : 11,01 W/m<sup>2</sup> ; UV-B : 0,12 W/m<sup>2</sup> ; UV-C : 0,04 W/m<sup>2</sup>) et deux mois d'abrasion mécanique de granules, vierges d'altération, de PP et PE ont produit respectivement  $6\,084 \pm 1\,061$  MP/granule et  $20,0 \pm 8,3$  MP/granule. Le PP est en effet beaucoup plus sujet à la photo-oxydation UV que le PE. Ces vitesses de fragmentation différentes selon le polymère peuvent expliquer pourquoi, sur certains sites, la distribution polymérique des MP ne correspond pas à celle de la consommation de macroplastiques.

### *Eaux résiduaires urbaines*

Les UDEP peuvent constituer un vecteur important de MP dans les environnements lacustres, en fonction du traitement des eaux, de la densité de population et de la gestion des eaux usées (Bretas Alvim et al., 2020). Les eaux usées contiennent de grandes quantités de particules primaires et secondaires. À titre d'exemple, l'effluent d'une UDEP de Hong Kong (Chine) a montré des concentrations de  $7,1 \pm 6,0$  MP/L à  $12,8 \pm 5,8$  MP/L avec des variations intra-journalières en flux de  $6,6 \times 10^8$  MP/j et  $1,2 \times 10^9$  MP/j (Cao et al., 2020). Plusieurs expériences ont confirmé que les fibres textiles sont un composant important des MP dans les eaux usées domestiques. À titre d'exemples, un vêtement de type polaire produit environ 110 000 fibres (Carney Almroth et al., 2018) et 5 kg de tissu en PES peuvent libérer environ 6 000 000 microfibrilles (De Falco et al., 2019).

L'efficacité d'élimination des MP dans les UDEP est comprise entre 88,0 % et 99,9 % (Uddin et al., 2020). Les fibres représentent 70 % à 90 % des MP dans les effluents d'UDEP (Grbić et al., 2020; Talvitie et al., 2017).

Selon Uddin et al. (2020), le rejet d'eaux usées épurées dans l'environnement aquatique serait responsable de l'apport d'environ  $1,5 \times 10^{15}$  MP/an à l'échelle mondiale, tandis que l'apport d'eaux usées brutes de  $3,9 \times 10^{16}$  MP/an, soit un rendement moyen d'épuration des MP de 96,1% au niveau mondial. Les MP sont piégés dans les boues d'épuration des UDEP. En raison de leur caractère hydrophobe, les MP s'adsorbent aux floccs microbiens et s'accumulent ainsi dans les boues soutirées des bassins biologiques d'épuration (Hatinoğlu and Sanin, 2021). Les concentrations en MP dans les boues sont comprises entre  $7,91 \pm 0,11$  MP/kg (poids sec (ps)) et  $495 \times 10^3$  MP/kg (ps) (Hatinoğlu and Sanin, 2021; Raju et al., 2020; Sujathan et al., 2017). Ces disparités dépendent notamment de la méthode employée de traitement des boues.

## *Eaux pluviales*

Les eaux de ruissellement sur les surfaces imperméabilisées et agricoles peuvent également être des sources importantes de MP aux lacs, parfois en transitant par leurs affluents. À titre d'exemple, l'abondance des MP dans l'estuaire de la rivière Cooks (Sydney, Australie) a augmenté après deux jours de fortes pluies, passant de 400 particules/m<sup>3</sup> à 17 383 particules/m<sup>3</sup> (Hitchcock, 2020). Les événements de précipitations météoriques intenses peuvent être des moments clés de la contamination des MP dans les écosystèmes lacustres.

Une étude au Danemark (Liu et al., 2019) s'est intéressée aux MP dans les eaux pluviales urbaines et routières (10 µm - 2 mm). Les bassins recevant les eaux de ruissellement des autoroutes et zones résidentielles ont montré une plus faible concentration de MP que les bassins desservant les zones industrielles et commerciales. Les concentrations étaient comprises entre 490 et 22 894 MP/m<sup>3</sup>. Dans le cas de fortes précipitations, les ERU collectées dans des réseaux d'assainissement unitaires (regroupant eaux usées et eaux pluviales) sont rejetées au milieu naturel sans traitement via les déversoirs d'orage (lors du dépassement de la capacité hydraulique des UDEP).

Dans les eaux pluviales, Grbić et al. (2020) ont montré que les particules les plus abondantes sont les microfibrilles (41 %) et les particules d'usure de pneus et routes (PUPR) (22 %). Boucher



et al. (2019) ont estimé un flux entrant de plastique dans le lac Léman compris entre 34 t/an et 83 t/an (moyenne 59 t/an) avec de forts apports provenant des routes et du ruissellement urbain suite à des épisodes pluvieux. Les rivières et le ruissellement urbain contribuent selon cette étude à 86 % du flux annuel total de plastique au Léman (la plus forte contribution provenant des rivières en période humide). La masse de PUPR qui pénètre finalement dans le milieu aquatique dépend fortement du système de collecte et de traitement (*exemples : lagunage, massif filtrant, piégeage passif/actif, etc.*) des eaux de ruissellement. Jusqu'à 11 000 t/an de PUPR provenant des autoroutes allemandes pourraient atteindre les eaux de surface (Wagner et al., 2018).

Les eaux de ruissellement sur les surfaces agricoles peuvent également contaminer les affluents et le milieu lacustre en raison du paillage plastique, de l'épandage de boues d'UDEP, de l'utilisation de produits phytosanitaires ou d'engrais enrobés dans des microcapsules de polyuréthane (PUR) et PE (Katsumi et al., 2020), mais aussi via l'irrigation par recyclage d'effluents d'UDEP. Cet usage n'est actuellement pas autorisé dans tous les pays. En France, l'irrigation agricole ainsi que l'arrosage des espaces verts est autorisée. Depuis le 11 mars 2022 (publication du décret), les eaux usées traitées peuvent être également utilisées dans le lavage de voirie.

Le paillage plastique est une technique agricole utilisée pour réduire l'évaporation, supprimer les mauvaises herbes, conserver l'humidité et augmenter la température du sol. En Chine, les concentrations de MP dans les sols agricoles ont augmenté au fil du temps. En effet, 5, 15 et 24 ans de paillage continu ont montré  $80,3 \pm 49,3$ ,  $308,0 \pm 138,1$  et  $1\ 075,6 \pm 346,8$  MP/kg de sol, respectivement (Huang et al., 2020). L'épandage agricole des boues des UDEP peut constituer une source de MP aux lacs par lessivage des sols agricoles. Clayer et al. (2021) ont montré que 70 % à 90 % des MP arrivant au lac norvégien Mjøsa provenaient de l'épandage de boues sur les sols cultivés et d'une mauvaise gestion des déchets urbains.

### *Retombées atmosphériques*

Aux États-Unis, les sources potentielles de MP dans l'atmosphère ont été identifiées, par modélisation, comme étant les zones routières, agricoles et océans. La fabrication industrielle de textiles synthétiques et les PUPR seraient également une source importante (Yulan Zhang et al., 2020). En montagne, ce sont le tourisme et le transport atmosphérique depuis les basses

altitudes qui ont été identifiés comme les principaux vecteurs et sources de pollution (Pastorino et al., 2022).

Récemment, de nombreux scientifiques se sont intéressés à la présence de MP au sein des retombées atmosphériques à travers plusieurs grandes villes (Londres, Paris, Hambourg, Cassel, São Paulo, Dongguan, Yantai, Beijing, Tianjin, Shanghai, Hangzhou, Nanjing, Lanzhou, Jakarta) et zones non urbanisées (Pyrénées, États-Unis, Allemagne) (Allen et al., 2019; Brahney et al., 2020; Cai et al., 2017; Dris et al., 2015, 2016; Kernchen et al., 2022a, 2022b; Klein and Fischer, 2019; Z. Liu et al., 2022; Purwiyanto et al., 2022; Wright et al., 2020; Zhou et al., 2017; Amato-Lourenço et al., 2022; Xiong et al., 2022). Les contaminations moyennes en MP s'échelonnent de 9 MP/m<sup>2</sup>/j à 771 MP/m<sup>2</sup>/j (Figure 7). Les données actuellement disponibles dans la littérature scientifique (*dernière mise à jour 25/01/2023*) permettent d'estimer le flux moyen de dépôts atmosphériques en MP à l'échelle mondiale à 209 particules/m<sup>2</sup>/j.

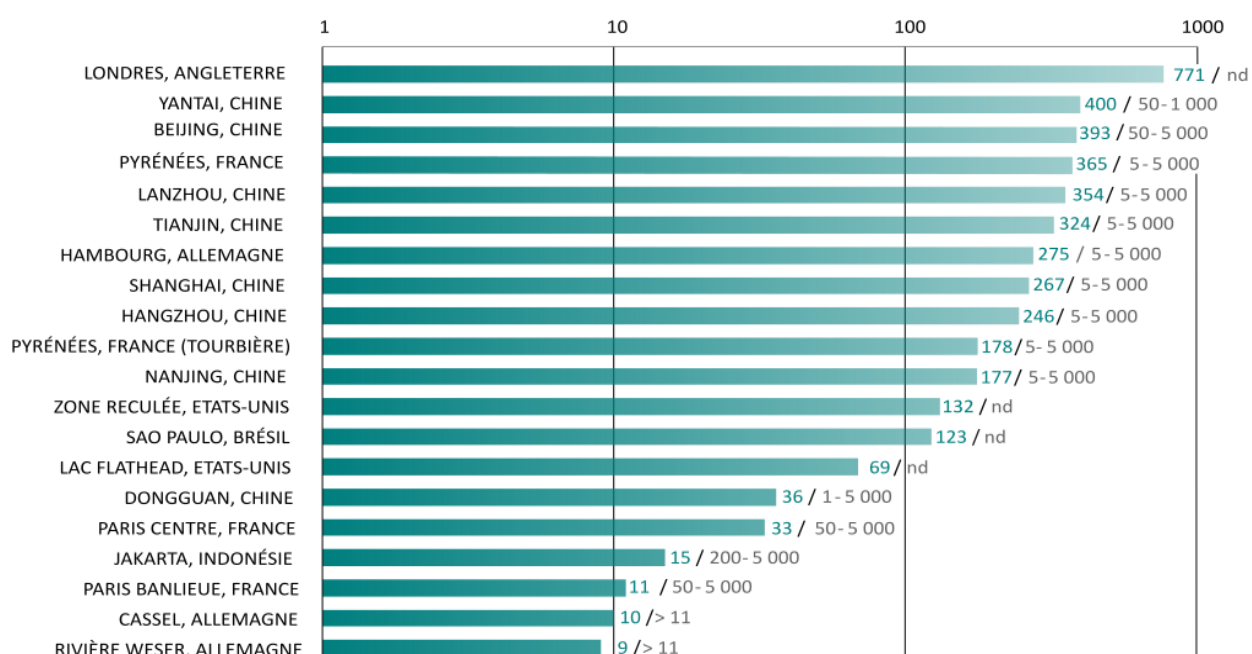


Figure 7 Retombées atmosphériques de MP entre différentes localisations géographiques (MP/m<sup>2</sup>/jour). Pour chaque localisation, la concentration moyenne est inscrite ainsi que la classe de taille étudiée (µm). Les nombres sont arrondis à l'unité la plus proche

Les flux de dépôts atmosphériques varient selon la localisation, l'époque et les conditions climatiques. À titre d'exemple, à Ho Chi Minh Ville (Vietnam) des flux de 71 à 917 MP/m<sup>2</sup>/j ont été observés (Truong et al., 2021). En agglomération parisienne, une étude a estimé que 3,5 ×

$10^{10}$  et  $7,6 \times 10^{10}$  fibres synthétiques proviendraient de l'atmosphère chaque année, conduisant ainsi à un flux de 18 à 37 fibres synthétiques/m<sup>2</sup>/j (Dris, 2016). Des comparaisons entre sites périurbains et ruraux ont révélé une contamination aux MP plus importante en milieu périurbain (14,3 à 47,1 MP/m<sup>2</sup>/j en comparaison au milieu rural : 4,3 à 18,9 MP/m<sup>2</sup>/j) (Beaurepaire et al., 2022). La chronologie de la concentration de MP d'une tourbière ombrotrophe des Pyrénées (France), correspond à l'enregistrement du flux de dépôt atmosphérique, allant de 5 MP/m<sup>2</sup>/jour dans les années 60, à 178 MP/m<sup>2</sup>/jour, entre 2015 et 2022 (Allen et al., 2021).

La présence de MP au sein des retombées atmosphériques peut être accentuée en temps de pluie ou de neige. À titre d'exemple, une étude réalisée à Jakarta (Indonésie) a révélé un flux de 23 MP/m<sup>2</sup>/j pendant la saison des pluies contre 6 MP/m<sup>2</sup>/j au cours de la saison sèche (Purwiyanto et al., 2022). Lors des précipitations, les fibres pourraient également être davantage piégées par les flocons de neige, dont la surface développée est supérieure à celle des gouttes de pluie. Des échantillons de neige et glace près du lac Vesijärvi (Finlande) ont montré des concentrations de MP de  $117 \pm 18 \times 10^3$  particules/m<sup>3</sup> de neige fondue et de  $8 \pm 1 \times 10^3$  particules/m<sup>3</sup> de glace fondue (Scopetani et al., 2019). Selon Scopetani et al. (2019), la porosité élevée du manteau neigeux pourrait jouer un rôle important dans le piégeage des fibres MP. La glace du lac Baïkal a également fait l'objet d'une récente étude révélant 55,5 à 65,0 fibres MP/L et 0,3 à 1,0 fragment MP/L (Karnaukhov et al., 2022).

Le transport des MP dans l'atmosphère dépend donc fortement des conditions météorologiques. La pluie, la vitesse et la direction du vent sont considérées comme des facteurs déterminants de l'abondance des MP dans les dépôts (Su et al., 2020). En Irlande, les dépôts secs de microfibres (plastiques et naturelles) représentent au moins 30 % des retombées totales (dépôts secs et dépôts humides) (Roblin et al., 2020). L'abondance des MP dépend du volume et de la fréquence des précipitations. Toutefois, Truong et al. (2021) n'ont pas observé de corrélation entre les flux de dépôts MP et les conditions météorologiques mais des variations selon les caractéristiques environnementales du milieu (densité de la population). Le transport atmosphérique de MP a été assez peu étudié (Horton and Dixon, 2018) en milieu continental. À Londres, Wright et al. (2020) ont estimé une distance de transport atmosphérique de MP de 12 km à 60 km. Dans les Pyrénées françaises, Allen et al.

(2019) ont mesuré une distance de plus de 95 km avant dépôt (essentiellement sous forme de retombées humides) ; Dong et al. (2021) jusqu'à 800 km sur le plateau tibétain.

Les retombées atmosphériques sont le principal flux de MP au lac Hampstead n° 1 en Angleterre (en absence de rejet d'eaux usées) (Turner et al., 2019). Dans le bassin de Nam Co (superficie : 1 920 km<sup>2</sup>), sur le plateau tibétain, l'apport moyen des retombées atmosphériques a été estimé à 3,3 tonnes de MP pendant la mousson (Dong et al., 2021). Alors que les contributions des ruissellements glaciaires et non glaciaires étaient de 41 et 522 kg de MP, respectivement.

## Conclusion du chapitre

De nombreux travaux ont montré la présence de MP dans les environnements lacustres particulièrement l'eau de surface et les sédiments. Parmi eux, un nombre limité d'études se sont intéressées aux sources et vecteurs de MP. Seuls Boucher et al. (2019) ont estimé toutes les contributions des différentes sources de MP (> 300 µm à 5 mm) au lac Léman : 41,3 t/an via les affluents en temps de pluie, 5,6 t/an via les affluents en temps sec, 8,9 t/an via les eaux pluviales (ruissellement urbain), 2,6 t/an via les ERU (déversoirs d'orage), 0,05 t/an via les effluents d'UDEP et 0,03 t/an par les retombées atmosphériques.

Selon les caractéristiques du bassin versant, la contribution relative de chaque source de MP à un lac peut varier considérablement, tant en nature qu'en intensité. À titre d'exemple, le lac Ontario (États-Unis/Canada) est exposé à diverses sources et vecteurs de MP (rejets d'UDEP, écoulements de surfaces urbanisées et agricoles) (Grbić et al., 2020). Les concentrations détectées (MP > 125 µm) sont variables avec  $15\,400 \pm 7\,900$  particules/m<sup>3</sup> dans le ruissellement des eaux pluviales,  $13\,300 \pm 15\,500$  particules/m<sup>3</sup> dans les effluents d'UDEP et  $900 \pm 1\,300$  particules/m<sup>3</sup> dans le ruissellement agricole.

## | Chapitre II |

### Matériels et méthodes



## Sites d'étude

Il est important ici de définir les termes « alpin » et « subalpin ». Selon l'Essai de Typologie des lacs alpins (Rougier, 2000), ces qualificatifs sont distingués par l'altitude, la superficie et l'aménagement des rives. Le lac Merlet supérieur est un lac alpin qui peut également être considéré comme un lac de versant ou un lac de cirque, niché en contrebas de parois minérales et glaciaires. Les lacs du Bourget et d'Annecy sont des lacs subalpins situés en bordure de l'arc alpin. Pour faciliter la comparaison des sites d'étude dans le cadre de cette thèse, plusieurs définitions sont établies. Le **Tableau 1** présente la classification utilisée pour distinguer les zones urbaines des zones rurales.

Classification	Nombre d'habitants
Village	< 2 000
Bourg	2 000 - 5 000
Petite ville	5 000 - 20 000
Ville moyenne	20 000 - 50 000
Grande ville	50 000 - 200 000
Métropole	> 200 000

Tableau 1 Classification des agglomérations selon le nombre d'habitants (INSEE)

Les sites d'étude retenus pour répondre aux problématiques de la thèse sont les trois lacs alpins (Figure 8) du Bourget (Savoie), d'Annecy (Haute-Savoie) et du Merlet Supérieur (Savoie, Parc National de la Vanoise) situés dans la région Auvergne-Rhône-Alpes (France).

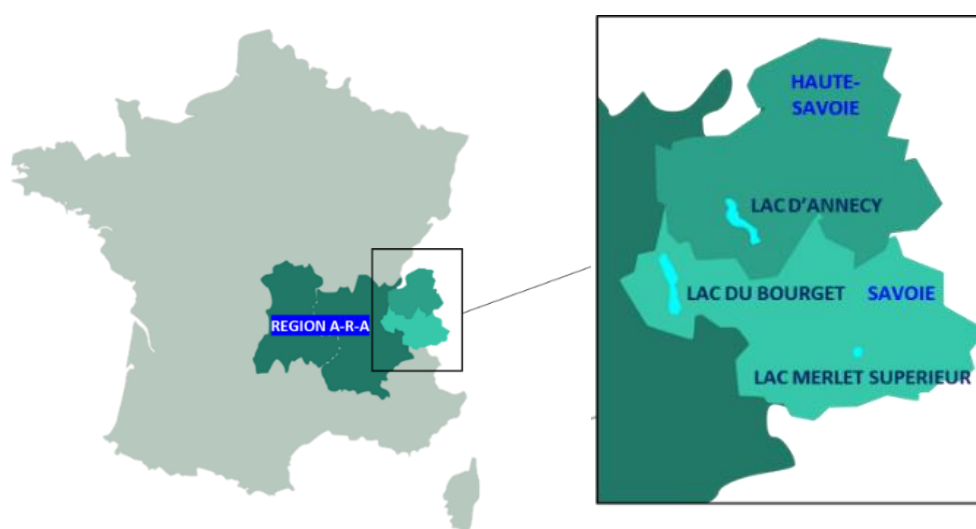


Figure 8 Localisation des trois sites d'étude

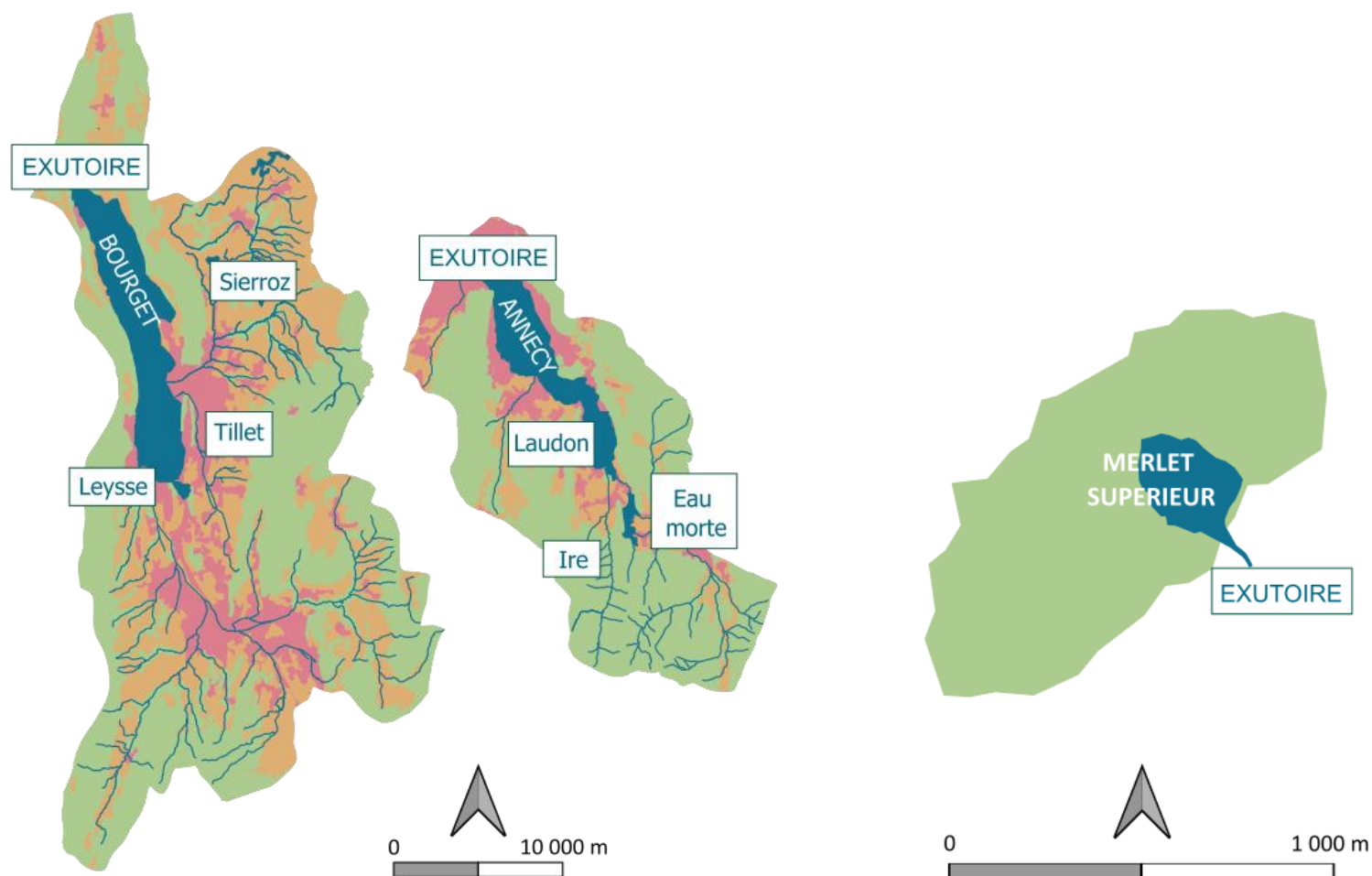


Figure 9 Représentation de l'occupation des sols des bassins versants des lacs du Bourget et d'Annecy ainsi que les réseaux hydrologiques (données issues de Corine Land Cover 2018 et IGN BD CARTO® 2022). Zones urbanisées : tissu urbain continu, tissu urbain discontinu, zones industrielles ou commerciales et installations publiques, réseaux routiers et ferroviaire et espaces associés, aéroports, extraction de matériaux, équipements sportifs et de loisirs ; Zones vertes anthropisées : espaces verts urbains, vergers et petits fruits, surfaces essentiellement agricoles, terres arables hors périmètres d'irrigation, vignobles, prairies et autres surfaces toujours en herbe à usage agricole, systèmes culturaux et parcellaires complexes ; Zones naturelles : forêts de feuillus, forêts mélangées, pelouses et pâturages naturels, forêt et végétation arbustive en mutation, forêts de conifères, landes et broussailles, végétation clairsemée ; Milieux aquatiques : cours et voies d'eau, marais intérieurs, plans d'eau



Chaque lac possède des caractéristiques spécifiques (Tableau 2 ; Figure 9) permettant l'identification et la quantification des différentes sources de contamination aux MP dans les environnements lacustres.

Le lac d'Annecy est entièrement ceinturé d'un réseau de collecteurs d'égouts depuis la fin des années 60, le préservant des pollutions domestiques et urbaines (à l'exception du déversement dans l'Eau morte (affluent du lac) des eaux usées traitées en assainissement collectif d'une population de 162 personnes (SILA)). Ses affluents principaux, Eau Morte et Laudon, drainent un bassin versant rural à agricole. Les apports de MP à ce lac proviendraient donc essentiellement des sources atmosphériques ou lessivage de zones rurales (mauvaises gestions des déchets, etc.) et agricoles (bâches de paillages, etc.). Le lac d'Annecy est également impacté par des rejets d'eaux pluviales ou de ruissellement de chaussées susceptibles de contenir notamment des particules d'usure des pneumatiques et de peintures.

Le lac du Bourget est, quant à lui, situé à l'aval d'un bassin versant fortement urbanisé. Ses principaux affluents, Leysse et Sierroz, traversent respectivement les agglomérations de Chambéry et d'Aix-les-Bains. Ils apportent au lac, en période de fortes précipitations, des eaux usées urbaines via les déversoirs d'orage des usines de dépollution de ces deux villes et des eaux de ruissellement de voirie à fort trafic véhiculaire.

Le lac Merlet Supérieur, situé à 2 452 mètres d'altitude au cœur du Parc National de la Vanoise, est uniquement soumis aux retombées atmosphériques (à l'exception des MP potentiellement générés par la fréquentation touristique (pêche de loisir, randonnée en montagne) ou le pastoralisme) (Figure 10).



Figure 10 Image satellite du lac Merlet supérieur (Géoportail) et délimitation approximative de son bassin versant

Alfonso et al. (2020b) considèrent que la compréhension du devenir des MP dans les lacs nécessite de considérer les caractéristiques physiques et environnementales suivantes : superficie du lac ( $\text{km}^2$ ), volume ( $\text{km}^3$ ), profondeurs maximale et moyenne (m), temps de rétention de l'eau (année), altitude (m), superficie du bassin versant ( $\text{km}^2$ ), occupation des sols (pourcentage de terrains artificiels, agricoles et naturels), caractéristiques des affluents et émissaires (longueur, débit), politique de traitement des déchets, eaux usées et eaux pluviales, densité de population ( $\text{habitants}/\text{km}^2$ ) et distance des zones habitées au lac (km). Ces différentes caractéristiques sont répertoriées dans le **Tableau 2**.

Tableau 2 Représentation des caractéristiques spécifiques aux trois sites d'étude et bassins versants.

Lac	Bourget	Annecy	Merlet supérieur
<b>Superficie du lac (km<sup>2</sup>)</b>	44	26	0,05
<b>Altitude (m)</b>	232	447	2 452
<b>Profondeur moyenne (m)</b>	85	41,5	14
<b>Profondeur maximale (m)</b>	144 - 147	82	29
<b>Longueur (km)</b>	18	14,6	0,3
<b>Largeur (km)</b>	3,5	3,2	0,2
<b>Volume (km<sup>3</sup>)</b>	3,6	1,1	0,2 × 10 <sup>-3</sup>
<b>Superficie du bassin versant (km<sup>2</sup>)</b>	560	251	0,63
<b>Temps de séjour des eaux (années)</b>	9 - 11	4	nd
<b>Affluents principaux et débits moyens annuels (m<sup>3</sup>/s)</b>	Leyse 2,47 ; Sierroz 2,43 ; Tillet 0,447 <i>(données de Hydroreel)</i>	Eau Morte 2,61 ; Ire 1,04 ; Laudon 0,736 <i>(données de Hydroreel)</i>	Non
<b>Émissaires</b>	Canal de Savières	Thiou	Ruisseau de la Rosière vers lac Merlet inférieur
<b>Politique de traitement des déchets, ERU et eaux pluviales (EP)</b>	Lac impacté par les macrodéchets plastiques (potentiellement ménagers et/ou professionnels) ; rejets ERU existants (limités) et rejet EP	Lac impacté par les macrodéchets plastiques (potentiellement ménagers et/ou professionnels) ; Lac non impacté par les ERU mais rejet EP	Lac non impacté par les EU ; déchets potentiels via randonneurs ou expéditions scientifiques uniquement
<b>Gel (mois/an)</b>	0	0	entre 7 et 8
<b>Distance approximative entre zone habitée et lac (km)</b>	0	0	Méribel-Mottaret 4,8 ; Pralognan la Vanoise 6,5 ; Courchevel 6,2
<b>Densité de population du bassin versant (habitants/km<sup>2</sup>)</b>	~ 357	~ 136 (hors agglomération annécienne)	0
<b>Nombre de ports de plaisance</b>	13 (2023)	7 (2023)	0

<b>Pêche loisir</b>	Nombre de carnets délivrés pour la pêche en bateau : 1 511 (2020), 1 840 (2021), 2 037 carnets (2022) <i>(données obtenues auprès de J. Raphy du CISALB)</i>	Nombre de cartes vendues toutes catégories confondues (annuel, hebdo, journalière) : 3 140 (2020), 2 890 (2021), 3 193 (2022) <i>(données obtenues auprès de V. Detraz de la DDT 74)</i>	Nombre de cartes vendues (pour 6 lacs de la commune) : 172 en 2020, 190 en 2021, 150 en 2022 <i>(données obtenues auprès de N. Rochaix de la mairie de Courchevel)</i>
<b>Pêche professionnelle</b>	8 (2023)	2 (2023)	0
<b>Emplacements aux ports à l'année</b>	2 950 (2023)	1 213 (2023)	0
<b>Tourisme (nombre de nuitées/an)</b>	Aix-les-Bains : 2 126 780 (2021) <i>(estimations obtenues auprès de T. Claret de l'Office de Tourisme d'Aix-les-Bains, sources INSEE et Tableau de Bord du Tourisme Local de Savoie Mont Blanc)</i>	Secteur lac d'Annecy : 1 203 400 (2019) <i>(M. Hottois Office Tourisme d'Annecy)</i>	Nombre de nuitées au refuge des lacs Merlet : 294 en 2020, 334 en 2021, 473 en 2022 <i>(données obtenues auprès de N. Rochaix de la mairie de Courchevel)</i>
<b>Tourisme en période hivernale (novembre à avril)</b>	103 192 <i>(données obtenues auprès de T. Claret de l'Office de Tourisme d'Aix-les-Bains, source Taxe de séjour)</i>	Secteur lac d'Annecy : 395 000 (2019) <i>(M. Hottois Office Tourisme d'Annecy)</i>	Courchevel : 1 703 000 (2017/2018) <i>(données Mairie de Courchevel)</i>
<b>Tourisme en période estivale (mai à octobre)</b>	434 883 <i>(données obtenues auprès de T. Claret de l'Office de Tourisme d'Aix-les-Bains, source Taxe de séjour)</i>	Secteur lac d'Annecy : 546 100 (2019) <i>(M. Hottois Office Tourisme d'Annecy)</i>	nd

## Lac du Bourget

### Géographie et bassin versant

Après le lac Léman, le lac du Bourget est le plus grand lac naturel de France d'origine glaciaire (en volume). Il est orienté nord-sud et bordé par la chaîne de l'Épine à l'ouest. À l'est, plusieurs étages se succèdent : la chaîne de la Chambotte, la colline de Tresserve et le massif des Bauges. Le lac du Bourget est considéré comme un lac subalpin puisqu'il est situé aux pieds des Alpes dans la zone des Préalpes.

La chaîne de l'Épine, chaînon du massif jurassien, culmine au-dessus du lac à une altitude de 1 452 mètres (Molard Noir). Très escarpée, cette côte est par conséquent sauvage et boisée. Seuls quelques villages sont présents : Bourdeau (574 habitants (INSEE, 2019)), Saint-Jean-de-Chevelu (823 habitants (INSEE, 2019)), La Chapelle-du-Mont-du-Chat (261 habitants (INSEE, 2019)) et plus au nord, Conjux (207 habitants (INSEE, 2019)). Le bord de rive est assez peu accessible. Son caractère préservé laisse supposer que l'apport de MP au lac depuis la côte Ouest est faible (peu d'habitations à proximité du lac, réseau routier peu étendu, absence d'affluent majeur).

À l'inverse de la côte sauvage, la rive à l'est est urbanisée notamment par la ville moyenne d'Aix-les-Bains (30 463 habitants (INSEE, 2019)). Deux autres bourgs sont présents : Tresserve (2 988 habitants (INSEE, 2019)) et Brison-Saint-Innocent (2 262 habitants (INSEE, 2019)). L'urbanisation de cette rive présage un apport en MP plus important que la rive ouest. De plus, la présence du Sierroz, second affluent majeur du lac, serait un vecteur potentiel de MP au lac.

Au nord du lac, les marais de Chautagne s'étendent sur 59 km<sup>2</sup> entre le Rhône et la montagne de Cessens.

La roselière du domaine de Buttet et la base de loisirs des Mottets bordent la côte sud du lac entre les bourgs du Bourget-du-Lac (4 966 habitants (INSEE, 2019)) et du Viviers-du-Lac (2 269 habitants (INSEE, 2019)). La grande ville de Chambéry (58 917 habitants (INSEE, 2019)) située plus au sud, à moins de 10 kilomètres, est traversé par la Leysse (affluent majeur du lac). Cette zone sud fortement urbanisée et industrialisée, serait la plus impactante en termes de pollution MP au lac.

Ainsi, le bassin versant du lac du Bourget est constitué de trois affluents majeurs : la Leysse, le Sierroz et le Tillet, pour une superficie de 560 km<sup>2</sup>. L'exutoire du lac est le Rhône, via le canal de Savières, régulé hydrauliquement par la Compagnie Nationale du Rhône.

Les affluents du lac du Bourget ont un régime pluvio-nival, avec des périodes de hautes eaux et de crues particulièrement entre octobre-novembre et avril-mai et des périodes d'étiage de juin à septembre (Tableau 3).

<b>Cours d'eau</b>	<b>Longueur (km)</b>	<b>Bassin versant (km<sup>2</sup>)</b>	<b>Débit moyen (m<sup>3</sup>/s) selon Hydroreel</b>	<b>Étiage quinquennal (QMNAS) selon Hydroreel</b>
<b>Leysse</b>	28,5	306,0	6,22	0,72
<b>Sierroz</b>	19,0	157,0	2,43	0,23
<b>Tillet</b>	14,4	49,5	0,74	0,05
<b>Canal de Savières</b>	4,5	nd	nd	nd

Tableau 3 Caractéristiques principales des cours d'eau majeurs et exutoire du lac du Bourget

La Leysse (Figure 9), considérée comme l'affluent principal du lac du Bourget, prend sa source dans le massif des Bauges. La première partie du cours d'eau est naturelle, la seconde artificielle et endiguée notamment dans la ville de Chambéry.

Les eaux usées épurées de l'agglomération de Chambéry sont en temps normal rejetées au Rhône via une galerie traversant le massif de l'Épine jusqu'à la commune de La Balme (Savoie), collectant également les ERU épurées des UDEP d'Aix-les-Bains et du Bourget-du-Lac. Cependant, tous les deux ans, le rejet des UDEP de Chambéry (200 000 équivalent-habitant (EH)), d'Aix-les-Bains (90 000 EH) et du Bourget-du-Lac (10 000 EH) est effectué dans la Leysse à 650 mètres en amont de son embouchure au lac. Cet évènement pourrait apporter de fortes quantités de MP au lac.

Le Sierroz (Figure 9), deuxième affluent du lac en termes de longueur, débit moyen et superficie de bassin versant, prend sa source dans le massif des Bauges. Rivière naturelle, elle devient aménagée sur les communes de Grésy-sur-Aix (4 595 habitants (INSEE, 2019)) et Aix-les-Bains. Le Sierroz se distingue par la superficie de son bassin versant presque deux fois inférieure (157 km<sup>2</sup>) à celui de la Leysse (306 km<sup>2</sup>). Il est soumis aux rejets d'ERU en cas de trop-plein des bassins de stockage et de restitution (BSR) des Biâtres et d'Albens.

Enfin, le ruisseau du Tillet (Figure 9) prend sa source en contrebas du massif des Bauges. Sauvage en amont, le Tillet s’urbanise en traversant la ville d’Aix-les-Bains. Son débit moyen est faible par rapport à la Leysse et au Sierroz mais il est vecteur d’ERU non traitées lors de fortes précipitations (Pesce et al., 2019).

### Bathymétrie et stratification

La carte bathymétrique (Figure 11) confirme le caractère abrupt du massif à l’ouest du lac, plongeant rapidement dans les profondeurs du lac contrairement à la rive est. Les rives septentrionales et méridionales se différencient des rives occidentales et orientales par la présence de larges beines. En effet, la rive occidentale est marquée par un talus avec une très forte pente rendant la beine inexistante. La rive orientale nord montre le même schéma contrairement aux zones centre et sud où il y a présence de beines (isobathes de 20 mètres).

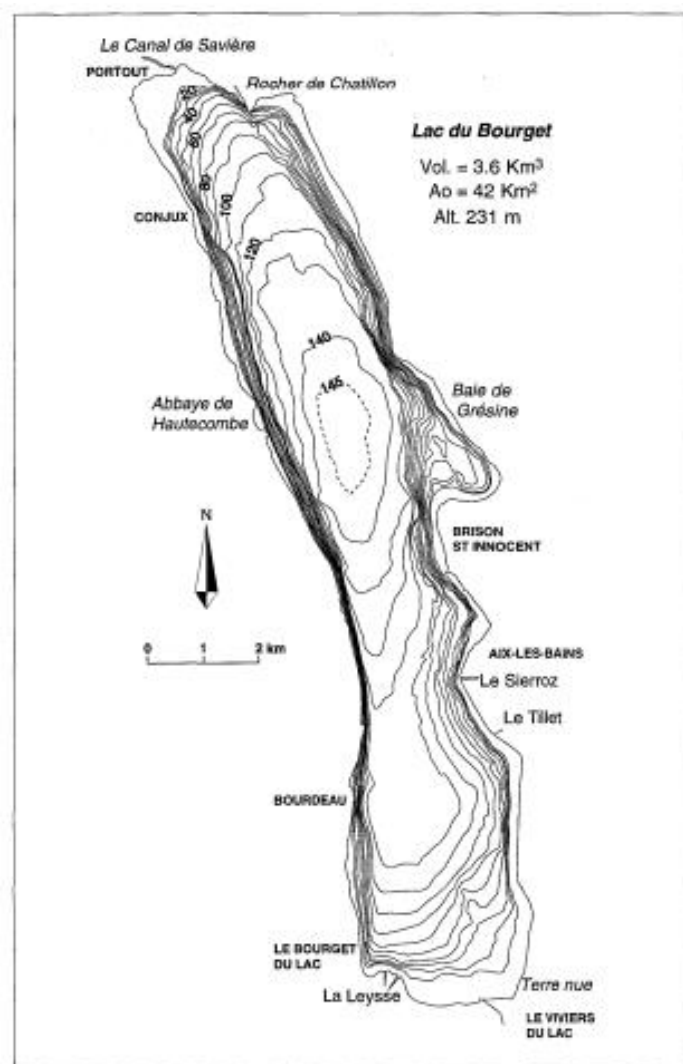


Figure 11 Carte bathymétrique du lac du Bourget (Chapron, 1999)

Le lac du Bourget est de type monomictique chaud. À la fin de l’hiver, en période d’homothermie, les eaux s’homogénéisent selon l’intensité du froid, du vent et de l’ensoleillement. Ce brassage pourrait influencer la concentration des MP dans la colonne d’eau et remobiliser les particules de plastique présentes dans la couche superficielle du sédiment.

Au sein de l’épilimnion les particules plastique sont les plus exposées à la fragmentation de par la potentielle abrasion mécanique et la photooxydation. Le métalimnion et l’hypolimnion contiennent des MP moins soumises à la fragmentation. Les seiches internes et le courant pourraient toutefois jouer sur la concentration des MP dans ces strates. Lors du brassage du lac, les MP pourraient être redistribués dans toute la colonne d’eau.

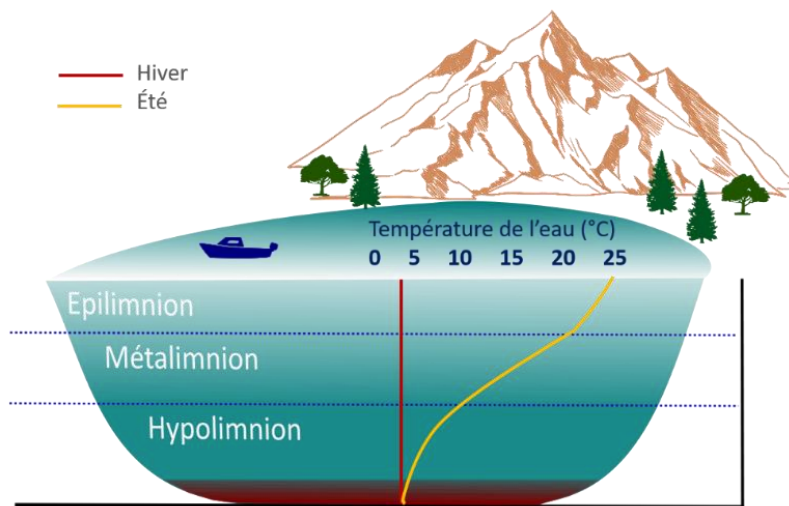


Figure 12 Représentation graphique de la stratification thermique d’un lac en saison estivale

### Qualité des eaux et activités humaines

Dès la fin des années 50, le lac du Bourget est victime d’eutrophisation. D’importants travaux d’assainissement sont réalisés dans les années 70 afin d’enrayer ce phénomène. La galerie de rejet au Rhône est creusée sous la montagne de l’Épine et mise en service en 1980. Les BSR des eaux usées de temps de pluie, permettant d’éviter en partie les rejets d’ERU à la Leysse ou au Sierroz sont mis en service depuis les années 2020. Actuellement, le lac du Bourget est considéré oligotrophe.

Sur les presque 50 km de rives au total, une quinzaine de kilomètres sont des rives naturelles (absence de constructions immobilières ou routières dans les 150 mètres de bord de rive)



particulièrement sur les zones ouest, nord et sud. Au sud, un arrêté de protection du biotope préserve la rive sur 1,5 km environ.

Toutefois, l'urbanisation en amont du lac du Bourget peut influencer la qualité des eaux notamment via les affluents et rejets directs d'eaux pluviales. Depuis 1968, la population des 11 communes à proximité du lac du Bourget est passée de 80 502 habitants à 115 850 habitants en 2019 soit une croissance de 44 % (INSEE).

Avec ses 13 ports de plaisance, le lac du Bourget accueille plus de 3 000 bateaux à l'année (en 2020, 3 041 places de port et 125 bateaux disposant d'une autorisation d'occupation temporaire soit 3 166 places d'amarrage au total selon la Direction Départementale des Territoires, (2021). Des campagnes réalisées en 2019 et 2020 ont montré un nombre moyen d'embarcations simultanées sur le lac compris entre 528 et 649 avec des pics de fréquentation allant jusqu'à 800 embarcations (Direction Départementale des Territoires, 2021). Une dizaine de pêcheurs professionnels et plus de 1 500 pêcheurs amateurs pratiquent depuis la rive ou à bord d'une embarcation avec des dispositifs en matière plastique (Montuelle and Clémens, 2015). Ces activités touristiques et urbaines se concentrent sur trois zones : au nord (baies de Conjux et Chindrieux), au centre (ports d'Aix-les-Bains et baie de Grésine) et au sud (ports du Bourget-du-Lac).

## Lac d'Annecy

### Géographie et bassin versant

Le lac d'Annecy est le troisième plus grand lac (en volume) naturel de France d'origine glaciaire après les lacs Léman et du Bourget. Il est orienté nord-ouest - sud-est et bordé par le massif des Bauges.

À l'est, le massif des Bornes avec les Monts Veyrier, Baron et Baret se succèdent du nord au centre du lac. Les montagnes des Dents de Lanfon et de la Tournette (2 351 mètres d'altitude) se situent plus au loin. Le lac d'Annecy est formé par le Grand Lac au nord et le Petit Lac au sud de la ligne Château de Duingt (ouest) - Roc de Chère (est).

Le plateau du Semnoz, à l'ouest, culmine à 1 700 mètres d'altitude (Crêt du Châtillon) au-dessus du lac d'Annecy. Il se situe à environ 3 km du bord de rive. Sur cette rive quelques bourgs et villages y sont installés : Sévrier (4 139 habitants (INSEE, 2019)), Saint-Jorioz (6 008 habitants

(INSEE, 2019)), Duingt (994 (INSEE, 2019)) et La Thuile (1 008 habitants (INSEE, 2019)). Cette rive est très accessible de par l'existence de nombreux axes routiers et aménagements cyclables dont la voie verte permettant de réaliser le tour du lac. L'utilisation de ces aménagements par les voitures, vélos et autres activités sportives pourraient émettre des MP susceptibles d'atteindre le lac.

À l'est, le Mont Baron, point culminant de la partie nord du lac est situé à 1 299 mètres d'altitude et à 1,6 km du bord de rive. Les Monts Veyrier (1 291 mètres d'altitude) et Baret (1 243 mètres d'altitude) sont également situés à proximité du lac, au nord et au sud du Mont Baron, respectivement. Tous trois forment une courte chaîne de montagne se terminant au nord de la commune de Menthon-Saint-Bernard. Au centre et sud-est, les Dents de Lanfon, culminant à 1 824 mètres d'altitude, sont localisés à environ 4 km du bord de rive et le Col de la Forclaz (1 147 mètres d'altitude) à moins d'un kilomètre. Comme la côte ouest, la rive est habitée du nord au sud par les communes de Veyrier-du-Lac (2 276 habitants (INSEE, 2019)), Menthon-Saint Bernard (1 884 habitants (INSEE, 2019)) et Talloires-Montmin (1 948 habitants (INSEE, 2019)). La réserve de Roc en Chère préserve environ 2,5 kilomètres de ce rivage des activités anthropiques. Contrairement au lac du Bourget, le lac d'Annecy ne possède pas de côte sauvage. Les rives sont fortement construites et souvent au plus près du lac. Cette urbanisation importante et contiguë au lac pourrait être source de MP.

Au nord du lac, l'agglomération d'Annecy s'étend sur presque 67 km<sup>2</sup>. D'une population de 130 721 habitants (INSEE, 2019), elle est toutefois située en aval du lac contrairement à Chambéry et Aix-les-Bains pour le lac du Bourget. Le lac d'Annecy serait donc a priori moins impacté par la pollution MP générée par les zones urbanisées et industrielles. Le seul exutoire du lac, le Thiou, traverse la ville d'Annecy, reçoit le canal du Vassé, exutoire secondaire et rejoint le Fier, affluent du Rhône.

Au sud, la réserve du Bout-du-Lac s'étend sur 84,53 hectares entre la commune de Doussard et le lac. Cette zone sud pourrait être préservée d'une potentielle contamination directe aux MP par les rives.

Le bassin versant du lac d'Annecy est drainé par trois affluents majeurs (Tableau 4) : le Laudon, l'Ire et l'Eau Morte. La superficie du bassin versant est de 251 km<sup>2</sup> soit plus de deux fois inférieure à celle du lac du Bourget (560 km<sup>2</sup>). Cette caractéristique montre que le lac d'Annecy

serait moins exposé que le lac du Bourget aux impacts potentiels du bassin versant et donc de la contamination aux MP.

L'Eau Morte, l'Ire, le Laudon et la Bornette apportent au lac environ 60 % des eaux de surface dont 34 % pour la seule Eau Morte (Dubosson, 2016). L'Ire représente 15 % des apports au lac et le Laudon 12 %, les autres affluents sont de moindre importance (Balvay, 1978). Parmi ces affluents, seul le Laudon rejoint le Grand Lac.

<b>Cours d'eau</b>	<b>Longueur (km)</b>	<b>Bassin versant (km<sup>2</sup>)</b>	<b>Débit moyen (m<sup>3</sup>/s)</b>	<b>Étiage quinquennal (QMNA5)</b>
<b>Eau Morte</b>	17,58	92,5	2,61	0,580
<b>Ire</b>	12,64	27,5	1,04	0,150
<b>Laudon</b>	9,89	29,2	0,736	0,036
<b>Thiou</b>	3,61	nd	nd	nd

Tableau 4 Caractéristiques principales des cours d'eau majeurs et exutoire du lac d'Annecy (données de débit moyen et étiage quinquennal Hydroreel)

L'Eau Morte (Figure 9), affluent majeur du lac d'Annecy, prend sa source dans le massif des Bauges. Alimenté par un bassin versant d'environ 93 km<sup>2</sup>, cet affluent traverse les communes de Faverges-Seythenex (7 609 habitants (INSEE, 2019)), Giez (525 habitants (INSEE, 2019)) et Doussard (3 542 habitants (INSEE, 2019)). L'Eau Morte traverse un territoire majoritairement occupé par des zones de forêts et milieux semi-naturels (78,2 % selon les données annuaire-mairie). L'Eau Morte est considérée comme un affluent rural.

L'Ire (Figure 9) prend sa source dans le massif des Bauges. Traversant les communes de Jarsy (271 habitants (INSEE, 2019)), Chevaline (202 habitants (INSEE, 2019)) et Doussard (3 542 habitants (INSEE, 2019)), il est alimenté par un bassin versant de 27,5 km<sup>2</sup>. Les sols de Jarsy et Chevaline sont occupés par des forêts et milieux semi-naturels (89,6 % à 94,6 %) et territoires agricoles (5,1 % à 10,4 %). Par conséquent, l'Ire est également considéré comme un affluent rural. Cependant, il pourrait apporter au lac une contamination en MP via les territoires agricoles de son bassin versant.

Le Laudon (Figure 9) prend sa source en contrebas du massif des Bauges. Il traverse les communes de Leschaux (273 habitants (INSEE, 2019)), La Chapelle-Saint-Maurice (115 habitants (INSEE, 2019)), Saint-Eustache (498 habitants (INSEE, 2019)) et Saint-Jorioz (6 008 habitants (INSEE, 2019)). Son bassin versant est d'une superficie (29,2 km<sup>2</sup>) proche de celui de l'Ire.

Parcourant la petite ville de Saint-Jorioz, le Laudon est considéré comme un affluent « semi-urbain ».

### Bathymétrie et stratification

Le lac d'Annecy est d'origine glaciaire et subalpin puisqu'il est situé aux pieds des Alpes dans la zone des Préalpes. Il est constitué du Grand Lac d'une superficie de 20,3 km<sup>2</sup> et du Petit Lac d'une superficie de 6,3 km<sup>2</sup>, soit 76% et 24 % du lac, respectivement. La répartition est similaire en termes de volume (Balvay and Druart, 2020). Ces deux bassins sont séparés par un passage étroit d'une cinquantaine de mètres de profondeur au niveau de Duingt (Figure 13). Le premier bassin au nord montre une profondeur maximale d'environ 65 mètres, le second révèle un plateau à 55 mètres.

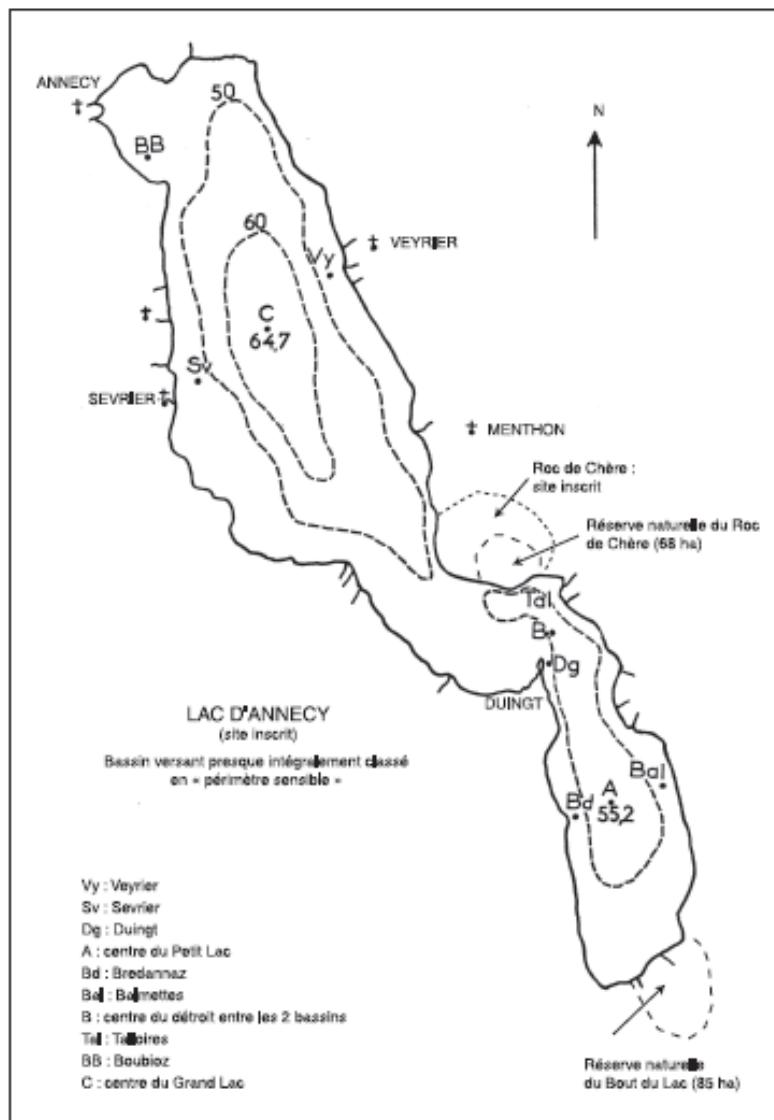


Figure 13 Carte bathymétrique du lac d'Annecy (Balvay, 1978)

Selon Balvay and Druart (2020), le Petit Lac est plus turbide que le Grand Lac, il se comporte comme un décanteur en raison des apports par l'Eau Morte et l'Ire qui ont, en général, des débits plus importants que le Laudon.

Au nord du lac, au sud ainsi que sur la rive occidentale près de l'embouchure du Laudon, la beine littorale est relativement étendue. La rive orientale est plus abrupte au nord par la présence du massif des Bornes. Au niveau du Roc de Chère, la falaise plonge très rapidement dans le lac sur une profondeur d'environ 40 mètres.

Le lac d'Annecy est considéré comme monomictique chaud avec un brassage en période hivernale.

### **Qualité des eaux et activités humaines**

Le caractère oligotrophe du lac est reconnu depuis 2000 (Frossard et al., 2022, 2021).

Le bassin versant du lac d'Annecy est composé de zones de bois et forêts (63 %), prairies et terres agricoles (21 %), zones urbanisées (13 %) et dénudées (carrières, rochers pour 3 %) (données 2005 de la Société d'équipements du département de la HauteSavoie - SED 74). Le Grand Lac et le Petit Lac se distinguent par une forte urbanisation au nord et un rivage plus sauvage et préservé au sud. Le Petit Lac serait plus protégé de l'urbanisation que le Grand Lac. Le Petit Lac reçoit les apports des affluents de l'Eau Morte et de l'Ire alors que le Grand Lac reçoit seulement les apports du Laudon.

Les rives du lac d'Annecy sont aménagées et urbanisées sur une grande partie. Seulement 10 % de la totalité des rives sont des espaces naturels (réserves de Roc en Chère et Bout-du-Lac). À proximité de ces espaces naturels, il est supposé que la pollution aux MP serait plus faible. Depuis 1968, la population des 8 communes à proximité du lac d'Annecy est passée de 83 339 habitants à 151 512 habitants en 2019 soit une croissance de 75 %. Cette croissance a été 1,7 fois plus rapide que celle concernant les communes du lac du Bourget.

Les rives occidentales et orientales sont très habitées, avec la présence d'aménagements touristiques (établissements hôteliers, restaurants gastronomiques) et d'axes routiers très empruntés en toutes saisons. Le lac d'Annecy montre une artificialisation des rives plus précoce et plus importante que le lac du Bourget.

Le tourisme au lac d'Annecy s'est fortement accentué dès le début du XXe siècle. En 2021, sur 8 campagnes de prise de vue réalisées entre le 18 juin et le 9 octobre par le SILA, le nombre d'embarcations sur le lac a été estimé entre 142 et 888 embarcations. En 2021, ce sont entre 88 et 1 128 embarcations qui avaient été identifiées (Perrin et al., 2021). En comparaison, le lac du Bourget a connu un pic de fréquentation allant jusqu'à 800 embarcations (Direction Départementale des Territoires, 2021).

En 1943, le professeur Hubault alerte la population sur l'état d'eutrophisation naissant du lac. Cette pollution provenant du bassin versant est liée à la croissance démographique, l'intensification des pratiques agricoles, au développement de l'habitat, de l'hygiène et de l'industrie (Balvay and Druart, 2020). La création du Syndicat des communes riveraines du lac d'Annecy, devenu SILA en 1991, permet le lancement de travaux d'assainissement avec la construction d'une ceinture de collecte des eaux usées dans les années 60-70. Désormais, les eaux usées sont épurées sur la commune de Cran-Gevrier (UDEP SILOE) avant d'être acheminées vers le Fier.

## *Lac Merlet supérieur*

### **Géographie et bassin versant**

Le lac Merlet supérieur est un lac d'altitude localisé à 2 452 mètres en Savoie sur la commune Saint-Bon-Tarentaise dans le Parc National de la Vanoise. Il est orienté sud-est et s'étend sur 4,92 ha, entouré par un cirque glaciaire culminant, au sud-ouest, par l'Aiguille du Fruit à 3 051 mètres d'altitude. La Crête de Chanrossa ferme le cirque sur la rive nord-ouest du lac. Les zones à l'est et au sud-est du lac sont plus ouvertes et surplombent le ruisseau de la Rosière (émissaire du lac Merlet supérieur) qui alimente, le lac Merlet inférieur (à une distance d'environ 450 mètres). Le littoral du lac Merlet supérieur est constitué à 66,3 % de blocs, 21,8 % de sédiments fins, 10,6 % de galets/graviers et 1,3 % constitue l'exutoire (Bruno, 2011).

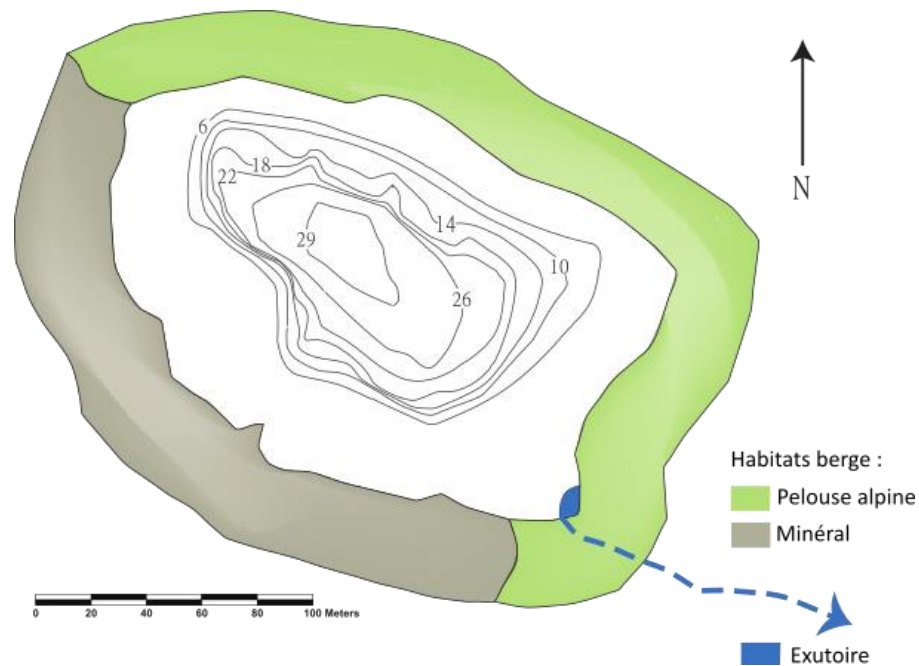


Figure 14 Carte bathymétrique du lac du Merlet supérieur et cartographie habitationale des berges et de la zone littorale (modifiée à partir de source : diagnose écologique des lacs de haute altitude de la Vanoise septembre 2011, Bruno Porta)

D'une superficie de 0,63 km<sup>2</sup>, le bassin versant du lac Merlet supérieur est principalement couvert de pelouse alpine et roches nues (Figure 14), pour 25 % et 75 % respectivement (Bruno, 2011). Aucune infrastructure d'origine anthropique n'est située sur le bassin versant. Il est alimenté principalement par la fonte des neiges au printemps, les eaux du glacier rocheux situé sous l'Aiguille du Fruit et les précipitations atmosphériques.

### Bathymétrie et stratification

Sa profondeur de 29 mètres en fait le lac le plus profond du Parc National de la Vanoise. Il possède une forme abyssale avec une profondeur moyenne d'une dizaine de mètres (Bruno, 2011). C'est un lac de type froid qui gèle au cours de la saison hivernale, d'Octobre-Novembre à Mai-Juin selon les années.

Le lac Merlet supérieur est qualifié de dimictique avec deux périodes de stratification thermique (Figure 15). La stratification hivernale (ou inverse) est caractérisée par des strates thermiques qui sont plus chaudes en profondeur qu'à la surface où il y a prise de glace.

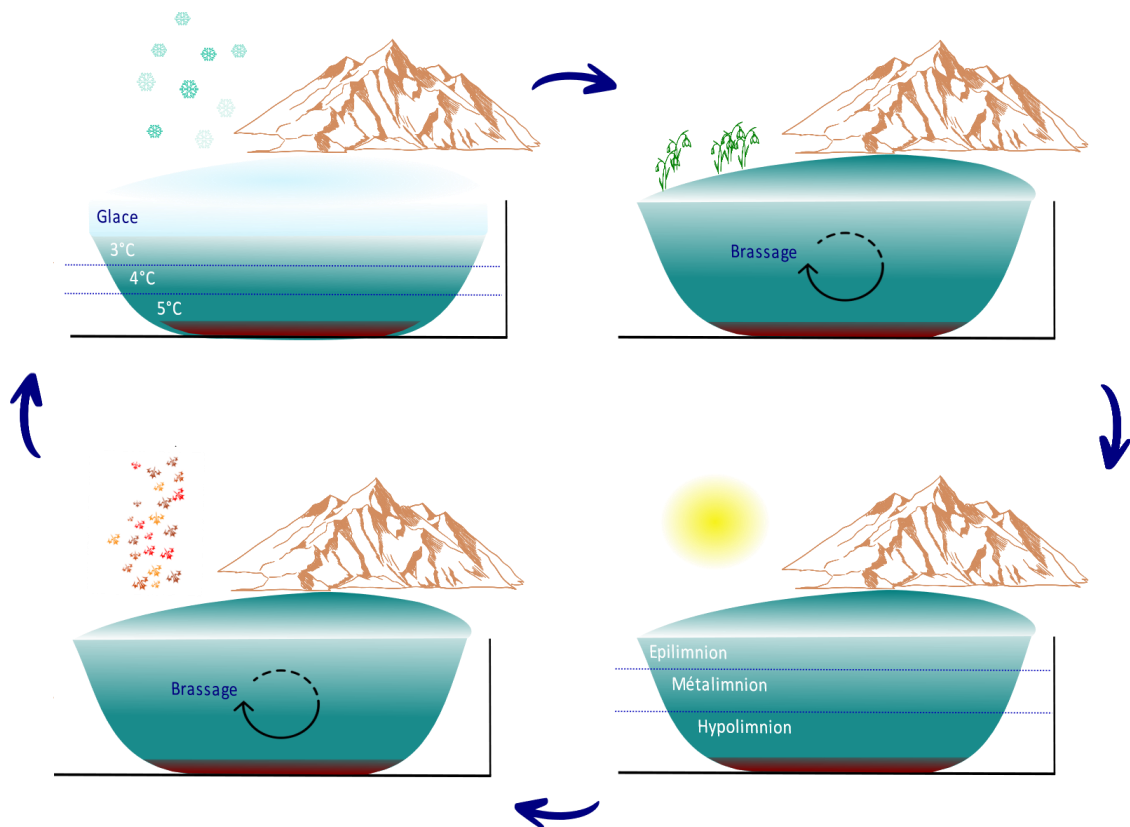


Figure 15 Représentation des cycles saisonniers d'un lac dimictique comme le lac Merlet supérieur

### Qualité des eaux et activités humaines

Les usages à proximité du lac Merlet supérieur sont le pastoralisme, la pêche « no kill » et à la mouche fouettée (*Article 6 de l'arrêté du 11 octobre 2017, n°2017-697*), la pratique de la randonnée, la baignade et les campagnes de suivi scientifique.

La carte de pêche journalière vendue à Courchevel autorise la pêche dans les six lacs d'altitude de la commune sans distinction. En 2020, 172 cartes ont été vendues, 190 en 2021 et 150 en 2022.

Le refuge des lacs Merlet est situé à 600 mètres, le nombre de nuitées au refuge (de fin juin à septembre) était de 459 en 2020, 334 en 2021 et 473 en 2022.

La station de ski de Courchevel est hors du bassin versant du lac mais le village de Courchevel est localisé à environ 7 km au nord. Les remontées mécaniques les plus proches se trouvent au niveau des cols de Chanrossa et de la Platta à environ 1,5 kilomètres au nord des lacs Merlet.



## Protocoles

Différents compartiments de l'écosystème lacustre ont été étudiés : l'eau en surface, la colonne d'eau et les sédiments. Les MP sont quantifiées dans les retombées atmosphériques, les affluents, les rejets d'eaux usées épurées et les eaux de ruissellement. L'échantillonnage des exutoires et des matières solides décantées dans la colonne d'eau permet de déterminer, respectivement, les flux de MP transférés aux sédiments et les temps de séjour des MP dans l'écosystème lacustre.

## *Méthodes de prélèvement*

### Échantillonnage des eaux de surface et de colonne

Parmi les études, trois méthodes sont utilisées pour l'échantillonnage des eaux de surface des lacs. Le filet, la pompe et l'échantillonneur de type bocal, bidon ou bouteille Niskin. La méthode la plus commune est celle du filet (mailles de 300  $\mu\text{m}$ , 333  $\mu\text{m}$  ou 355  $\mu\text{m}$ ) (Razeghi et al., 2021). Selon une étude de 2018, environ 80 % des études ne comptabilisent pas les particules  $\leq 300$   $\mu\text{m}$  de diamètre (Conkle et al., 2018). Pourtant, il est fréquemment constaté une prédominance de MP inférieurs à cette dimension. L'utilisation de filet de maille  $\leq 300$   $\mu\text{m}$  pourrait améliorer l'estimation du nombre de particules présentes dans l'environnement étudié. Depuis 2017, de plus en plus d'études considèrent ces « petits » MP notamment dans l'étude de la contamination de l'eau de surface :  $\geq 20$   $\mu\text{m}$  (Kaliszewicz et al., 2020), 20  $\mu\text{m}$  (Bharath K et al., 2021), 38  $\mu\text{m}$  (Alfonso et al., 2020b), 45  $\mu\text{m}$  (Jiang et al., 2018), 47  $\mu\text{m}$  (Alfonso et al., 2020a) et 50  $\mu\text{m}$  (Pastorino et al., 2020; Wang et al., 2017; Xia et al., 2020a; Yuan et al., 2019) et 60  $\mu\text{m}$  (Bertoldi, 2020), 100  $\mu\text{m}$  (Bordós et al., 2019), 106  $\mu\text{m}$  (Cable et al., 2017), 112  $\mu\text{m}$  (Xiong et al., 2018), 125  $\mu\text{m}$  (Grbić et al., 2020) et 150  $\mu\text{m}$  (Migwi et al., 2020).

Dans ces travaux de thèse, les eaux de surface sont échantillonnées à l'aide d'un système particulier appelé le « Dronamaran ». Ce système est constitué d'un filet spécifique et est présenté plus en détail dans une section ultérieure : Développement des protocoles d'échantillonnage.

Les eaux de surface (~ 30 premiers centimètres) du lac du Bourget sont échantillonnées à différents sites stratégiques (Figure 16) : à environ 500 m de l'embouchure de la Leysse en vue de quantifier les apports d'un affluent drainant une zone très fortement urbanisée (soumis à des rejets d'eaux pluviales et d'eaux usées lors du by-pass d'usine d'épuration) (1), à environ 300 mètres de la plage municipale d'Aix-les-Bains, en raison de la localisation de la trappe séquentielle à sédiments imposée par la DDT (arrêté préfectoral n°DDT/SEEF n°2020-1198 du 19/11/20) immergée à -50 mètres sous la surface (2), à la verticale du point le plus profond du lac (3) et à environ 500 mètres de l'exutoire du lac (Canal de Savières) (4). Ces deux derniers points se justifient, respectivement, par la localisation historique du suivi de la qualité du lac réalisé par l'INRAE (Institut national de recherche pour l'agriculture, l'alimentation et l'environnement) de Thonon-les-Bains pour le compte du CISALB (3), et par l'évaluation des flux de MP sortant du lac (4).



Figure 16 Zones d'échantillonnage de l'eau de surface et colonne d'eau du lac du Bourget

Peu d'études existent sur la distribution des MP au sein de la colonne d'eau des lacs. Seuls trois lacs, Michigan (États-Unis), Tollense (Allemagne) et Supérieur (Canada/États-Unis) ont fait l'objet de travaux sur cette matrice environnementale. À travers ces études la colonne d'eau a été échantillonnée par des systèmes de pompe (lacs Tollense et Supérieur, filtres 63  $\mu\text{m}$  et 100  $\mu\text{m}$  - 300  $\mu\text{m}$ , respectivement) ou des filets tirés à l'horizontal (lac Tollense, maille 333  $\mu\text{m}$ ). Dans le cadre de cette thèse, la colonne d'eau est étudiée au niveau du point le plus profond du lac (3) et au droit de la trappe à sédiments séquentielle (2).

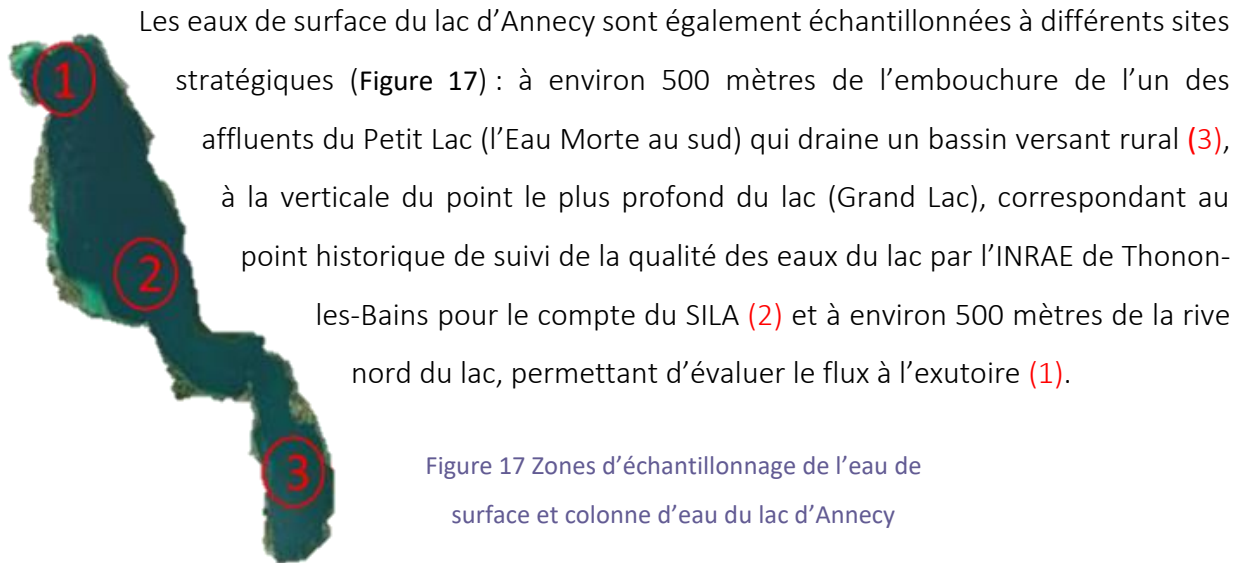


Figure 17 Zones d'échantillonnage de l'eau de surface et colonne d'eau du lac d'Annecy

Enfin, les eaux de surface du lac Merlet Supérieur sont échantillonnées sur toute la surface du lac. La colonne d'eau n'est pas échantillonnée pour des raisons techniques (accès au lac uniquement à pied rendant impossible l'apport d'une embarcation permettant le prélèvement de la colonne d'eau).

### Échantillonnage des sédiments

La méthode la plus utilisée afin de prélever les sédiments des écosystèmes d'eau douce est la benne Van Veen (Razeghi et al., 2021). Les sédiments sont échantillonnés différemment selon les sites étudiés : avec une benne Van Veen depuis l'embarcation (lac du Bourget), par prélèvement manuel sous-lacustre en bocal verre par un plongeur (lacs d'Annecy et du Merlet Supérieur) ou encore par l'utilisation de trappes (séquentielle au lac du Bourget et collecteur intégratif au lac Merlet Supérieur).

Pour le lac du Bourget, des sédiments ont été échantillonnés en différents points (Figure 18) : à environ 500 mètres de l'embouchure de la Leysse en vue de quantifier les apports d'un affluent drainant une zone urbanisée (1), à environ 300 mètres de la Plage du Lido (2) et sur la côte sauvage à l'Ouest du point le plus profond du lac (3), théoriquement éloignée de toute source anthropique directe, afin de déterminer les variations de contamination aux MP entre sites urbanisés et ruraux.

Figure 18 Zones d'échantillonnage de sédiments du lac du Bourget



Concernant le lac d'Annecy, plusieurs échantillons collectés lors d'une étude précédente ont été analysés. Il s'agit des trois sites littoraux suivants (Figure 19) : plage de Doussard au sud du



lac, correspondant à l'embouchure de deux affluents (l'Eau Morte et l'Ire) traversant respectivement la vallée rurale de Faverges et le nord-est (non urbanisé) du massif des Bauges (3), à la Puya (nord-ouest du lac) correspondant à une zone sous apport d'eaux de ruissellement d'une voie routière très fréquentée (D1508) (2), au petit port d'Annecy (nord-est du lac), recevant les eaux pluviales d'environ 50 % des surfaces imperméabilisées de la commune d'Annecy-le-Vieux (1).

Figure 19 Zones d'échantillonnage de sédiments du lac d'Annecy

Pour le lac Merlet, des sédiments ont également été prélevés par des plongeurs professionnels en différentes zones afin d'avoir une représentation de la contamination aux MP à l'échelle du lac (Figure 20). Les points (2), (3), à -14 mètres et -5 mètres respectivement, sont proches de la côte sud-est du lac qui représente l'unique zone de pâturage et accessible aux randonneurs et pêcheurs. Le point (4), à -11 mètres, est situé sous la Crête de Chanrossa et donc isolé de potentielles sources anthropiques directes. Le point (1), à -18 mètres, est proche de l'exutoire déversant au lac Merlet inférieur.



Figure 20 Zones d'échantillonnage de sédiments du lac Merlet supérieur

Les flux des particules sédimentant dans la colonne d'eau jusqu'au fond du lac sont évalués par échantillonnage à l'aide de trappes à sédiments. Pour le lac du Bourget, une trappe à collecte séquentielle (surface de 0,5 m<sup>2</sup>) (Figure 21) avec un plateau motorisé permettant

d'échantillonner 12 flacons a été installée à -51,4 mètres sur le site de la plage d'Aix (2). Elle a été immergée pour une première période de janvier à juillet 2021, puis pour une seconde durée de six mois également de novembre 2021 à mai 2022. L'objectif étant de quantifier les particules sédimentées par période de 2 semaines. Les périodes d'échantillonnage permettent de couvrir plusieurs saisons, d'évaluer la variabilité inter- et intra-annuelle des flux sédimentés et déterminer le devenir des MP dans l'environnement lacustre. Sur les 14 échantillons collectés et traités de la trappe à sédiments, deux échantillons ont été groupés afin d'atteindre une masse totale d'environ 10 g (22/03/2021-19/04/2021 et 19/04/2021-17/05/2021). En effet, le traitement a été réalisé pour chaque échantillon sur une masse de 10 g (ps). La totalité des échantillons n'a pas pu être prise en compte par souci technique. Par conséquent, les échantillons couvrent trois périodes : du 25/01/2021 au 08/03/2021, du 22/03/2021 au 12/07/2021 et du 06/12/2021 au 31/01/2022.



Figure 21 Trappe à sédiments séquentielle installée au lac du Bourget

Concernant le lac Merlet Supérieur, un collecteur intégratif (dimensions du cône collecteur diamètre 30 cm x hauteur 30 cm) réalisé au laboratoire par Philippe Fanget (Figure 22) a été immergé en juillet 2020 à environ -4 mètres. Les particules sédimentées sont collectées dans un flacon en aluminium de 1L. Ce collecteur a été récupéré en juillet 2021 par un plongeur professionnel. Malheureusement, le cône métallique situé au-dessus du flacon récoltant l'échantillon a été arraché par la ligne d'un pêcheur. La date de cet événement et donc la période échantillonnée sont inconnues. Dans le cadre de ces travaux de thèse, l'échantillon ne



permettra pas un calcul rigoureux de flux. Le collecteur a été réimmergé pour une seconde période (juillet 2021 - juillet 2022) mais la surface de collecte étant trop faible les estimations de flux ont révélé des incertitudes importantes qui n'ont pas permis de les prendre en compte ces travaux.



Figure 22 Collecteur intégratif des particules sédimentant installé au lac Merlet supérieur

### Échantillonnages des retombées atmosphériques

Les retombées atmosphériques sont échantillonnées en continu grâce à des jauges Owen (surface de 0,483 m<sup>2</sup>, hauteur sur pieds de 1 mètre) (Figure 23) disposées à partir de l'automne 2020 au Bourget-du-Lac (lac du Bourget), au Veyrier-du-Lac (lac d'Annecy) ainsi qu'aux abords du lac Merlet Supérieur. Les MP de dimensions supérieures ou égales à 50 µm sont collectés dans un filet (en forme de chaussette) fixé sous le collecteur.



Figure 23 Collecteur de retombées atmosphériques installée au lac Merlet supérieur

Les filets ont été changés approximativement toutes les deux semaines au Bourget-du-Lac, tous les deux mois au Veyrier-du-Lac, à la fin de l'hiver (après période de dégel) et de l'été (avant période hivernale suivante) au lac Merlet Supérieur afin de prendre en considération la saisonnalité et les conditions météorologiques. Au lac Merlet Supérieur, le filet de la jauge Owen installée en Septembre 2020 a été retrouvé déchirée lors de la récupération de l'échantillon en juillet 2021. Les pieds de la jauge avaient également plié sous le poids de la neige, rendant le calcul de flux impossible compte-tenu de l'incertitude sur la surface de collecte. La jauge a été vandalisée au cours du même été. Deux jauges ont été mises en place à l'identique (et à proximité) à l'automne 2021 et ont été relevées durant l'été 2022.

#### *Étude méthodologique*

Une table atmosphérique a été mise en place sur la rive sud du lac du Bourget dans un espace naturel géré par le Conservatoire d'espaces naturels (CEN) de Savoie. Ce dispositif (Figure 24) est constitué d'un pluviomètre à auget basculant (0,2 mm/basculement) (référence ARG100, Campbell Scientific®), un moniteur de vent pour mesurer la vitesse et la direction (référence 05103, Campbell Scientific®) et de 4 jauges Owen avec différentes fréquences d'échantillonnage (deux semaines vs deux mois). Les données sont enregistrées toutes les 15 minutes (précipitations, vitesse du vent, direction du vent, température de l'air, humidité, temps de fermeture de la jauge). L'objectif est de comprendre si la fréquence d'échantillonnage influence la quantité de MP récupérée. En effet, une fréquence de 2 mois pourrait, dans le cas d'épisode de sécheresse, remobiliser des MP déposés sur les parois des jauges. Alors qu'un prélèvement sur une fréquence de 2 semaines pourrait réduire ce phénomène potentiel de remobilisation des MP dans l'atmosphère. De plus, afin de comparer les retombées atmosphériques sèches et humides, deux jauges supplémentaires permettent de distinguer les précipitations humides et sèches. En effet, une plaque coulissante se déplace à la surface de ces deux jauges selon les conditions météorologiques (pluie ou temps sec). Cette spécificité a pour but d'estimer la part des précipitations humides et sèches dans la contamination aux MP via les dépôts atmosphériques.



Figure 24 Table atmosphérique installée sur la rive sud du lac du Bourget

### Échantillonnages des affluents, exutoires, eaux résiduaires urbaines et eaux pluviales

Les différents affluents présentés précédemment sont étudiés dans le cadre de ces travaux afin d'estimer les apports en MP au lac via ces vecteurs potentiels. Les échantillonnages sont réalisés à l'aide d'un filet en PA de maille 50  $\mu\text{m}$  couplé à un micromoulinet pour la mesure du volume filtré. La Leysse, affluent majoritaire du lac du Bourget, traverse la zone urbanisée de l'agglomération de Grand Chambéry et peut recevoir exceptionnellement (au niveau du Pont des Chèvres à Chambéry) des eaux usées de by-pass de la station d'épuration en période de forte pluviométrie. L'Eau Morte, affluent principal du lac d'Annecy apportant 34 % des eaux de surface (Dubosson, 2016), traverse une zone rurale. Ces deux affluents sont échantillonnés en période sèche et en période de fortes précipitations. Ils permettront d'identifier indépendamment les flux de MP des sources rurales, de celles des zones fortement urbanisées. De plus, les affluents secondaires que sont le Sierroz et le Tillet pour lac du Bourget ainsi que l'Ire et le Laudon pour le lac d'Annecy sont également échantillonnés.

Afin d'identifier les apports liés aux ruissellements sur sols imperméabilisés (apports routiers et urbains), les eaux pluviales sont échantillonnées dans le collecteur des eaux pluviales de la commune d'Annecy-le-Vieux au nord-est du lac d'Annecy.



Afin de déterminer la part des apports de MP via les rejets de station d'épuration des eaux usées, plusieurs échantillonnages (mars 2021) ont été réalisés dans la Leysse en aval du rejet des eaux usées traitées au Bourget-du-Lac lors de la fermeture de la galerie amenant les eaux usées traitées des stations de Chambéry, Aix-les-Bains et le Bourget-du-Lac au Rhône. En effet, cette galerie est fermée durant une semaine une fois tous les deux ans pour inspection et travaux éventuels de réfection. Lors de cette période, un volume de 408 633,73 m<sup>3</sup> d'eaux usées épurées a été rejeté à la Leysse sur les 9 jours de fermeture de la galerie. Cet apport à la Leysse pourrait être riche en MP et potentiellement atteindre l'embouchure au lac. Des eaux usées épurées de ces trois stations ont été également échantillonnées en sortie de la galerie au Rhône en mars 2021, novembre et décembre 2022.

Les exutoires respectifs des lacs du Bourget, d'Annecy et du Merlet supérieur (Canal de Savières, Thiou et ruisseau de la Rosière) ont également été échantillonnés.

## Synthèse des sites de prélèvements

Les différents points de prélèvements sont répertoriés dans le Tableau 5 et la Figure 25 pour les lacs du Bourget, d'Annecy et du Merlet supérieur.










		BOURGET	ANNECY	MERLET SUPÉRIEUR
État des lieux de la contamination aux MP	Surface 	Embouchures Canal de Savières et Leysse ; Point de référence ; Plage Aix	Embouchures Thiou et Eau Morte ; Point de référence	Toute la surface
	Colonne 	Point de référence ; Plage Aix	Point de référence	
Sources et vecteurs de MP	Affluents 	Leysse ; Sierroz ; Tillet	Laudon ; Eau Morte ; Ire	
	Retombées Atmosphériques 	Campus et Sud lac (Bourget-du-Lac)	Veyrier-du-Lac	Hauteurs Sud-Est
	Eaux de ruissellement 		Annecy-le-Vieux	
	Eaux usées 	Leysse ; rejet au Rhône		
Puits et sorties de MP	Sédiments 	Aix-les-Bains ; Côte sauvage ; Embouchure Leysse ; Lido	Puya ; Doussard ; Albigny	Zones Nord et Sud-Est
	Exutoires 	Nord canal de Savières	Nord Thiou	
	Émissaires 			Ruisseau de la Rosière

Tableau 5 Récapitulatif des différentes sources de MP au lac et sorties de MP au lac en relation avec les différents points d'échantillonnage

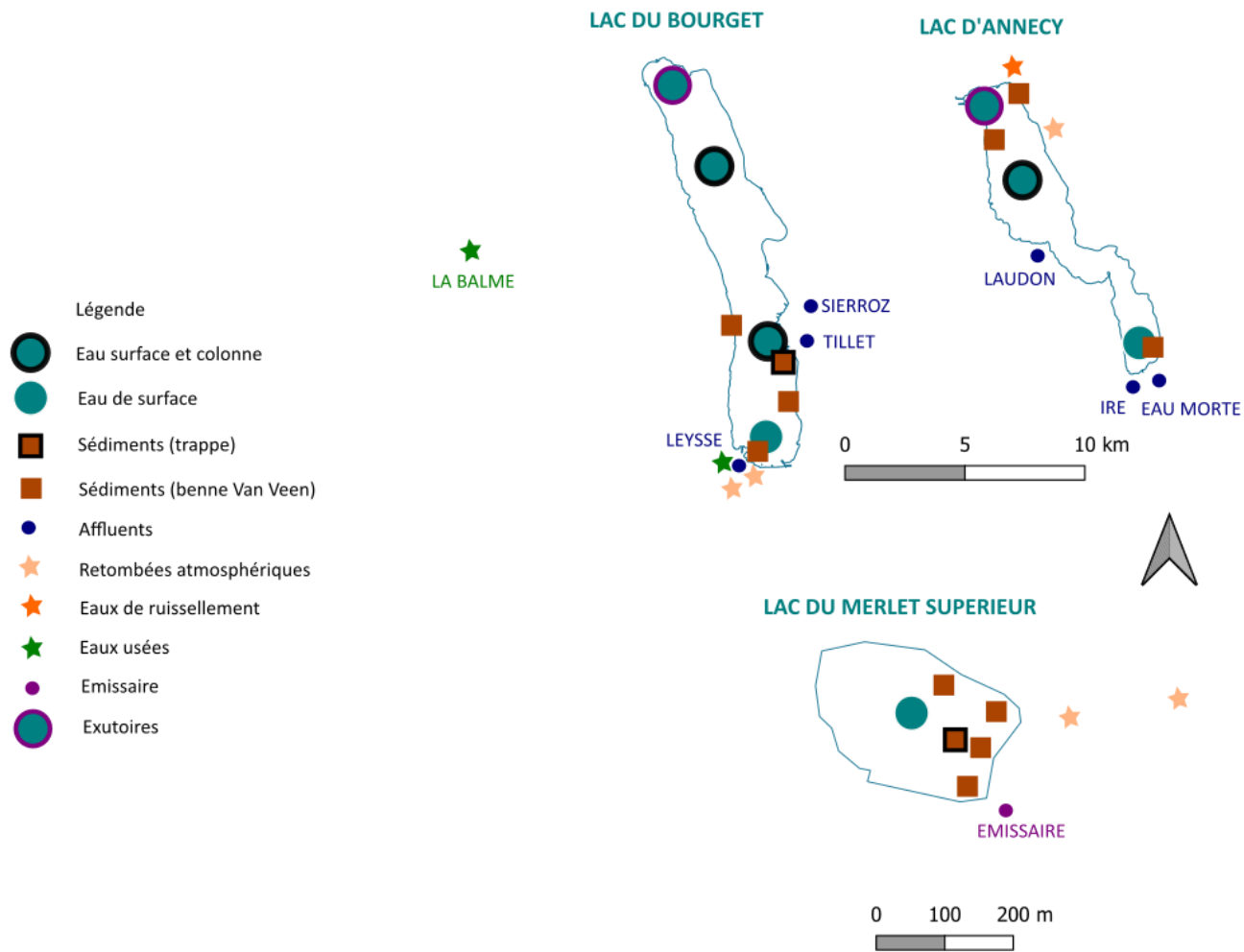


Figure 25 Représentation des zones d'échantillonnages sur les trois sites d'étude

## Développement des protocoles d'échantillonnage

### Eau de surface

Initialement, les eaux de surface des lacs du Bourget et d'Annecy étaient échantillonnées à l'aide d'un filet en polyamide d'une maille de 50  $\mu\text{m}$  disposé sur un cadre métallique (largeur : 69 cm) et entouré de deux flotteurs (Figure 26). Un micromoulinet permettait une mesure précise et continue de la vitesse d'écoulement dans le filet. La hauteur d'eau dans la « bouche du filet » était mesurée manuellement à l'aide d'un régle gradué en début, milieu et fin d'échantillonnage. Ces trois types de mesure permettaient de calculer le volume d'eau filtrée. Le dispositif filtrant était tracté sur une distance d'environ 1 km, correspondant à un temps compris entre 20 et 30 minutes. Ceci permettait de filtrer  $\sim 100 \text{ m}^3$  d'eau sur une épaisseur de 20 à 30 cm sous la surface. La vitesse de l'embarcation était maintenue constante entre 0,3 et 0,8 m/s tout au long de l'échantillonnage.

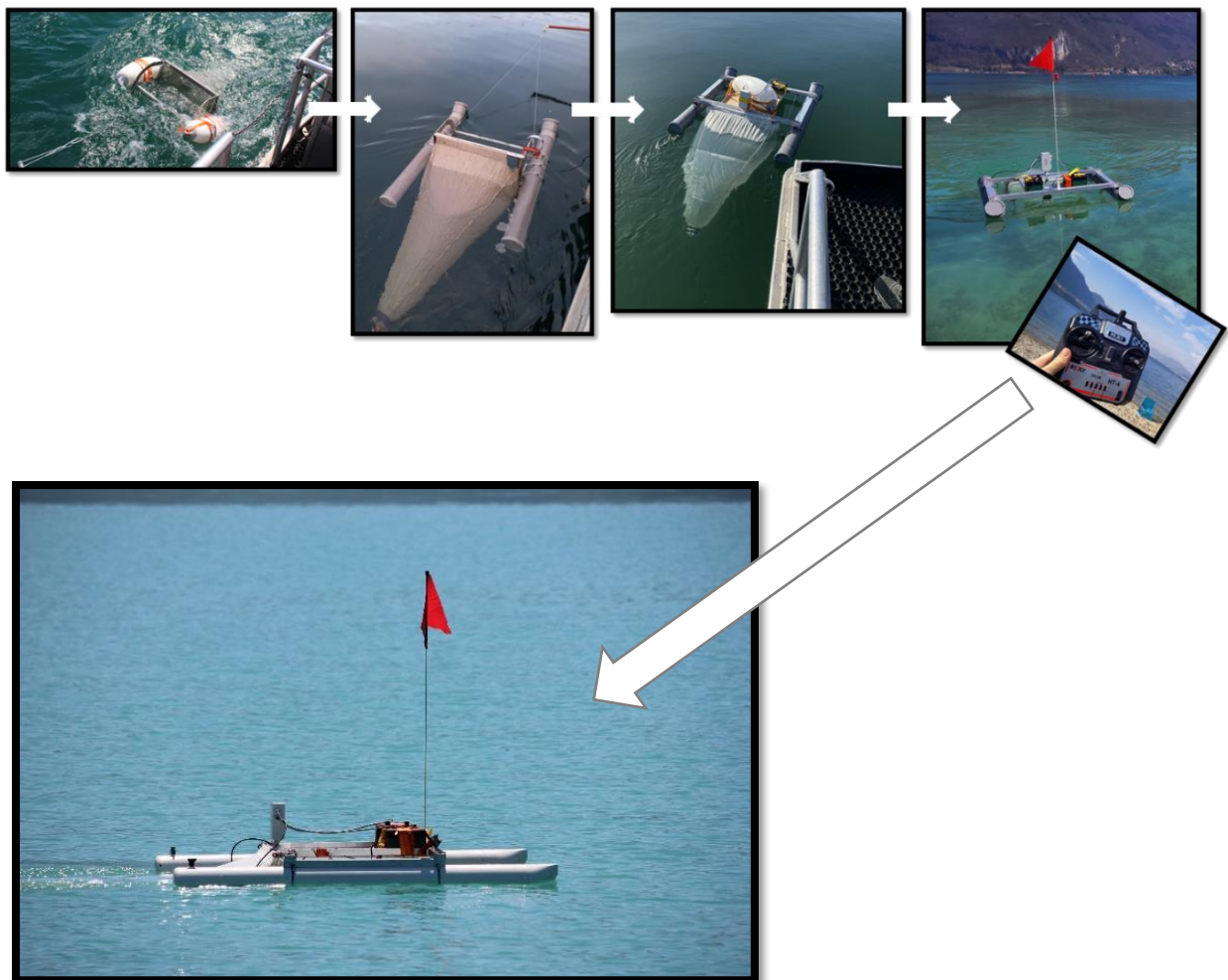


Figure 26 Évolution du système d'échantillonnage de la surface de l'eau

Le système d'échantillonnage de l'eau de surface (0 cm - 30 cm) a été largement optimisé au cours de ces travaux de thèse. En effet, le premier système était tracté à vitesse constante par une embarcation motorisée (bateaux du CISALB et SILA). Cependant, un risque important de contamination provenant de l'embarcation et des utilisateurs, l'impact des vagues d'étrave et de poupe sur le flux entrant dans la bouche du filet nuisaient à la représentativité de l'échantillon.

Un système baptisé « Dronamaran » (Figure 27 ; Figure 28) a donc été développé et réalisé au laboratoire par Philippe Fanget. Le Dronamaran permet d'échantillonner les MP ayant une taille supérieure ou égale à 50  $\mu\text{m}$  grâce à un filet en polyamide installé sur un dispositif radiocommandé depuis le bord ou depuis une embarcation à l'arrêt. En complément, un datalogger, développé par la Haute École du Paysage, d'Ingénierie et d'Architecture de Genève et le Laboratoire Énergie Environnement et Architecture (HEPIA / LEEA), permet d'obtenir le tracé GPS, la durée d'échantillonnage et la lame d'eau échantillonnée (mesurée par une sonde à ultrasons) enregistrées en continu (fréquence d'acquisition 1 Hz).

La vitesse d'écoulement dans le filet est mesurée à l'aide d'un micromoulinet (A. OTT, Kempton, n°31733, hélice 3). Cette réalisation technique permet la mesure précise des volumes filtrés et un suivi en temps réel du colmatage du filet (par augmentation de la lame d'eau à l'entrée du filet) évitant le biais d'échantillonnage avec le dispositif précédemment utilisé.

Une fois l'échantillonnage terminé, l'extérieur du filet est rincé avec l'eau du lac (à l'aide d'une pompe immergée) afin d'entraîner toutes les particules présentes dans le filet dans un dispositif récepteur. L'échantillon est alors transféré directement dans un bocal en verre préalablement calciné par passage au four à 525°C (pour éviter tout risque de contamination de l'échantillon). Les échantillons sont ensuite stockés au laboratoire à -20 °C en attente d'analyse.

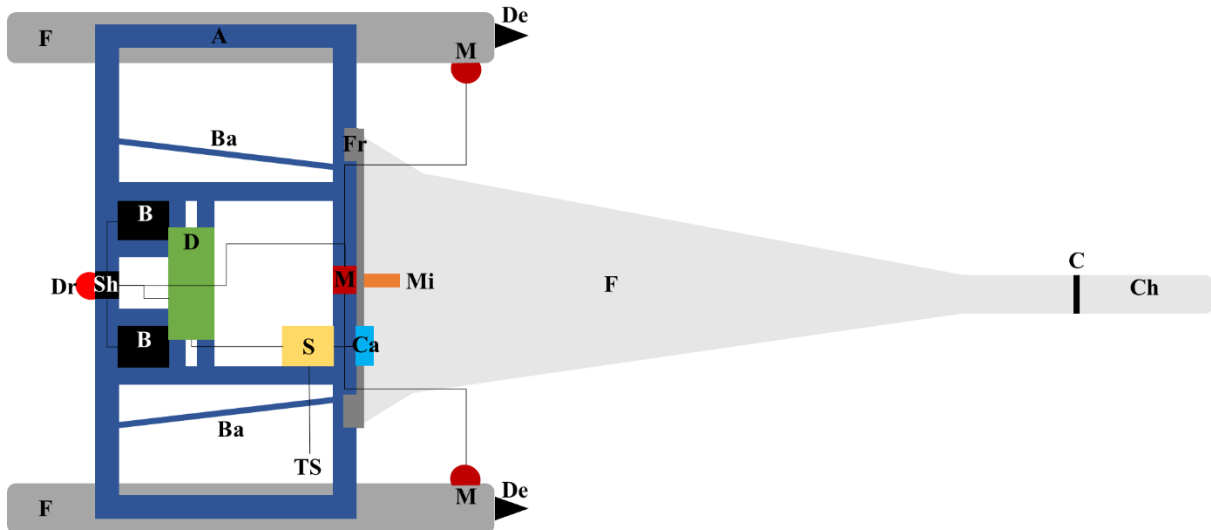


Figure 27 Schéma détaillé du Dronamaran (vue en plan). Flotteurs en PVC ; A armature métallique ; M moteur actionnant les hélices ; De dérive ; Dr drapeau avertissant les usagers du lac ; Sh shunt ; B batteries ; D data logger ; Ba barres maintenant le fond du filet ; Mi micromoulinet ; F filet en polyamide 50  $\mu$ m ; C collier de serrage de la chaussette 50  $\mu$ m (mini-filet) ; Ch chaussette 50  $\mu$ m collectant l'échantillon ; S sonde ; Ca capteur de température de l'eau ; lignes noires correspondent aux connexions électriques entre les éléments. L'avant du système est à gauche. Dimensions du filet : hauteur 35 cm, longueur 1,6 m et largeur 70 cm

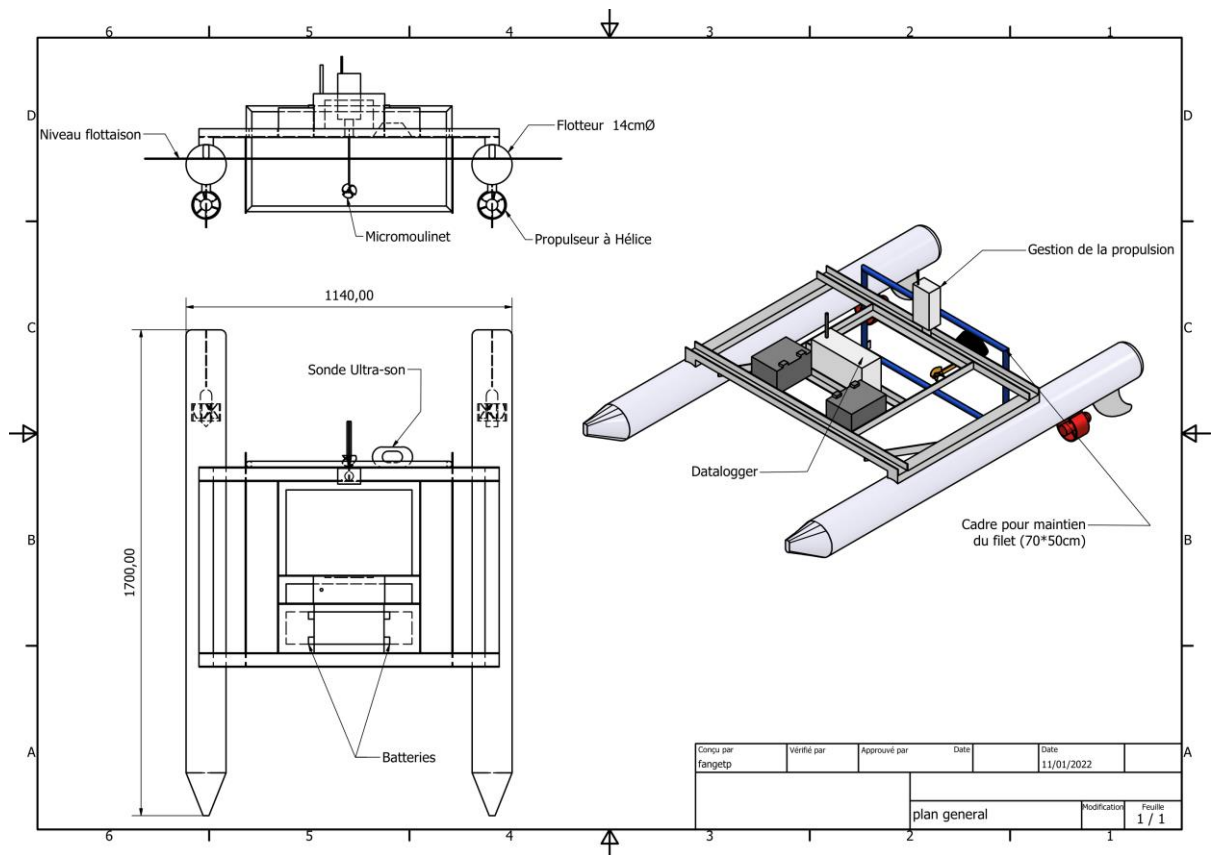


Figure 28 Plan technique du Dronamaran (réalisation : Philippe Fanget, EDYTEM)

Au début des travaux, il a été choisi de filtrer des grands volumes d'eau ( $\sim 100 \text{ m}^3$ ) afin d'assurer la représentativité des échantillons. Les résultats préliminaires montrant des très faibles concentrations, les concentrations en MP des échantillons de surface des trois sites et les volumes filtrés ont été comparés. Les résultats ont révélé que l'augmentation du volume d'eau filtré est liée à la faible concentration en MP dans l'échantillon. En effet, au-delà de  $50 \text{ m}^3$  d'eau filtrée, une tendance peut être observée (Figure 29). Ainsi dans le cadre de ces travaux il a été choisi de considérer uniquement les échantillons d'eau de surface dont le volume est  $\leq 50 \text{ m}^3$ .

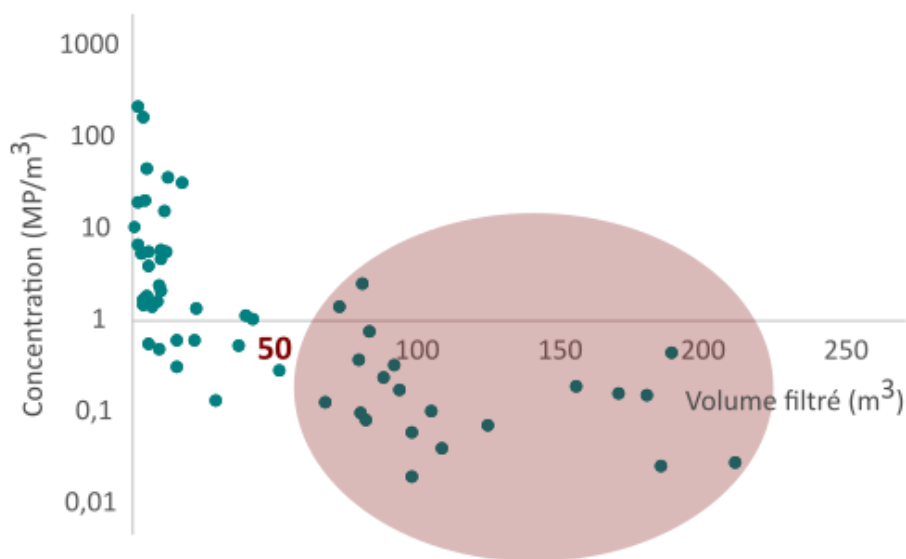


Figure 29 Représentation des concentrations en  $\text{MP/m}^3$  d'échantillons de surface des trois sites d'étude en fonction des volumes d'eau filtrée ( $\text{m}^3$ )

L'hypothèse première était que la pression exercée par un grand volume d'eau sur les parois du filet pouvait engendrer un élargissement des mailles et donc une perte des « petits » MP ( $50 \mu\text{m} - 300 \mu\text{m}$ ). Cependant, la comparaison de l'abondance des MP de tailles inférieures à  $300 \mu\text{m}$  avec les volumes filtrés d'eau n'a pas confirmé cette hypothèse (Figure 30). La seconde hypothèse était qu'un grand volume d'eau filtré engendre un colmatage du filet à partir d'un certain volume seuil. Ce colmatage entraînerait ensuite un relargage de MP par la bouche du filet. Ce phénomène a effectivement pu être observé sur le terrain.

Une vérification a été réalisée *a posteriori* sur les échantillons prélevés, en examinant les mesures continues de la hauteur d'eau et de la vitesse d'écoulement. Lorsque le filet de prélèvement se colmate, la hauteur d'eau se stabilise, alors qu'elle augmente progressivement

avant le colmatage. Ce phénomène de colmatage survient généralement autour de volumes filtrés compris entre 60 et 80 m<sup>3</sup>, mais peut se produire plus tôt si l'eau est chargée, par exemple en temps de pluie ou lors de blooms printaniers. Cela explique pourquoi certains prélèvements peuvent avoir un volume inférieur à 50 m<sup>3</sup>.

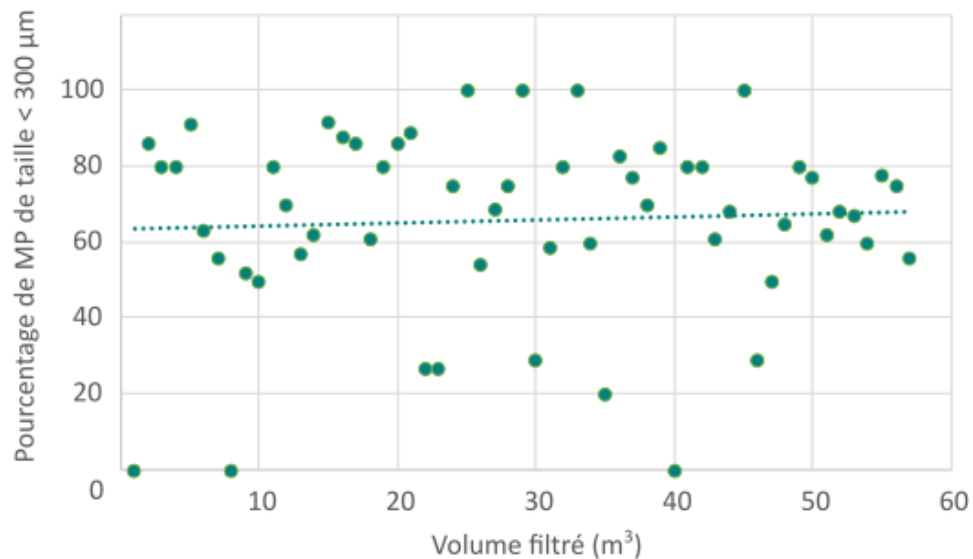


Figure 30 Tailles minimales des MP à travers des échantillonnages de surface, réalisés au Dronamaran, en fonction du volume d'eau filtré

Les eaux de surface du lac Merlet Supérieur étaient initialement échantillonnées à l'aide d'un système développé par l'association Aqualti (Figure 31) (Gillet et al., 2020). Deux kayaks gonflables, propulsés par un moteur électrique à vitesse constante réglable, reliés par un pontet en aluminium soutenant un filet en polyamide de 50 µm de maillage (dimensions de la bouche : largeur 69 cm x hauteur 43 cm). Un enregistreur de données, identique à celui du Dronamaran, installé sur le pontet permettait d'enregistrer à une fréquence de 1 Hz les coordonnées GPS, la vitesse de l'embarcation (m/s), la hauteur d'eau dans la bouche du filet (mm) ainsi que la vitesse d'écoulement d'eau dans le filet (m/s). Compte-tenu du poids du dispositif et des conditions peu sécurisées d'utilisation de ce dispositif, les échantillons du lac Merlet supérieur ont ensuite été réalisés à l'aide du Dronamaran, facilement transportable et permettant un travail en sécurité depuis la berge.





Figure 31 Le Mantamaran : système d'échantillonnage initial du lac Merlet supérieur

### Colonne d'eau

La colonne d'eau est échantillonnée grâce à un système réalisé en laboratoire composé d'un filet en polyamide d'une maille de 50  $\mu\text{m}$  disposé sur un cadre métallique circulaire (diamètre 80 cm) (Figure 32 ; Figure 33). Un mécanisme spécifique permet d'ouvrir et fermer la bouche du filet à la profondeur souhaitée. Les colonnes d'eau des lacs subalpins sont échantillonnées sur les mêmes sites d'échantillonnage des eaux de surface. La profondeur d'échantillonnage est variable selon la saison, soit l'épilimnion ou l'hypolimnion séparément en période de stratification des eaux, soit la totalité de la colonne d'eau en période de brassage du lac.

Le volume filtré dans la colonne d'eau est calculé en multipliant la surface du disque filtrant par la hauteur d'eau échantillonnée.



Figure 32 Dispositif utilisé dans le cadre des échantillonnages de la colonne d'eau

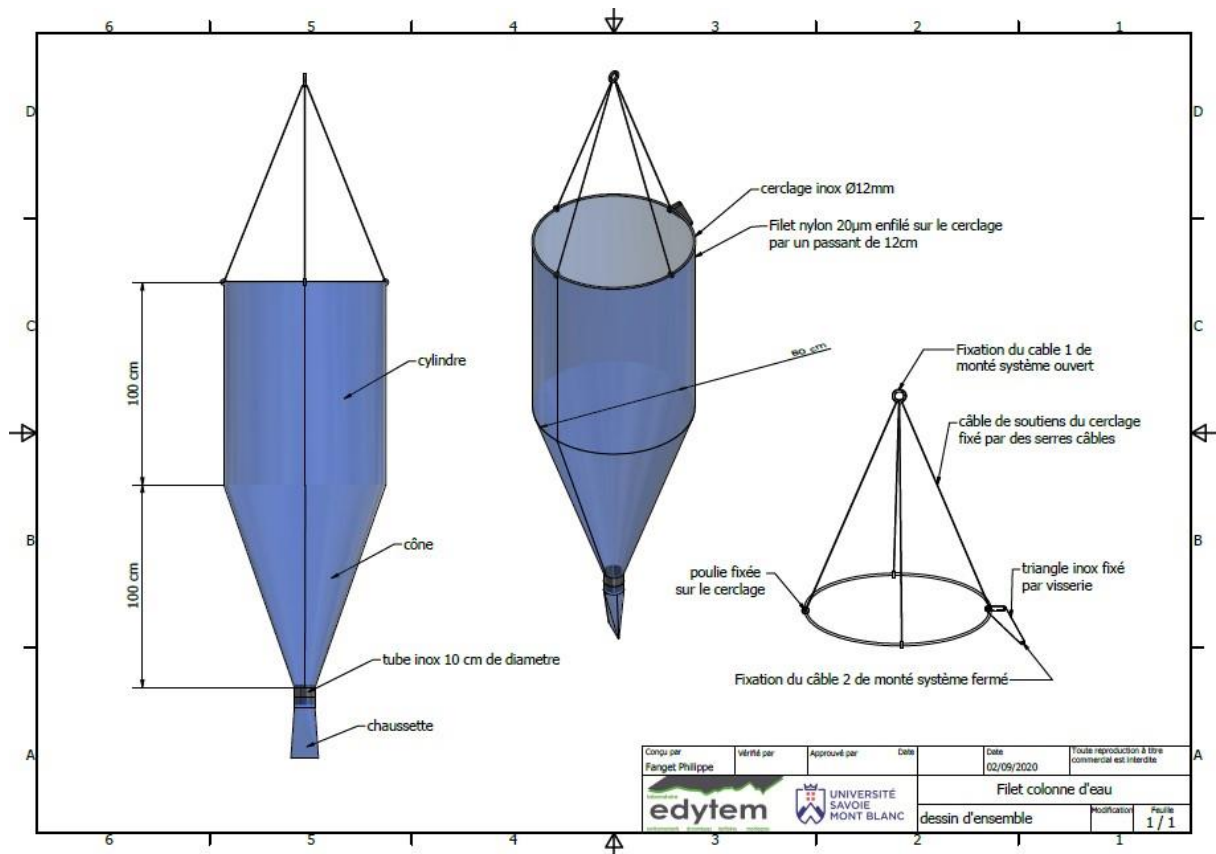


Figure 33 Plan technique du système de filet colonne (réalisation Philippe Fanget, laboratoire EDYTEM)

## Développement des protocoles de traitement des échantillons

L'identification et la quantification des MP sont réalisées par microscopie optique et spectrométrie IR (FT-IR Microscope PerkinElmer Spotlight 400 avec FT-IR Spectromètre PerkinElmer Spectrum 3). Un prétraitement de l'échantillon est toutefois indispensable lorsque la matrice est complexe. Ce prétraitement peut être réalisé via de multiples méthodes (Stock et al., 2019). Nous avons optimisé les étapes de prétraitement des échantillons à partir d'un protocole commun adapté aux différentes matrices environnementales. Ces étapes permettent d'isoler les MP du reste de la matrice environnementale. Cette séparation se réalise en deux étapes : une attaque oxydante et un tri densimétrique.

Selon le type de matrice environnementale, le site lacustre et la saison, les échantillons sont plus ou moins riches en matières organiques et minérales. La photo de deux échantillons d'eau de surface du lac Merlet supérieur prélevés au cours de l'été 2020 illustre la complexité de certaine matrice aqueuse, dans lesquelles les efflorescences algales augmentent considérablement la concentration en matière organique (Figure 34). Par conséquent, le

protocole développé doit être adapté aux échantillons et les étapes peuvent être répétées au besoin. Tous les rinçages réalisés dans ces étapes ont été réalisés avec de l'eau ultrapure (Maxima, USF Elga).



Figure 34 Échantillons d'eau de surface du lac Merlet Supérieur en période de bloom

### Élimination de la matière organique

Le prétraitement des échantillons lacustres s'avère complexe, comme celui des échantillons fluviaux (Campanale et al., 2020), en raison des composantes organiques, biologiques ou lithogènes présentes (microalgues, feuilles, matières minérales, pollen). La première étape consiste en une attaque oxydante permettant d'éliminer la matière organique. L'échantillon présent dans un petit filet est récupéré dans un récipient en verre (bocal de 3L) par rinçage à l'eau ultrapure (volume 1L) (Maxima, USF Elga). L'échantillon est tamisé à 1 mm (tamis inox, Saulas). Le refus de tamis est transféré dans une boîte de Petri mise à l'étuve à 45°C jusqu'à séchage complet. Ces potentiels MP supérieurs à 1 mm sont analysés au microscope ou spectromètre IR (selon leurs dimensions). Ces particules de plastique sont prises en compte dans les résultats de concentration en MP jusqu'à une taille maximale de 5 mm. Le filtrat de tamis est filtré sur un patch en polyamide de porosité 50 µm. L'entonnoir de filtration est abondamment rincé pour récupérer tous les MP potentiellement déposés sur les parois. Les particules retenues sur le patch sont ensuite transférées dans un récipient à l'aide d'un entonnoir, tous les deux en verre. L'échantillon est alors prêt pour l'étape suivante : l'attaque oxydante.

Les sédiments sont, eux, préalablement séchés à l'étuve (45°C) dans des récipients en verre. Une fois l'échantillon sec, il est broyé sous hotte et pesé (10 g, balance ML204, Mettler Toledo®) avant d'être transféré dans un récipient en verre pour l'attaque oxydante.

Les échantillons sont alors incubés dans une chambre climatique (Binder, APT. Line™ KMF 240) à 40°C en présence d'H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (35 % Acros Organics). Pour un échantillon de 30 mL, 10,4 mL de solution filtrée d'H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> 35 % sont ajoutés à l'échantillon pour obtenir une concentration finale de 10 % ce qui permet l'oxydation des matières organiques sans altération des MP (Munno et al., 2018). En fonction de l'échantillon (eau, sédiment) mais aussi de la saison d'échantillonnage, le protocole est adapté en répétant l'attaque oxydante si cela s'avère nécessaire pour éliminer l'intégralité de la matière organique. En s'attaquant à la partie organique des agrégats organo- minéraux, cette étape permet de redonner aux particules une densité proche de celle de leur fraction minérale. Ce dernier point est essentiel pour un tri densimétrique optimal, seconde étape du traitement.

### Élimination de la matière minérale

Afin de séparer efficacement les MP des matières minérales, l'étape de centrifugation est répétée trois fois dans des solutions denses de densité croissante. Pour ce faire, la suspension obtenue après l'attaque oxydante est filtrée sur polyamide à 50 µm de seuil de coupure. Le refus de filtration est alors mis en suspension par rinçage dans un tube à centrifuger en verre Pyrex. (1) Après une première centrifugation pendant 30 minutes à 1 800 rpm (Rotanta 460R, Hettich), le surnageant est récupéré dans un récipient en verre pour traitement ultérieur. Le culot de centrifugation est mis en suspension dans une solution de chlorure de zinc (ZnCl<sub>2</sub>).

Cette solution aqueuse de ZnCl<sub>2</sub> (pureté ≥ 97 %, Fisher Chemical) est préparée avec une densité comprise entre 1,5 et 1,6 (~ 30 mL). La densité de la solution de ZnCl<sub>2</sub> permet d'isoler dans le surnageant les polymères les plus courants, notamment le PS ( $\rho \sim 1,03-1,06 \text{ g/cm}^3$ ), le PP ( $\rho \sim 0,85-0,92 \text{ g/cm}^3$ ), le PEBD ( $\rho \sim 0,89-0,93 \text{ g/cm}^3$ ), le PEHD ( $\rho \sim 0,94-0,98 \text{ g/cm}^3$ ), PA (polyamide, nylon,  $\rho \sim 1,12-1,15 \text{ g/cm}^3$ ), PC (polycarbonate  $\rho \sim 1,20-1,22 \text{ g/cm}^3$ ), PUR ( $\rho \sim 1,20-1,26 \text{ g/cm}^3$ ), PET ( $\rho \sim 1,38-1,41 \text{ g/cm}^3$ ) et le PVC ( $\rho \sim 1,38-1,41 \text{ g/cm}^3$ ). Les matières minérales du sédiment ou les matières en suspension des échantillons de l'eau lacustre ayant des densités comprises entre ~ 1,7 (argile) et ~ 2,6 (silice).

Le culot de centrifugation de l'étape (1) est mis en suspension dans la solution de ZnCl<sub>2</sub> (~ 30 mL) à l'aide d'un bain à ultrasons (Branson® Ultrasonic Cleaner 200) et un vortex (Vornado™ Benchmark Scientific). La durée de vortex et de sonication dépend de la compacité du culot, entre 30 secondes et 3 minutes approximativement. (2) Une seconde centrifugation de 30

minutes est effectuée, le surnageant est récupéré et rassemblé dans le premier. Le culot est remis en suspension dans la solution de  $ZnCl_2$ . (3) Après une dernière centrifugation, la totalité des surnageants est filtrée à  $50\ \mu m$  sur un filtre en acier inoxydable.

Le filtre est observé afin de déterminer s'il est fortement concentré en particules auquel cas l'échantillon subit un fractionnement à l'aide d'une boîte Motoda (Motoda, Sigeru) (Figure 35). Ce dispositif permet à l'origine la séparation du plancton (Motoda, 1959). Il est utilisé dans ces travaux pour diviser  $n$  fois l'échantillon jusqu'à obtenir un sous-échantillon représentatif contenant  $1/2^n$  des particules totales de l'échantillon. Cette technique permet d'améliorer la visualisation et l'identification des MP sous microscopie IR. Elle a été utilisée récemment dans une étude sur la pollution MP de l'environnement marin (Ourgaud et al., 2022). Le refus de filtrat est remis en suspension dans la boîte Motoda avec  $\sim 300\ mL$  d'eau ultrapure. La boîte Motoda est un modèle en métal (30 cm de longueur, 12 cm de largeur, hauteur maximale en inclinaison de 7,5 cm) avec une séparation interne de 19 cm de longueur.



Figure 35 Boîte Motoda (réalisation Emmanuel Malet, laboratoire EDYTEM)

L'échantillon fractionné ou non est ensuite filtré sur silicium (SmartMembranes, surface  $1\ cm^2$  et diamètre des pores compris entre  $5\ \mu m$  et  $6\ \mu m$ ), préalablement nettoyés par sonication dans l'eau ultrapure et l'isopropanol. Le filtre est séché à  $45^\circ C$  dans une boîte de Pétri en verre pendant 24 heures. Le fractionnement de l'échantillon avec la boîte Motoda n'est pas parfait, chaque fractionnement entraîne une erreur de 8,5 % (Pont, 1983) qui va s'accumuler à chaque répétition (Fèvre-Lehoërff, 1985). De plus, il faut veiller à garder au final un nombre de particules au moins 10 fois supérieur à celui des blancs.

## Synthèse des échantillons réalisés

224 échantillons provenant de diverses matrices (surface, colonne, sédiments, affluents, retombées atmosphériques, ERU et eaux pluviales) ont été prélevés et soumis au traitement en laboratoire et à l'analyse IR (Tableau 6). Seuls 146 de ces échantillons ont été considérés dans les résultats présentés dans les chapitres 3 et 4.

Cette sélection est due à un grand nombre d'échantillons prélevés en début de thèse, dont les volumes étaient supérieurs à 50 m<sup>3</sup> et donc exclus des résultats, comme expliqué précédemment. Pour les échantillons de colonne d'eau, certains ont été écartés en raison de pertes survenues lors de l'étape de centrifugation. Comme ces échantillons n'ont pas été prélevés en répliques, toute perte est définitive. Pour les échantillons de sédiments, ceux des sites du Bourget et du Merlet comprennent à la fois des échantillons ponctuels et des échantillons de trappe. Des problèmes techniques, tels que des pannes de moteur, des échantillons incomplets ou un arrachage involontaire d'un pêcheur (site du Merlet), ont entraîné l'exclusion d'une partie des échantillons de trappe des résultats. Pour les affluents, plusieurs échantillonnages réalisés en début de thèse n'ont pas été inclus en raison de l'évolution de la méthodologie d'échantillonnage et de pertes d'échantillons en laboratoire (incidents de casse de tubes survenus au cours de la centrifugation). Les échantillons de retombées atmosphériques ont été sujets à des perturbations sur le terrain, telles que des actes de vandalisme, des avalanches et la dégradation du filet collecteur sur le site du Merlet probablement due à l'exposition au soleil et au gel et à l'action de rongeurs sur le site naturel (CEN) du Bourget. Ces perturbations ont engendré une possible diminution de la quantité de MP et ont ainsi conduit à l'exclusion des échantillons.

### ÉTAT DE LA CONTAMINATION DES LACS

	SURFACE			COLONNE		SÉDIMENTS		
	<i>Bourget</i>	<i>Annecy</i>	<i>Merlet</i>	<i>Bourget</i>	<i>Annecy</i>	<i>Bourget</i>	<i>Annecy</i>	<i>Merlet</i>
<b>Nombre total d'échantillons réalisés (n = 117)</b>	24	21	18	7	8	27	3	9
<b>Nombre total d'échantillons considérés dans l'étude (n = 67)</b>	11	8	10	6	6	15	3	8



	SOURCES ET VECTEURS DE LA POLLUTION MP						
	AFFLUENTS		RETOMBÉES ATMOSPHÉRIQUES			ERU	Eaux pluviales
	<i>Bourget</i>	<i>Annecy</i>	<i>Bourget</i>	<i>Annecy</i>	<i>Merlet</i>	<i>Bourget</i>	<i>Annecy</i>
<b>Nombre total d'échantillons réalisés (n = 107)</b>	26	23	32	7	7	9	3
<b>Nombre total d'échantillons considérés dans l'étude (n = 79)</b>	18	18	21	6	4	9	3

Tableau 6 Synthèse des échantillons réalisés et considérés dans ces travaux selon les sites et types de matrices environnementales

### Développement des protocoles d'analyse des échantillons

L'analyse des échantillons est réalisée par spectrométrie IR. Cette technique permet de mesurer l'absorption ou la transmission de la lumière IR à travers un échantillon. Le spectromètre IR utilise une source pour illuminer l'échantillon et un détecteur pour mesurer la quantité de lumière absorbée ou transmise par l'échantillon à différentes longueurs d'ondes.

Le fonctionnement de cet instrument est basé sur le fait que les molécules absorbent la lumière IR à des fréquences qui varient d'une molécule à l'autre. Ces fréquences sont liées aux vibrations (élongation ou déformation) des liaisons entre les atomes de la molécule. Les fréquences d'absorption de l'échantillon sont ensuite comparées à celles d'un échantillon de référence pour identifier les molécules présentes dans l'échantillon.

La méthode spectroscopique (microscope FTIR Perkin Elmer® Spotlight 400 avec spectromètre FTIR PerkinElmer® Spectrum 3) est utilisée pour quantifier et identifier les MP sur les filtres en silicium. Le logiciel utilisé pour analyser les échantillons (identification chimique, comptage) est Spectrum 10 IR PerkinElmer. Le système  $\mu$ -FTIR est réglé en mode réflectance, plage d'ondes de  $4\ 000\ \text{cm}^{-1}$  -  $650\ \text{cm}^{-1}$  pendant le processus de détection.

Dans un premier temps une image en visible de l'échantillon intégral ( $1\ \text{cm}^2$ ) est réalisée (Figure 36). Puis, l'analyse IR est effectuée sur toute la surface de filtration ( $8\ \text{mm}^2$ ). Ainsi, 100 % de la surface de chaque filtre en silicium, correspondant à un échantillon total, est analysée.

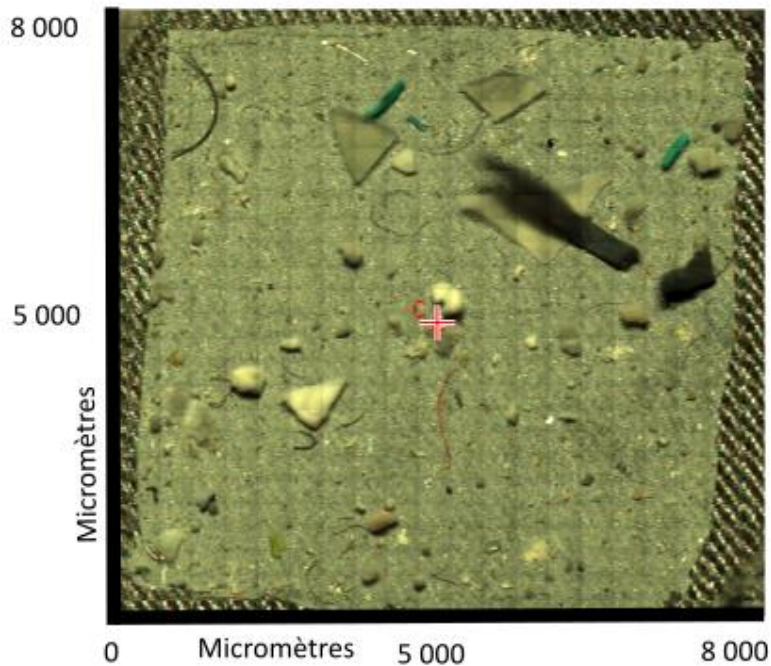


Figure 36 Exemple d'un échantillon d'eau de surface du lac du Bourget filtré sur filtre en silicium en image visible (surface de filtration 8 mm<sup>2</sup>, logiciel Spectrum 10 IR PerkinElmer)

Le fichier obtenu est exporté et traité sur le logiciel siMPle (Systematic Identification of Microplastics in the Environment). Ce logiciel, développé par Aalborg University (Danemark) et l'Institut Alfred Wegener (Allemagne), permet de détecter les MP grâce à un algorithme automatisé comparant les spectres IR de l'échantillon avec les spectres de référence de la base de données.

Afin de déterminer les polymères constitutifs des particules présentes sur les filtres en microscopie IR, il est nécessaire de comparer les spectres obtenus à une bibliothèque de spectres préétablie. La bibliothèque utilisée correspond à la dernière version (1.02, 21.07.2019) proposée par siMPle, complétée par nos soins. La réalisation de la bibliothèque est une étape indispensable afin d'analyser les échantillons qui présentent des polymères altérés. La base de données initiale contient des polymères plastiques ainsi que des matériaux naturels dont les spectres montrent des similitudes avec ceux des polymères plastiques. Cette base de données a été enrichie avec des signatures de polymères altérés tirés de macrodéchets plastiques ramassés dans l'environnement au début de la thèse. La bibliothèque ainsi créée contient 463 spectres issus de 27 composés différents dont 18 polymères synthétiques et 9 matières d'origine naturelle. Les polymères synthétiques sont les : PP, PS, PA, PVC, ABS,



polyméthacrylate de méthyle (PMMA), polyétheréthercétone (PEEK), acide polylactique (PLA), éthylène-acétate de vinyle (EVA), polyoxyméthylène (POM), polyisoprène (PIR), polytétrafluoroéthylène (PTFE), polyéther bloc amide (PEBA), silicone, acrylique (AC), PET et PUR. Les matières naturelles correspondent aux : protéine, stéarate, cellulose, carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ), glycéride, matières minérales et organiques. La bibliothèque utilisée est identique pour tous les échantillons traités au cours de ces travaux. Les spectres recherchés sont représentés dans la Figure 37.

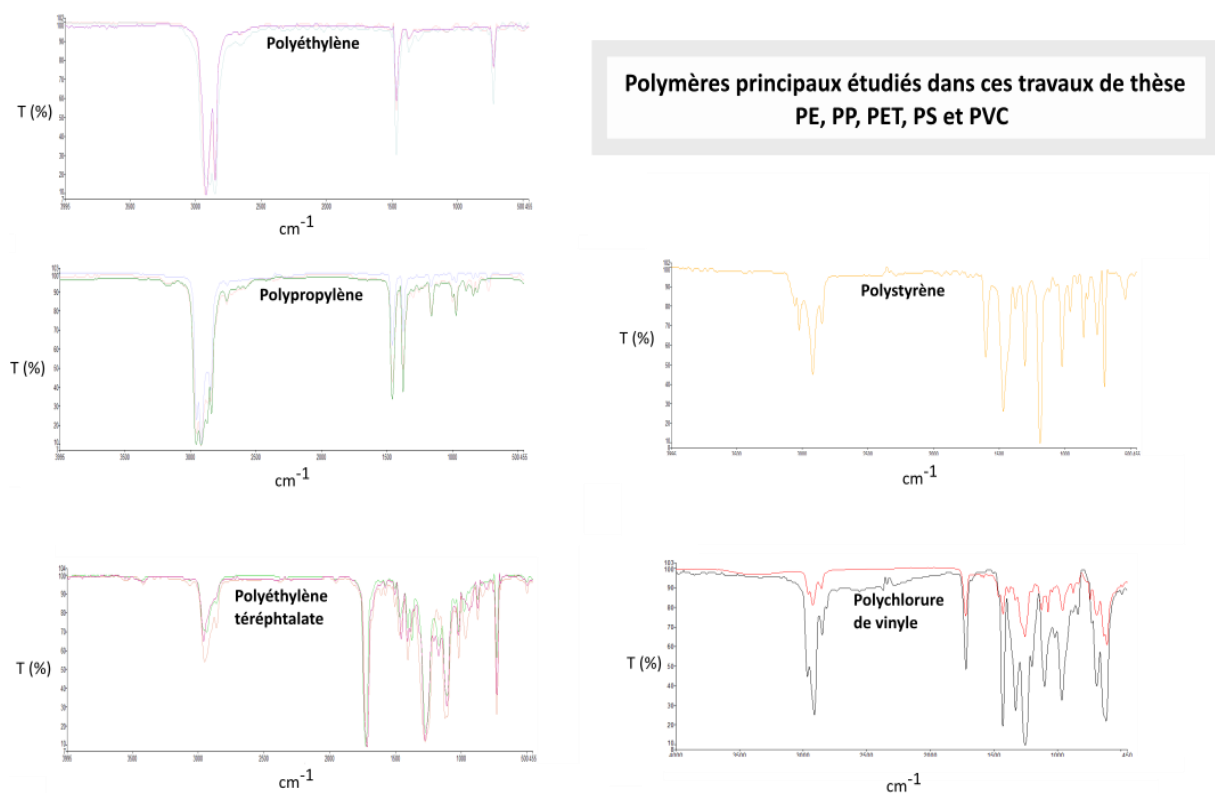


Figure 37 Spectres infrarouges présentés en transmittance (%) en fonction du nombre d'onde ( $\text{cm}^{-1}$ ) des cinq principaux polymères considérés dans cette étude

Une fois cette comparaison réalisée, le logiciel attribue au MP un polymère avec un score de probabilité compris entre 0 et 1 basé sur la comparaison des dérivées première et seconde des spectres IR de la particule et du matériel de référence. L'algorithme utilisé applique deux seuils de score de probabilité. Dans un premier temps, l'algorithme va à la recherche de tous les pixels où le score de probabilité le plus élevé correspond à un polymère plastique. Ce score doit être supérieur au seuil le plus élevé. Dans un second temps, l'algorithme analyse tous les pixels adjacents. Dans le cas où ces pixels correspondent à un matériau appartenant au même groupe

du polymère plastique trouvé dans la première étape et dont le score de probabilité est supérieur au deuxième seuil, il ajoute les pixels à la particule.

Plus le search score est proche de 1, plus la probabilité de présence de plastique augmente. Ce search score permet d'aider l'analyste à déterminer le polymère le plus proche de la particule analysée. En revanche, ce paramètre n'est pas automatiquement considéré comme « juste » mais requiert une vérification manuelle des spectres de la particule analysée et des spectres proposés par le logiciel.

D'autres données sont calculées notamment les dimensions de la particule ( $\mu\text{m}$ ), des estimations de masse (ng), volume ( $\mu\text{m}^3$ ) et surface ( $\mu\text{m}^2$ ). La méthode proposée par le logiciel siMPLe consiste à déterminer la dimension maximale de la particule en déterminant la plus grande distance entre les pixels de la particule. En supposant que la forme de la particule est une ellipse et en connaissant la surface de la particule grâce au scan IR, la dimension minimale est trouvée. Supposant la particule de forme ellipsoïdale, le volume est estimé. L'épaisseur est déterminée en considérant qu'elle est égale à 0,67 fois la dimension mineure. Enfin, la masse est estimée à partir du volume de la particule et la densité du polymère.

Dans ces travaux de thèse, nous avons adopté une approche alternative pour estimer les masses des particules et ceci pour deux raisons : d'une part, car la majorité des MP observés sont des fragments, films ou fibres dont la forme est plus proche d'un parallélépipède ou d'un cylindre que d'un ellipsoïde et d'autre part, car nous avons pensé préférable de prendre en compte la variabilité des densités des polymères. Pour ce faire, nous avons considéré que, lors du processus de filtration, les MP se déposent sur le filtre sur leur plus grande surface caractérisée par ses dimensions  $x$  et  $y$ . Ces dimensions  $x$  et  $y$  sont estimables à partir de l'observation microscopique, tandis que l'épaisseur de la particule, notée  $z$ , ne l'est pas. Pour les particules de type fragment et film, nous avons procédé à une estimation arbitraire de la hauteur  $z$ , en supposant que celle-ci correspond à 70 % de la plus petite dimension observable ( $x$  ou  $y$ ), sauf si le calcul nous amenait à  $z > 100 \mu\text{m}$ , auquel cas nous avons fixé la dimension  $z$  à  $100 \mu\text{m}$ . Le volume de la particule est alors estimé comme celui d'un parallélépipède. Pour les fibres, nous avons estimé que  $z$  était égale à la plus petite dimension observable ( $x$  ou  $y$ ) et le volume a été assimilé à celui d'un cylindre.

Ces choix sont arbitraires mais nous ont paru nécessaires afin d'éviter une surestimation de la masse des particules. En effet, d'autres travaux réalisés au laboratoire sur certains échantillons, très chargés en plastiques (> 1 mg - données non présentées ici), ont montré que l'estimation des masses sans limitation de l'épaisseur dépassait largement les résultats obtenus par pesée. Cette méthode pourrait cependant avoir un inconvénient pour notre étude dans la comparaison des échantillons puisque ceux contenant principalement de petites particules sont moins impactés par la limitation de l'épaisseur que ceux contenant de grandes particules. Idéalement, l'approche consistant à mesurer la hauteur  $z$  de la particule en s'appuyant sur le focus du microscope serait préférable mais cette approche, impliquant une mesure manuelle de la particule, est trop chronophage pour être effectuée en routine.

Une fois le volume de la particule estimé, il est multiplié par la densité du polymère correspondant. Il est important de souligner que dans notre étude, nous avons travaillé avec des unités en nombre et en masse de MP, car le nombre de MP n'est pas un élément conservatif contrairement à la masse, sauf dans le cas où le processus de fragmentation jusqu'à une taille < 50  $\mu\text{m}$  est impliqué. Des informations supplémentaires sur le dispositif expérimental sont disponibles dans l'Annexe 2.

## *Contrôles qualité*

### **Contamination et précautions**

La verrerie est nettoyée avec un détergent liquide (Gigapur®) puis passée dans un bain à l'acide nitrique (concentration approximative de 4 %) et idéalement calcinée à 525°C pendant 4 heures. En pratique, la calcination n'est pas toujours possible par manque de place dans le four du laboratoire. Des tests réalisés avec et sans calcination de verrerie n'ont pas montré de différences de contamination aux MP. Ainsi, cette étape de calcination n'est pas toujours réalisée. Avant chaque manipulation, la verrerie et autres éléments (filtres, entonnoir de filtration, etc.) préalablement nettoyés sont abondamment rincés à l'eau ultrapure. Le patch en filet polyamide, utilisé pour la première filtration de l'échantillon, est nettoyé dans un bécher d'isopropanol immergé dans un bain à ultrasons durant 5 minutes puis rincé à l'eau ultrapure.

Afin de minimiser le risque de contamination aux MP, le port de vêtements et de blouses en coton est requis lors des manipulations de terrain et de laboratoire. Le prétraitement des

échantillons est effectué dans une salle dédiée aux études MP mise en place au cours des travaux de thèse. Une hotte est utilisée en permanence et la majorité des équipements employés sont en verre ou métal. La solution de  $ZnCl_2$  est filtrée avec un filtre en fibre de verre ( $0,7 \mu m$ ) avant utilisation. Les récipients des échantillons sont couverts à chaque étape du traitement des échantillons (couvercles en verre) et également à l'intérieur des étuves et de la chambre climatique.

### Blancs

Trois types de blanc sont réalisés (Tableau 7). Des blancs laboratoire, au nombre de 10, où 20 mL d'eau ultrapure sont traités selon le protocole appliqué aux échantillons environnementaux (attaque oxydante et tri densimétrique). En complément, des blancs « terrain », au nombre de 40, sont effectués selon deux méthodes. La première (1) consiste à laisser un récipient en verre ouvert lors de l'échantillonnage d'eau de surface. Cette méthode a été utilisée au début des travaux puis a été considérée comme non représentative des échantillons. Par conséquent, la seconde méthode a été mise en place. Elle est réalisée par rinçage du filet (de surface ou colonne). Après un rinçage abondant et minutieux du filet par l'extérieur à l'aide d'une pompe immergée, un second rinçage est réalisé. Ce second rinçage correspond au blanc terrain de type (2). Ces blancs terrain sont ensuite traités selon le protocole appliqué aux échantillons environnementaux.

Type	Nombre de blancs	Polymère	Nombre de MP selon polymère/blanc	Moyenne de MP/blanc
Blanc laboratoire	10	PE	entre 0 et 1	0,5
		PET	entre 0 et 1	
Blanc terrain (1)	8	PET	entre 0 et 2	0,5
Blanc terrain (2)	32	PE	entre 0 et 2	2,0
		PP	entre 0 et 2	
		PET	entre 0 et 2	
		PVC	entre 0 et 1	

Tableau 7 Contamination aux MP des blancs laboratoire et terrain

Le PA étant régulièrement présent dans les blancs, il n'est pas pris en compte dans ces travaux de thèse (filets en PA) et n'est pas présenté dans le tableau ci-dessous. Les données exposées

dans les chapitres suivants sont des résultats bruts où les valeurs des blancs n'ont pas été soustraites.

### Rendements

Les rendements d'extraction de MP sont estimés à partir de microbilles de MP standardisés sous de forme de microsphères fluorescentes (UVPMS-BO-1.03 et UVPMS-BG-1.025, Cospheric) (Tableau 8).

Polymère	Coloration	Diamètre ( $\mu\text{m}$ )	Densité ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	Rendement d'extraction moyen (%)	
				Laboratoire	Terrain
PE	Vert	106 - 125	1,025	91 (n = 3)	64 (n = 2)
PE	Orange	63 - 75	1,030	90 (n = 3)	53 (n = 2)

Tableau 8 Caractéristiques des MP standardisés utilisés pour les tests de rendement

Les tests de rendement laboratoire sont effectués en utilisant une masse de 2 mg de microbilles (balance ML204, Mettler Toledo®), qui est ajoutée à 1L d'eau ultrapure (Maxima, USF Elga). L'échantillon dopé subit ensuite toutes les étapes du traitement (attaque oxydante et tri densimétrique), à l'exception de la dernière filtration sur silicium, car les microbilles adhèrent difficilement à cette surface. Des tests non présentés ici ont montré que ce type de MP standardisés a tendance à ne pas rester sur la surface du filtre. Par conséquent, la dernière étape du protocole correspond à une filtration sur filtre en PA préalablement pesé (balance ML204, Mettler Toledo®). Le filtre en PA est abondamment rincé à l'eau ultrapure afin d'éliminer les résidus potentiels de  $\text{ZnCl}_2$ . Le filtre avec les microbilles extraites est ensuite placé à l'étuve (40°C) jusqu'à séchage complet (~ 2 heures). Le filtre séché est ensuite pesé et le rendement est calculé à partir de la différence de masses entre filtre initial sans MP et filtre séché avec MP. Un rendement de 90% est satisfaisant.

Les tests de rendement terrain sont effectués à partir de ces mêmes microbilles (Tableau 8), en utilisant une masse de 3 mg. Ces microbilles ont été déposées à la surface de l'eau du lac du Bourget et récupérées avec notre système de collecte, le Dronamaran. Ensuite, les échantillons ont été soumis à l'intégralité du protocole de traitement, comprenant une attaque oxydante et un tri densimétrique, avant d'être filtrés et pesés en utilisant la même technique que celle employée pour les tests de rendement en laboratoire. En l'absence de comparaison avec

d'autres études, un rendement compris entre 53 et 64% peut sembler modeste, cependant, cela indique que l'ordre de grandeur des contaminations aux MP est correct. L'impact de la taille des MP sur le rendement peut être discuté. Les résultats montrent que le rendement est supérieur pour des particules de plus grandes dimensions (53 % pour des MP entre 63 et 75  $\mu\text{m}$  et 64 % pour des MP entre 106 et 125  $\mu\text{m}$ ). Ces résultats sont cohérents avec les observations sur le terrain, où la gamme 50-100  $\mu\text{m}$  semble parfois sous-représentée, malgré l'utilisation d'un filet de maille 50  $\mu\text{m}$ .

### Limites

Les méthodes employées dans ces travaux de thèse montrent plusieurs limites. Concernant les prélèvements effectués sur les différentes matrices environnementales d'eau, les MP étudiés sont compris entre 50  $\mu\text{m}$  et 5 mm. Les MP inférieurs à 50  $\mu\text{m}$  ne sont donc pas pris en compte dans cette étude. Les résultats présentés dans les chapitres suivants sous-estiment donc certainement les concentrations en MP des différents compartiments, les estimations de flux et stocks. Par ailleurs, les résultats des tests de rendement indiquent que l'extraction des MP en laboratoire, en l'absence de la phase terrain, atteint une efficacité optimale comprise entre 88 % et 93 %. Toutefois, les tests de rendement sur le terrain, menés avec le système de collecte des eaux de surface, le Dronamaran, montrent des rendements plus faibles, compris entre 51 % et 66 %. Pour obtenir des résultats plus robustes, il serait judicieux de réaliser davantage de tests de rendement, en utilisant différents types de MP (en termes de forme, taille et polymère) et en incluant tous les systèmes de prélèvement utilisés dans ces travaux de thèse (tels que le filet pour la colonne d'eau, le filet pour les rivières, les jauges Owen, etc.).

Les méthodes de traitement des échantillons ne considèrent pas les MP d'une densité supérieure à  $\sim 1,6$  comme le PTFE ( $d \sim 2,2$ ) dont la densité est supérieure à celle du  $\text{ZnCl}_2$  utilisé pour l'étape de tri densimétrique. Par ailleurs, l'attaque oxydante pourrait dégrader une partie des MP malgré la faible concentration de  $\text{H}_2\text{O}_2$  utilisée en solution finale (10 %) pour limiter ce risque. Les particules issues de l'usure des pneumatiques ne sont pas considérées dans ces travaux car l'utilisation de la technique de  $\mu\text{-FTIR}$  ne permet pas l'identification de ce type de particules.

La méthode d'analyse sous le logiciel siMPle pourrait sous- ou surestimer les concentrations en MP selon la capacité de l'analyste à identifier les spectres IR générés. La forme (fibre, fragment,

microbille) de la particule n'est pas identifiable via cette méthode d'analyse. Les pixels générés étant de 25 µm, les fibres d'un diamètre inférieur à cette dimension peuvent ne pas être identifiées.

## Analyses supplémentaires

Certaines analyses supplémentaires ont été réalisées afin de mieux comprendre les processus impliquant les MP en caractérisant certaines matrices comme les sédiments.

### *Perte au feu*

La technique de la perte au feu (PAF) est une méthode permettant de déterminer la teneur en matière organique d'un échantillon. L'échantillon est chauffé à une température de 550°C pendant 4 heures en présence d'oxygène. La matière organique dans l'échantillon est brûlée et transformée en dioxyde de carbone, eau et cendres. Au cours de la combustion, la masse disparue, appelé la « perte au feu », représente la quantité de matière organique qui était présente dans l'échantillon initial. La perte au feu est mesurée en soustrayant la masse après combustion à la masse initiale de l'échantillon. Au total, neuf échantillons de sédiments de la trappe du lac du Bourget ont été soumis à la PAF.

### *Spectrométrie par fluorescence des rayons X*

La spectrométrie par fluorescence des rayons X (XRF) est une méthode de quantification. Cette technique est basée sur la fluorescence des atomes d'un échantillon lorsqu'ils sont excités par un faisceau de rayons X. Ce faisceau est dirigé vers l'échantillon à analyser. Les atomes de l'échantillon absorbent l'énergie du faisceau de rayons X et émettent de l'énergie sous forme de rayonnement fluorescent. Les énergies de ce rayonnement fluorescent, spécifiques à chaque élément, permettent de déterminer la composition élémentaire de l'échantillon.

Les échantillons de sédiments du lac du Bourget (trappe) utilisés ont préalablement subi des PAF. La PAF permet d'éliminer le carbone organique des échantillons. Le carbone inorganique ( $\text{CaCO}_3$ ) reste présent mais il n'interfère en principe pas sur les performances de mesure XRF selon une étude réalisée sur trois types d'appareil XRF (Declercq et al., 2019). Par la suite, ils sont broyés, puis 2,7 g sont pesés (balance OHAUS Pioneer™). À cette masse est ajoutée 0,27 g de Licovax C qui est un liant (micropowder XRF Scientific 100,0 %). Les échantillons sont ensuite pastillés (diamètre 18 mm) grâce une presse jusqu'à une pression de 10 tonnes (XPRESS

MT25 XRF Scientific). Une fois pastillés, les échantillons sont soumis à l'analyse XRF (S8 Tiger BRUKER) pour laquelle trois standards sont utilisés (NCS DC 71303, NCS DC 71304, NCS DC 73304). Ces standards permettent d'étalonner et de calibrer l'instrument d'analyse XRF. Les standards sont des échantillons connus de composition chimique servant de points de référence pour les mesures de l'instrument. Les standards sont choisis en fonction des éléments et concentrations à mesurer ; dans ces travaux : l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) comme traceur de particules d'érosion du bassin versant (aluminosilicates terrigènes) ; l'oxyde de calcium (CaO) comme traceur de la production primaire du printemps et l'oxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ) composant des diatomées.

### *Tests statistiques*

Tous les tests statistiques effectués lors de cette thèse ont été réalisés à l'aide du logiciel R version 4.2.1 et à l'aide de l'interface RStudio.

#### **Spearman**

Le test de Spearman est une mesure statistique qui évalue la relation entre deux variables en utilisant leurs rangs plutôt que leurs valeurs réelles. Ce test classe les observations de chaque variable en ordre croissant ou décroissant et attribue à chaque observation un rang correspondant. Il mesure la corrélation monotone entre deux variables. Le coefficient de corrélation de rang de Spearman varie de -1 à 1. Les données utilisées ne suivent pas une loi normale, c'est un test non paramétrique.

#### **Wilcoxon-Mann-Whitney**

Le test de Wilcoxon est un test non paramétrique utilisé pour comparer les différences entre deux groupes indépendants de données continues. Ce test utilise les rangs des différences entre les paires appariées pour calculer une statistique de test. C'est un test robuste qui est une alternative utile au test de Student pour les données non normales. Dans certains cas, le test de Wilcoxon apparié est réalisé afin de comparer les différences entre deux groupes de données appariées (« avant-après ») continus.





## | Chapitre III |

# Évaluation de la contamination aux microplastiques des milieux lacustres



Ces résultats portent sur les MP dont la taille est comprise entre 50  $\mu\text{m}$  et 5 mm. Si nous avons inclus des plastiques de taille inférieure à 50  $\mu\text{m}$ , les concentrations auraient dépassé les valeurs maximales observées dans cette étude. Les polymères étudiés sont le PE, PP, PVC, PS et PET. En 2021, la demande européenne pour ces polymères était respectivement de 29,4 %, 19,8 %, 10,3 %, 6,2 % et 7,9 % (Plastics Europe, 2022).

Certains résultats sont présentés sous forme de boxplot, qui comprennent une ligne centrale représentant la médiane, des moustaches représentant le premier quartile Q1 (25 %) et le troisième quartile Q3 (75 %), ainsi que des points indiquant des valeurs extrêmes. Nos résultats ne suivent pas une loi normale, ce qui nécessite l'utilisation de tests statistiques non paramétriques. Le test de Wilcoxon est effectué afin de déterminer s'il y a des différences significatives entre deux « échantillons » caractérisés par une même variable, ainsi que le test de Spearman pour évaluer la présence de corrélations entre deux variables différentes. La valeur n, représentant le nombre de mesures par « échantillon », et la p-value correspondante sont rapportées dans le manuscrit pour chaque test réalisé. Dans ce contexte, le terme « échantillon » ne doit pas être compris comme se référant à un prélèvement sur le terrain, mais plutôt comme un ensemble de données au sens statistique du terme.

Deux types d'unités sont couramment utilisés dans les résultats : le nombre de MP et la masse de MP par  $\text{m}^3$  ou kg de matrice environnementale. L'utilisation de la masse est essentielle car elle est un élément quasi-conservatif<sup>1</sup> contrairement au nombre. Néanmoins, la masse n'est qu'une estimation qui dépend fortement des hypothèses qui sont faites sur le calcul du volume et sur la densité des particules (*cf. Chapitre II*).

Rappelons ici que les études de la littérature sont difficilement comparables de par la diversité des méthodes employées, qu'il s'agisse de travaux sur le terrain, en laboratoire ou d'analyse. À titre d'exemple, l'équipe de Lindeque et al. (2020) ont procédé à une comparaison entre la taille des mailles d'échantillonnage, soit 100, 333 et 500  $\mu\text{m}$ , et l'abondance des MP. Leur étude a révélé que le maillage de 100  $\mu\text{m}$  est capable de recueillir 2,5 fois plus de particules que le maillage de 333  $\mu\text{m}$  et 10 fois plus que le maillage de 500  $\mu\text{m}$ .

<sup>1</sup> En pratique, comme la détection se limite à des particules de taille supérieure à 50  $\mu\text{m}$  puisque la fragmentation en particules plus petites les rendrait non détectable et induirait une « disparition de masse ».

Les variations dans l'échantillonnage peuvent être importantes. L'étude de Cable et al. (2017) a révélé que les concentrations pouvaient varier d'un facteur allant jusqu'à 3 pour des mesures répétées sur le même site (Grands Lacs, Etats-Unis).

Nos hypothèses initiales, représentées dans la **Figure 38**, suggèrent que le lac Merlet supérieur, qui est un site isolé dans un environnement alpin, présenterait des niveaux de contamination en MP relativement faibles par rapport aux lacs subalpins, quelle que soit la matrice environnementale. Le principal vecteur de MP sur le site du Merlet serait les retombées atmosphériques, tandis que l'impact du pastoralisme ou des activités de plein air serait moindre. Le tourisme, le transport atmosphérique sur de longues distances ainsi que les précipitations (neige et pluie) ont été signalés comme des facteurs clés dans les retombées et dépôts de MP dans les lacs de haute-altitude (Pastorino et al., 2022).

En revanche, les lacs subalpins seraient davantage affectés par la pollution en MP, en raison des activités anthropiques urbaines et industrielles (lac du Bourget) ou des activités rurales à agricoles dans le bassin versant (lac d'Annecy). Le lac d'Annecy se situe en amont de la zone urbaine et n'est pas impacté par les rejets d'eaux usées, contrairement au lac du Bourget.

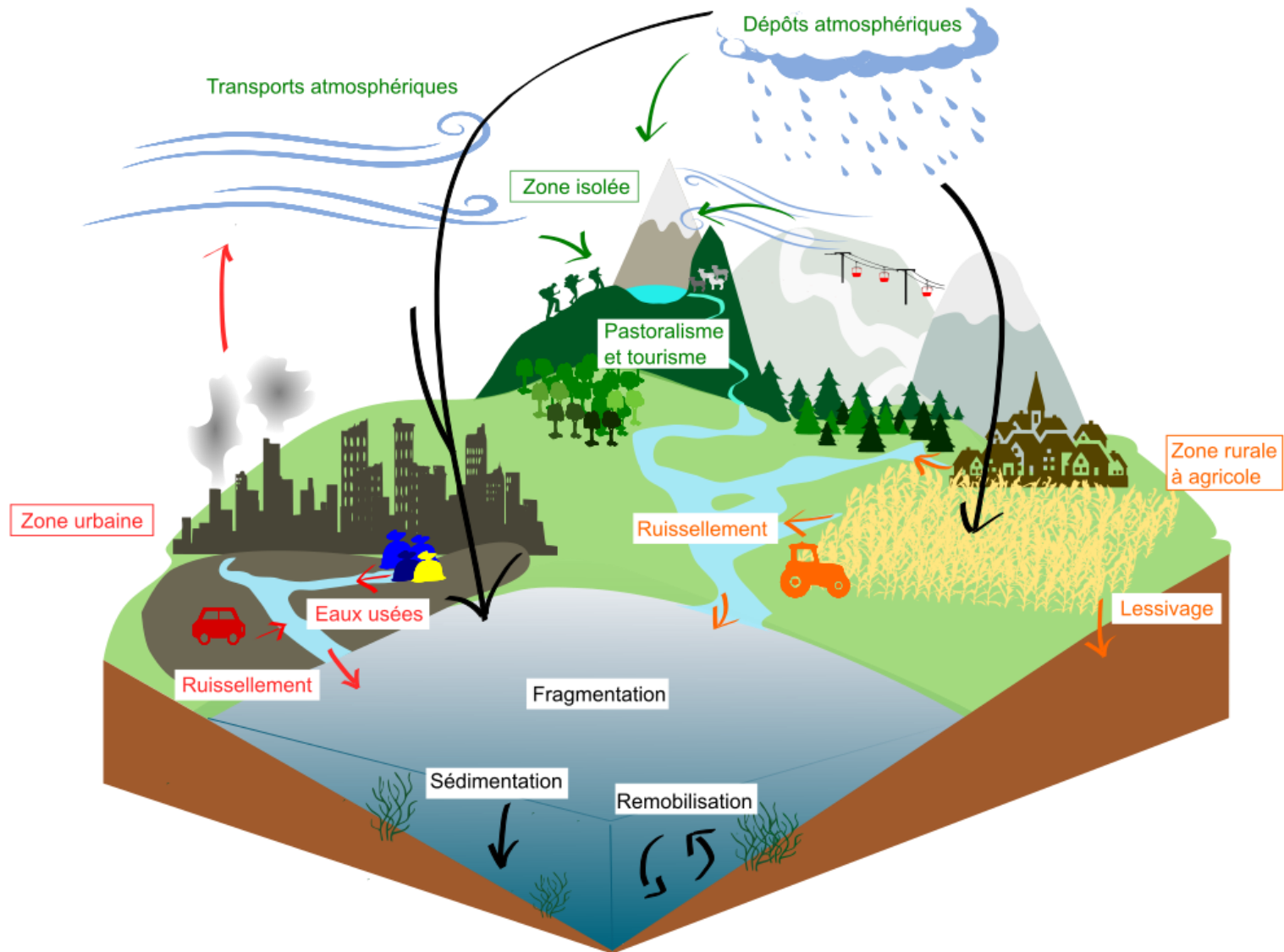


Figure 38 Schéma représentant les sources et vecteurs potentiels de microplastiques en zones subalpine et alpine

## Évaluation de la contamination aux microplastiques dans l'eau de surface

### Quantification des microplastiques

À travers les trois sites, tous les échantillons collectés ont montré une présence significative de MP. Les résultats (Figure 39, gauche) montrent des concentrations en nombre de MP comprises entre 0,7 et 247,3 MP/m<sup>3</sup> pour le lac du Bourget, entre 0,1 et 194,3 MP/m<sup>3</sup> pour le lac d'Annecy et entre 0,4 et 29,5 MP/m<sup>3</sup> pour le lac Merlet supérieur. En termes de masse (Figure 39, droite), le lac du Bourget présente des concentrations massiques variant de 130 à 273 000 ng de MP/m<sup>3</sup>, le lac d'Annecy de 188 à 210 000 ng de MP/m<sup>3</sup> et le lac Merlet supérieur de 430 à 100 000 ng de MP/m<sup>3</sup>. Les résultats sont répertoriés dans le Tableau 9.

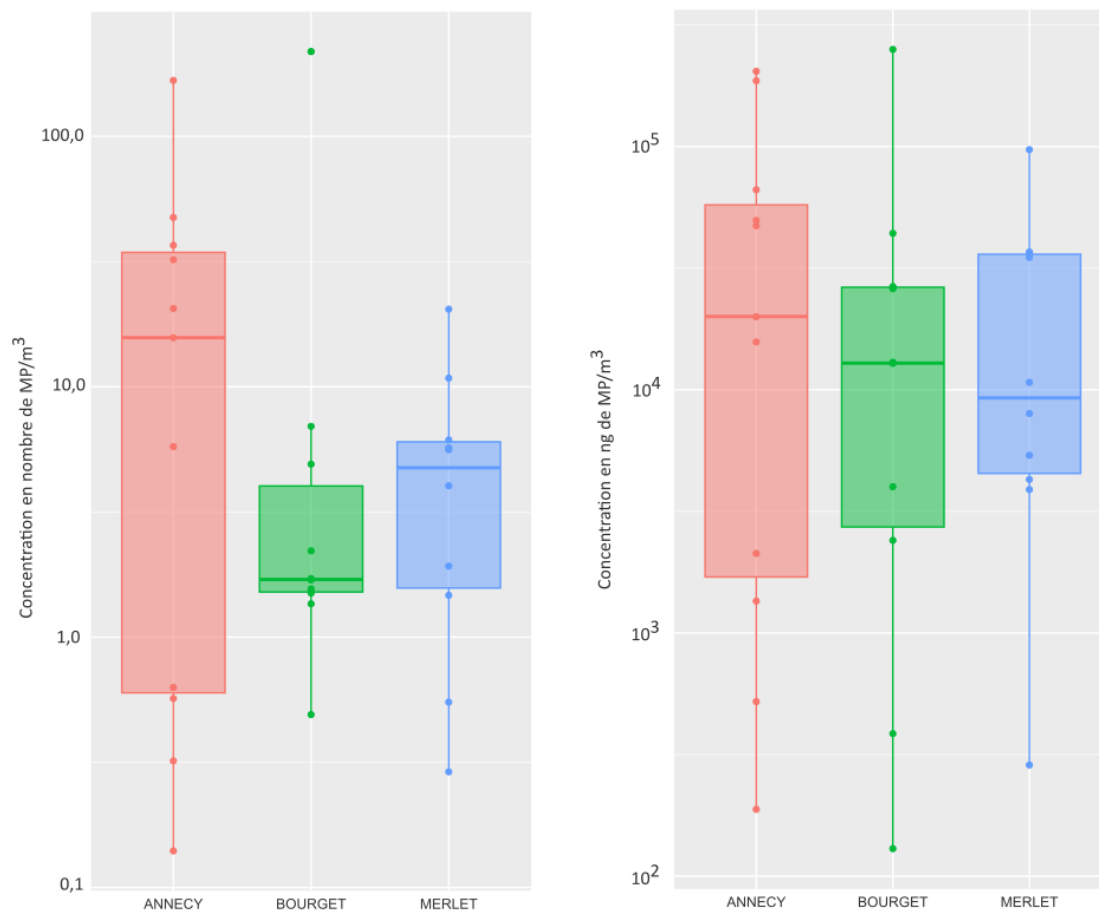


Figure 39 Représentation graphique des échantillons de l'eau de surface des lacs d'Annecy (n = 11), du Bourget (n = 8) et du Merlet supérieur (n = 10). Gauche : concentration en nombre de MP/m<sup>3</sup>. Droite : concentration en ng de MP/m<sup>3</sup>

Lac	Concentration moyenne en nb de MP/m <sup>3</sup>	Incertitude moyenne* (%)	Concentration moyenne en ng de MP/m <sup>3</sup>	Incertitude moyenne* (%)	Distribution polymérique					Distribution de taille			
					moyenne (%)					moyenne (%)			
					PE	PP	PET	PVC	PS	50µm - 300µm	300µm - 1mm	1mm - 5mm	
Bourget													
Surface	27,4	15	42 000	10	53	36	9	2	0	66	29	5	
Annecy													
Surface	34,9	16	57 000	6	45	27	10	14	4	65	34	1	
Merlet													
Surface	10,7	19	26 000	16	18	60	16	1	5	69	28	3	

Tableau 9 Récapitulatif des résultats sur la matrice eau de surface

*\* cette incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II*



À première vue, les résultats indiquent que les niveaux de contamination des trois sites lacustres sont relativement faibles en comparaison avec ceux observés dans d'autres lacs, tels que ceux décrits dans une étude récente menée en Espagne par Godoy et al. (2022). Cette étude a mis en évidence une contamination moyenne de 6 970 MP/m<sup>3</sup> dans 35 lacs d'altitude. Les MP de tailles comprises entre 1 et 50 µm ont été pris en compte, ce qui n'a pas été le cas dans nos travaux. Les auteurs ont souligné que 25,89 % des MP identifiés étaient inférieurs à 50 µm. De plus, la méthode d'échantillonnage utilisée par cette même équipe diffère considérablement de la nôtre, puisqu'ils ont prélevé des échantillons d'eau de surface des lacs à l'aide de pot de prélèvement de 250 mL fixé à une perche, filtrant un volume total compris entre 1 et 10 L.

À l'inverse, les trois sites du Bourget, d'Annecy et du Merlet montrent des concentrations moyennes plus importantes que certains lacs, notamment en Argentine où neuf lacs d'altitude ont montré une concentration moyenne de  $0,90 \pm 0,60$  MP/m<sup>3</sup> (Alfonso et al., 2020b). Soit presque douze fois moins qu'au lac Merlet supérieur. Cette étude a utilisé une méthode similaire à la nôtre, un filet tracté (maille de 38 µm) filtrant approximativement 50 m<sup>3</sup> pour chaque échantillon. Dans ce cas, les variations de concentration pourraient s'expliquer par le « facteur site ».

Cette forte variabilité en MP à travers les lacs pourrait être attribuée à plusieurs facteurs. Tout d'abord, les différentes méthodes d'échantillonnage utilisées présentent des caractéristiques variables. Selon la taille des mailles de filet ou la porosité du filtre pour les systèmes de pompe, les tailles de particule étudiées peuvent varier, ce qui peut affecter les résultats obtenus. Par ailleurs, les méthodes de traitement des échantillons sont variables et certaines études peuvent ne pas prendre en compte tous les types de polymères plastiques. Enfin, la méthode d'analyse elle-même peut jouer sur le seuil de détection et d'identification des particules. À l'heure actuelle, il n'existe pas de méthode standardisée pour l'étude des MP dans les lacs. Les conditions environnementales telles que la météo peuvent également influencer les résultats. Tous ces facteurs rendent complexes la comparaison de la contamination des lacs entre eux, en particulier dans la couche de surface et la colonne d'eau, et la formulation de conclusions quant à la contamination des lacs étudiés dans cette thèse par rapport à ceux examinés dans la littérature scientifique.

## Comparaison inter-sites

Les méthodes similaires employées pour les trois sites dans le cadre de ces travaux de thèse permettent de les comparer entre eux.

Les concentrations en MP des trois sites ne présentent pas de différence significative (Bourget  $n = 11$  ; Annecy  $n = 8$  ; Merlet  $n = 10$  ;  $p$ -value  $> 0,05$ ). Aucune tendance n'a pu être établie entre ces concentrations et les caractéristiques spatio-temporelles (saisonnalité et zones de prélèvement) des échantillonnages. Toutefois, on peut noter que les pics de contamination pour les sites du Bourget et d'Annecy pourraient faire suite à des évènements de pluie précédant l'échantillonnage. Plusieurs études ont observé un lien entre évènement pluvieux et abondance en MP (Oni et al., 2020; Schell et al., 2021; Xia et al., 2020b). Au contraire, le pic de contamination au lac Merlet supérieur ne semble pas lié à un évènement météorologique particulier. Correspondant à un prélèvement au mois de juillet, il pourrait être en lien avec l'affluence touristique du site. Dans une étude réalisée sur des lacs de haute-montagne, le tourisme a été considéré comme une des sources principales de pollution aux MP (Pastorino et al., 2022). Si cet apport est lié au tourisme, il pourrait être identifié par la présence de polymères de nature différente de ceux présents dans les retombées atmosphériques. Il est également possible que ce phénomène soit lié à l'apport de MP stockés dans le manteau neigeux qui a fondu avant l'été. Le lac Merlet étant également alimenté par un glacier rocheux, il pourrait émettre par sa fonte des MP stockés au sein du glacier. Cela a déjà été observé pour les polluants organiques persistants (Bogdal et al., 2009; Carrera et al., 2001; Pawlak et al., 2021). Il a été aussi montré que la neige est un vecteur important d'apport de polychlorobiphényles dans les écosystèmes reculés (Nellier et al., 2015).

L'absence de différence significative pourrait aussi être due au nombre restreint d'échantillons. Dans ce cas, on pourrait noter que les eaux de surface des lacs subalpins du Bourget et d'Annecy seraient, en moyenne, approximativement 3 fois plus contaminés en nombre que celui du lac alpin Merlet supérieur ( $\text{MP}/\text{m}^3$ ), et approximativement 2 fois en masse ( $\text{ng de MP}/\text{m}^3$ ) (Tableau 9). D'après ces résultats, la couche de surface du lac d'Annecy est la plus contaminée avec en moyenne  $34,9 \text{ MP}/\text{m}^3$ . Toutefois, l'échantillon le plus contaminé à travers les trois sites provient du lac du Bourget avec  $247,3 \text{ MP}/\text{m}^3$ . Au contraire l'échantillon le moins contaminé a été observé au lac d'Annecy avec  $0,1 \text{ MP}/\text{m}^3$ . Quant au lac Merlet supérieur, il montre un pic

de contamination à 29,5 MP/m<sup>3</sup>. À ce stade, ces résultats ne sont pas en mesure de confirmer l'hypothèse initiale selon laquelle les lacs subalpins soumis à des sources potentielles urbaines et industrielles (lac du Bourget) ou rurales à agricoles (lac d'Annecy) seraient plus contaminés que les lacs alpins « isolés » (lac Merlet supérieur).

Le lac Merlet supérieur présente une particularité notable par rapport aux lacs subalpins : ses eaux de surface gèlent en hiver, entraînant une stratification saisonnière. Au cours des trois dernières années (2020-2022), l'englacement a duré entre 210 et 239 jours, tandis que les périodes de brassage et de stratification ont respectivement duré entre 9 et 32 jours et entre 175 et 226 jours (CEN Haute-Savoie). Ces variations dans la fréquence des brassages et des stratifications pourraient influencer sur la dynamique de distribution des MP dans le lac par rapport aux lacs du Bourget et d'Annecy. En hiver, l'englacement de l'eau de surface pourrait préserver le lac des retombées atmosphériques potentiellement riches en MP. Les MP déjà présents au sein du lac pourraient être amenés à avoir une dynamique particulière en lien avec la stratification inversée. Par ailleurs, la prise en glace de l'eau de surface pourrait avoir pour action de protéger les MP présents dans le lac des rayonnements UV lors de la période hivernale. Cette protection pourrait ralentir la fragmentation des MP. Au printemps, les MP piégés dans la couche de la glace ou présents à sa surface vont rejoindre l'eau du lac lors de la fonte. Lors du brassage les MP vont être redistribués dans toute la colonne d'eau selon ses températures. Par ailleurs, les sédiments lacustres peuvent être remobilisés ainsi que les MP présents dans cette couche essentiellement minérale. La mise en place de la stratification thermique lors de la saison estivale, pourrait redistribuer les MP dans la colonne d'eau selon la densité de leur polymère et celle de l'eau. À l'inverse de la saison estivale, les MP denses pourraient avoir tendance à rejoindre la zone pélagique et sédimenter et les MP moins denses à flotter à la surface du lac ou seraient en suspension dans la colonne d'eau. Enfin, à l'automne un second brassage se produit lors du refroidissement de l'eau du lac. Ce phénomène pourrait influencer la dynamique de répartition des MP avant la mise en place de la stratification inversée hivernale.

D'après Nava et al. (2023) (*article accepté avec révision le 12/02/2023 sous le n° d'indexation 2022-12-19147B*), la densité de population dans un bassin versant est le principal facteur influençant la pollution par les MP. Les résultats de cette étude indiquent que deux types de lacs sont particulièrement vulnérables à la contamination par le plastique : ceux situés dans des

zones densément peuplées et urbanisées (densité de population dans le bassin versant > 25 habitants/km<sup>2</sup>) avec une concentration moyenne de 1,6 MP/m<sup>3</sup>, ainsi que les grands lacs (superficie du lac > 213 km<sup>2</sup>) en raison de leur vaste zone de drainage et de leur long temps de rétention de l'eau avec une concentration moyenne de 4,1 MP/m<sup>3</sup>. En revanche, dans cette étude les lacs avec une superficie < à 213 km<sup>2</sup> et dont la densité de population dans le bassin versant est < à 25 habitants/km<sup>2</sup> montrent en moyenne une concentration de 0,4 MP/m<sup>3</sup>.

Les résultats de nos travaux montrent des concentrations moyennes plus élevées en MP dans les lacs (Bourget : 27,4 MP/m<sup>3</sup>, Annecy : 34,9 MP/m<sup>3</sup> et Merlet : 10,7 MP/m<sup>3</sup>). En observant la gamme des concentrations on peut observer que les concentrations les plus faibles sont de 0,7 MP/m<sup>3</sup> pour Bourget, 0,1 MP/m<sup>3</sup> pour Annecy et 0,4 MP/m<sup>3</sup> pour Merlet. L'étude de Nava et al. (2023) révèle que la concentration varie de 10<sup>-3</sup> à 10<sup>1</sup> MP/m<sup>3</sup> (MP > 250 µm avec un volume filtré d'environ 140 m<sup>3</sup> ; moyenne ± erreur standard = 1,82 ± 0,37 MP/m<sup>3</sup> ; médiane = 0,85 MP/m<sup>3</sup>). Environ 55 % des lacs étudiés présentent des concentrations inférieures à 1 MP/m<sup>3</sup>, 37 % entre 1 et 5 MP/m<sup>3</sup>, et 8 % supérieures à 5 MP/m<sup>3</sup>. Les concentrations moyennes obtenues dans le cadre de nos travaux sont supérieures à celles constatées dans l'étude précédente. Cette disparité pourrait être attribuée aux différences méthodologiques dans le processus d'échantillonnage (gammes de taille : > 50 µm pour nos travaux ; > 250 µm pour l'étude de Nava et al. (2023)).

En outre, leur étude a procédé à une analyse des MP par spectroscopie Raman, tandis que notre étude les a examinés par spectroscopie IR. Bien que ces deux techniques soient employées dans l'étude des vibrations moléculaires, elles diffèrent quant à leur principe de fonctionnement. La spectroscopie IR mesure les fréquences de vibration des liaisons moléculaires en utilisant des radiations électromagnétiques IR, tandis que la spectroscopie Raman détecte les variations de fréquence de la lumière diffusée par les molécules. L'étude menée par Käßler et al. (2016) a procédé à une comparaison de ces deux techniques de détection de MP, et a révélé des différences concernant le nombre et le type de MP identifiés. Leurs résultats montrent que la méthode FTIR sous-estime de 35 % la quantité de MP identifiés par rapport à la méthode Raman, en particulier pour les MP de tailles inférieures à 20 µm. Cette étude a également montré que le PVC est difficilement identifiable par la méthode FTIR, tandis que pour la méthode Raman, ce sont les PES qui présentent des difficultés d'identification (à l'exception du PET qui possède un cycle aromatique).

Par ailleurs, une étude récente a révélé que l'abondance en MP est positivement corrélée avec la population, l'agriculture et le produit intérieur brut par habitant. Cela suggère que les environnements lacustres sont davantage contaminés par les MP dans les zones où la population et l'activité agricole sont importantes (Yang et al., 2022). Bien que nos observations montrent des concentrations moyennes en MP plus élevées dans les lacs du Bourget et d'Annecy, ce qui pourrait être en accord avec les résultats de l'étude précédente, les concentrations dans le lac Merlet, isolé et sans activité agricole ni population, ne sont pas significativement différentes. Ainsi, nos résultats suggèrent que d'autres facteurs pourraient influencer la contamination des lacs par les MP.

### *Caractérisation des microplastiques*

La distribution polymérique, c'est-à-dire l'abondance des différents types de polymères, au sein de la matrice eau de surface a été comparée entre les trois sites. Les polymères de type PE et PP sont majoritaires au sein des échantillons (Tableau 9). Les polymères les plus fréquemment identifiés dans les trois lacs sont, en moyenne, le PE (39 %), le PP (41 %) et le PET (12 %). Ces résultats sont en accord avec la demande mondiale de polymères plastiques, où le PE et le PP sont largement représentés (Plastics Europe, 2019). Ils sont aussi en accord avec la littérature scientifique qui a montré la présence majoritaire de PE, PP, PET, PVC (Dusaucy et al., 2021; Yang et al., 2022) ainsi que du PS (Malla-Pradhan et al., 2023) dans les écosystèmes lacustres à travers le monde.

Selon l'étude menée par Nava et al. (2023), la distribution polymérique varie en fonction des caractéristiques morphométriques des lacs. Ils ont constaté que les lacs ayant des surfaces, volumes, profondeurs maximales et longueurs de rivage comparativement faibles présentent un pourcentage plus élevé de PES. En revanche, dans les grands lacs profonds ayant des rives plus étendues, la signature plastique est principalement dominée par le PP et le PE. Les résultats de nos observations attestent du même constat où la présence du PET est plus importante dans le lac Merlet supérieur en comparaison aux lacs subalpins du Bourget et d'Annecy. On peut aussi noter une forte présence de PP dans les eaux de surface du lac Merlet supérieur par rapport aux lacs subalpins. Ces deux types de polymères sont fréquemment utilisés dans la fabrication de fibres textiles, en particulier pour les vêtements techniques, et pourraient être liés à l'affluence touristique du site lors de la saison estivale.

La distribution en taille (50 - 300  $\mu\text{m}$ , 300 - 1 000  $\mu\text{m}$ , 1 000 - 5 000  $\mu\text{m}$ ) a également été observée mais aucune différence significative n'a été notée entre les sites. Toutefois, on peut noter que 60 % des MP identifiés ont une taille comprise entre 50 et 300  $\mu\text{m}$  pour les trois sites. D'autres études ont montré une prédominance de petits MP comme dans la région des Grands Lacs (Canada/États-Unis) où la gamme 106 - 1 000  $\mu\text{m}$  était 130 fois plus abondante que la gamme 1 000 - 4 750  $\mu\text{m}$  (Cable et al., 2017). Ou encore, au lac Kallavesi où la majorité des MP étaient compris entre 20 et 300  $\mu\text{m}$  (Uurasjärvi et al., 2020). En outre, la présence accrue de MP de petite taille pourrait résulter du processus de fragmentation des plastiques dans l'environnement. Il est possible que ces observations soient liées au caractère non conservatif du nombre de particules, comme expliqué précédemment. En effet, une grande particule se divise inévitablement en plusieurs petites particules, ce qui entraîne un nombre plus important de petites particules que de grandes.

Une autre hypothèse serait que la vitesse de sédimentation est supérieure pour les particules de plus grande taille par rapport aux particules plus petites, ayant une composition et une forme similaire (Khatmullina and Isachenko, 2017a). Toutefois, cela dépend de la densité des polymères présents, des MP dont la densité est inférieure 1 auraient plutôt tendance à flotter. Toutefois, l'observation de nos données de distribution de taille de MP au sein des sédiments ne montrent pas de prédominance de MP de grande taille (> 300 - 5 000  $\mu\text{m}$ , en moyenne entre 11 % et 51 % pour les trois lacs) par rapport à la gamme 50 - 300  $\mu\text{m}$  (en moyenne entre 49 % et 89 % pour les trois lacs) (Tableau 13). Une autre hypothèse serait que les petits MP sont plus résistants à l'élimination par les systèmes de traitement des eaux usées et, par conséquent, plus susceptibles de se retrouver dans l'environnement. Bien que les eaux usées aient un impact sur le lac du Bourget, la distribution de taille des MP ne montre pas de différences significatives entre les trois lacs (Tableau 9).

### *Limites méthodologiques et hypothèses*

Ces résultats restent toutefois à nuancer. En effet, le lac Merlet supérieur présente une petite superficie qui a certainement permis de réaliser des échantillonnages plus représentatifs de son état de contamination que les lacs subalpins. Les échantillonnages des sites subalpins, dont les caractéristiques hydrodynamiques sont complexes, ont été réalisés sur des zones spécifiques. La géométrie du lac, la profondeur, la vitesse et direction du vent, la présence d'un

affluent ou exutoire pourraient influencer la dynamique des MP. Le vent, formant des courants de surface, pourrait concentrer les MP dans certaines zones. À l’instar des océans, des gyres peuvent se créer au sein des systèmes lacustres (Hamze-Ziabari et al., 2022) qui pourraient provoquer l’accumulation de particules dans certaines zones, n’ayant pas été systématiquement échantillonnées dans nos travaux. Cette hypothèse semble cohérente avec la grande variabilité des concentrations trouvées dans les grands lacs, où les concentrations peuvent varier considérablement, allant parfois de très faibles à beaucoup plus élevées. De ce fait, la concentration en MP de la couche de surface des lacs subalpins pourrait être sous-estimée, même si le grand nombre d’échantillons prélevés devraient couvrir statistiquement le prélèvement dans ces zones de gyres. À moins que les gyres se forment toujours aux mêmes endroits et que nous les ayons manqués à chaque échantillonnage. Nous ne pouvons pas confirmer ou réfuter cette hypothèse en raison de l’absence de données, à notre connaissance, sur la dynamique de ces potentiels gyres dans les lacs du Bourget et d’Annecy.

## Évaluation de la contamination aux microplastiques dans la colonne d'eau

### Quantification des microplastiques

Les résultats (Figure 40, gauche) montrent des concentrations en nombre de MP comprises entre 0,1 et 0,8 MP/m<sup>3</sup> pour le lac du Bourget, entre 0,1 et 0,4 MP/m<sup>3</sup> pour le lac d'Annecy. En termes de masse (Figure 40, droite), le lac du Bourget présente des concentrations massiques variant de 29 à 2 400 ng de MP/m<sup>3</sup>, le lac d'Annecy de 16 à 1 100 ng de MP/m<sup>3</sup>. Les résultats sont répertoriés dans le Tableau 10.

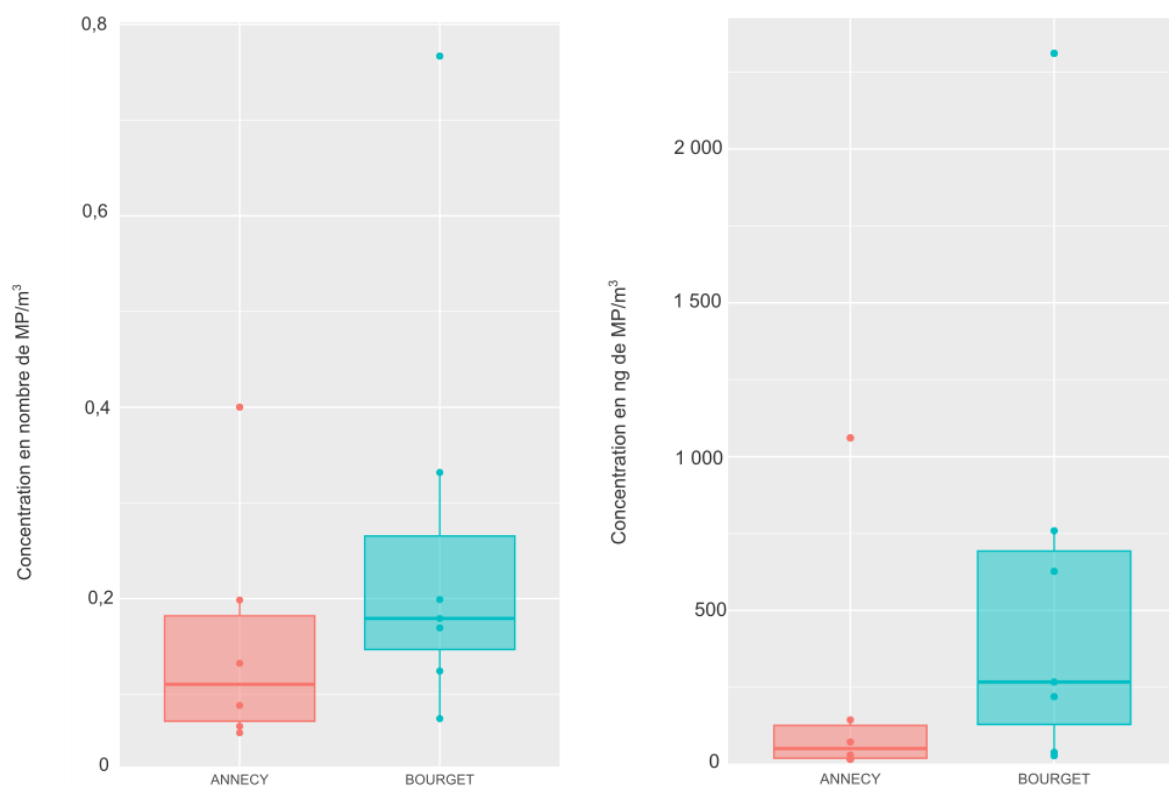


Figure 40 Représentation graphique des échantillons de la colonne d'eau des lacs d'Annecy (n = 6) et du Bourget (n = 7). Gauche : concentration en nombre de MP/m<sup>3</sup>. Droite : concentration en ng de MP/m<sup>3</sup>



Lac	Concentration moyenne en nb de MP/m <sup>3</sup>	Incertitude moyenne* (%)	Concentration moyenne en ng de MP/m <sup>3</sup>	Incertitude moyenne* (%)	Distribution polymérique					Distribution de taille		
					moyenne (%)					moyenne (%)		
					PE	PP	PET	PVC	PS	50µm - 300µm	300µm - 1mm	1mm - 5mm
Bourget	0,3	16	650	9	31	28	20	12	9	70	30	0
Annecy	0,2	0	220	0	75	11	6	0	8	96	4	0

Tableau 10 Récapitulatif des résultats sur la matrice colonne d'eau

*\* cette incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre I*

À notre connaissance, seules trois études se sont intéressées à la matrice colonne d'eau révélant des contaminations comprises entre 0,42 et 250 MP/m<sup>3</sup> (cf. *Chapitre I*). Les résultats sur les lacs du Bourget (0,3 MP/m<sup>3</sup> en moyenne) et d'Annecy (0,2 MP/m<sup>3</sup> en moyenne) sont de l'ordre de ceux du lac Michigan (Lenaker et al., 2019) où une concentration moyenne de 0,42 MP/m<sup>3</sup> a été observée. En revanche, les sites du Bourget et d'Annecy montrent une contamination plus faible que les lacs Tollense (Allemagne) (en associant fibres et fragments > 63 µm : 31 à 71 MP/m<sup>3</sup>) et Supérieur (Etats-Unis, Canada) (MP > 100 µm, 250 MP/m<sup>3</sup>) (Fox et al., 2022; Tamminga, 2020).

Les similitudes et différences dans les concentrations en MP entre ces lacs pourraient être liées aux caractéristiques des lacs (volume, superficie du bassin versant et occupation des sols). Cela pourrait être aussi lié aux caractéristiques des MP présents. La forme des MP peut jouer un rôle important dans la vitesse de décantation, qui est plus faible pour les fibres par rapport aux fragments (Khatmullina and Isachenko, 2017b; Waldschlager and Schuttrumpf, 2019). Les lacs Tollense et Supérieur ont montré que les fibres etaient la forme predominante de MP, ce qui pourrait expliquer les concentrations plus elevees observees dans ces lacs par rapport aux lacs du Bourget et d'Annecy, ou l'analyse ne permet pas de detecter de faon robuste les MP de type fibre. D'autres facteurs tels que les conditions meteorologiques et l'etat trophique du lac, induisant la formation de biofilm (Miao et al., 2021), pourraient influencer la distribution des MP. Plusieurs etudes ont souligne l'influence du vent sur le melange vertical des plastiques dans les oceans (Kooi et al., 2016; Kukulka et al., 2012).

### *Saisonnalite de la contamination*

L'hypothese initiale etait d'observer des concentrations en MP plus importantes en periodes de brassage des eaux qu'en periodes de stratification thermique dans la colonne d'eau. En effet, le brassage pourrait influencer la dynamique des MP presents dans les differentes strates thermiques et remobiliser les particules de la matrice sedimentaire en les redistribuant et en augmentant la concentration de MP dans la colonne.

Cependant, nos resultats (*Figure 41*) montrent que les contaminations de la colonne d'eau durant les periodes de stratification thermique et brassage ne presentent pas de differences significatives (Bourget  $n_{\text{BRASSAGE}} = 4$   $n_{\text{STRATIFICATION}} = 3$  ; Annecy  $n_{\text{BRASSAGE}} = 3$   $n_{\text{STRATIFICATION}} = 3$  ; p-value > 0,05), que ce soit en termes de nombre de particules ou de masse. Cela pourrait etre

dû au faible nombre de mesures pour réaliser un test statistique robuste. Par ailleurs, cela pourrait s'expliquer par le réchauffement des eaux profondes et les conditions météorologiques particulières des années 2020 et 2021 qui ont entravé l'homogénéisation totale de la colonne d'eau pour le lac du Bourget. En effet, le mois de mars 2021 a dévoilé que le brassage du lac était incomplet, atteignant une profondeur de 120 mètres. De même pour l'hiver 2020, les eaux du lac n'auraient pas réalisé un brassage complet et donc une homogénéisation de la température (Jacquet et al., 2022, 2021). La dynamique de brassage d'un lac (complet ou incomplet) pourrait influencer sur la contamination aux MP dans la colonne d'eau. Cela pourrait inhiber la remobilisation dans la colonne d'eau des MP présents dans les sédiments lacustres. En revanche, le lac d'Annecy a quant à lui subi un brassage complet de la colonne d'eau en 2020 et 2021 (Frossard et al., 2022, 2021).

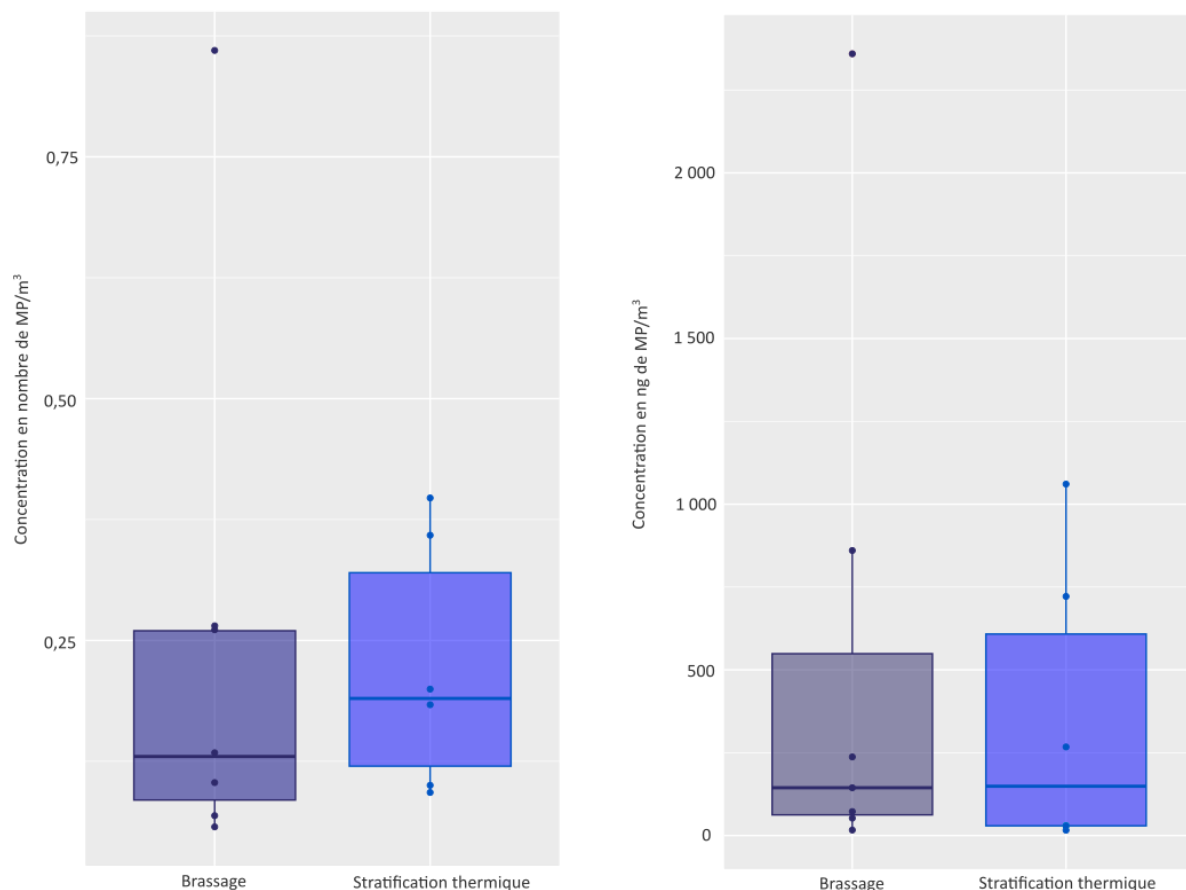


Figure 41 Représentation graphique des échantillons de la colonne d'eau des lacs subalpins en périodes de brassage (n = 7) et de stratification thermique (n = 6). Gauche : concentration en nombre de MP/m<sup>3</sup>. Droite : concentration en ng de MP/m<sup>3</sup>

La concentration de MP dans la colonne d'eau semble plus faible que dans la couche de surface. Plusieurs hypothèses peuvent être envisagées pour expliquer ce phénomène. La colonne d'eau montre des caractéristiques différentes de la couche de surface (Wuest and Lorke, 2003). En effet, le métalimnion représente l'environnement idéal pour la formation d'ondes internes (seiches) (Cuypers et al., 2011). La distribution spatiale et temporelle des MP pourrait être influencée par ces seiches internes. Par ailleurs, les MP pourraient plus ou moins décanter dans la colonne d'eau selon leur morphologie. Une étude récente sur les fibres de PES a révélé que la vitesse de sédimentation est comprise entre 0,1 et 0,55 mm/s (Nguyen et al., 2022). Selon les auteurs, cette vitesse très faible pourrait engendrer des phénomènes de floculation biologique, de développement de biofilm mais aussi de bioaccumulation au sein des organismes aquatiques. Lorsque les MP sont colonisés, leur densité peut augmenter, ce qui accélère leur vitesse de sédimentation. Des particules initialement flottantes peuvent ainsi se mettre à couler en raison de la croissance du biofilm. Dans une étude *ex-situ* récréant l'environnement des Grands Lacs canadiens, Semcesen and Wells, (2021) ont noté que les petits MP (125 - 212  $\mu\text{m}$ ), de type PP, coulent plus rapidement (18 jours) que les grands MP (1 000 - 2 000  $\mu\text{m}$ , 50 jours). Cette observation pourrait s'expliquer par le fait le biofilm atteint plus rapidement une masse capable de compenser la flottabilité des petits MP, qui ont un volume moins important. Cette étude suggère également qu'il existe un gradient d'augmentation de la taille des MP en fonction de la distance par rapport à la source de MP. Ce phénomène est illustré dans la Figure 42.

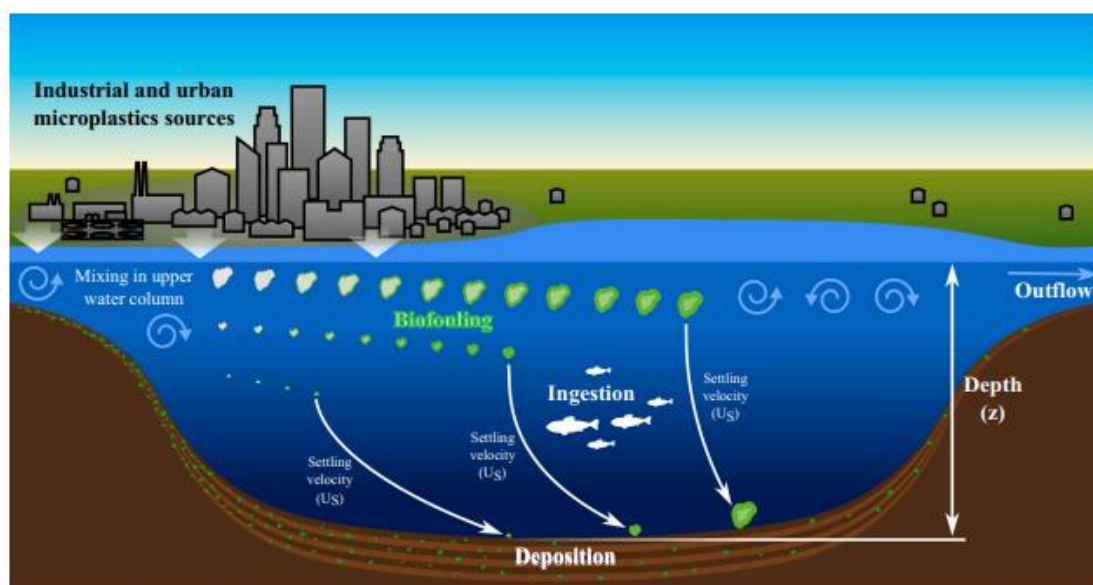


Figure 42 Schéma des sources et pertes des microplastiques dans les lacs (Semcesen and Wells, 2021)

La colonne d'eau ayant un volume plus important que la couche de surface pour les sites étudiés, elle pourrait avoir un effet de dilution sur la concentration des MP. Enfin, une accumulation de MP dans la couche de surface pourrait aussi être causée par un flux de décantation inférieur au flux entrant dans le lac. En comparant le nombre de MP présents dans la totalité de la colonne d'eau à celui dans la totalité de la couche de surface, il est observé que la contamination des MP n'est pas plus importante en surface que dans la colonne. Par conséquent, cela pourrait suggérer que les MP décantent dans la colonne d'eau et qu'il n'y a pas un effet d'accumulation dans la couche de surface (Figure 43). Toutefois, il serait intéressant de mettre cette hypothèse en relation avec la vitesse de sédimentation des MP.

### *Caractérisation des microplastiques*

La distribution polymérique au sein de la colonne d'eau a été comparée entre les deux sites. Comme pour la couche de surface, les polymères de type PE et PP sont majoritaires au sein des échantillons. Des différences significatives sont notées entre les sites Bourget-Annecy (Bourget  $n = 11$  ; Annecy  $n = 8$  ;  $p$ -value = 0,04) pour le PE. En effet, 75 % des MP identifiés au lac d'Annecy sont en PE contre 31 % au Bourget où le polymère le plus abondant est le PP (48 %) (Tableau 9). Pourtant, cette différence n'est pas observée dans la couche de surface. Toutefois, il est important de noter que ces différences se basent sur des échantillons avec un faible nombre de particules détectées.

La distribution en taille (50 - 300  $\mu\text{m}$ , 300 - 1 000  $\mu\text{m}$ , 1 000 - 5 000  $\mu\text{m}$ ) a également été observée. Une différence significative est notée pour la proportion de MP de tailles comprises entre 50 et 300  $\mu\text{m}$  ( $n = 29$  ;  $p$ -value = 0,03). Cette différence pourrait être liée à la concentration plus importante en masse de MP au lac du Bourget (647 ng de MP/ $\text{m}^3$ ) qu'au lac d'Annecy (223 ng de MP/ $\text{m}^3$ ). En effet, la colonne d'eau d'Annecy montre que 96 % des MP sont entre 50 et 300  $\mu\text{m}$  avec 75 % étant du PE. Tandis qu'au lac du Bourget, 70 % des MP sont entre 50 et 300  $\mu\text{m}$  mais seuls 31 % sont des PE. Par conséquent, il est possible que le lac du Bourget contienne une masse de MP plus importante que le lac d'Annecy à cause de la présence de MP de plus grandes dimensions et de densités plus élevées. Il convient cependant de souligner une nouvelle fois que ces hypothèses et résultats reposent sur des échantillons caractérisés par un faible nombre de particules détectées.

## Limites méthodologiques et hypothèses

Plusieurs hypothèses pourraient jouer sur la faible contamination de la colonne d'eau comme les turbulences générées par les courants et vents en surface, influençant leur distribution dans la colonne d'eau. Les zones d'un lac avec une faible turbulence de l'eau, telles que les baies abritées ou les zones peu profondes, pourraient être des endroits où les MP se concentrent dans les sédiments. La réduction de la turbulence dans ces zones pourrait favoriser la sédimentation et l'accumulation de MP. Une hypothèse supplémentaire pourrait être liée à l'utilisation de systèmes de prélèvement différents pour les échantillonnages de la surface et de la colonne d'eau. Dans le cas de la colonne d'eau, il est difficile de déterminer avec précision le volume filtré contrairement au système utilisé pour la couche de surface, à savoir le Dronamaran (*cf. Chapitre II*). Pour l'échantillonnage en surface, une surveillance visuelle est possible, alors que pour la colonne d'eau, il est difficile de savoir si le filet suit une trajectoire verticale ou diagonale en fonction des courants, ce qui peut affecter l'estimation du volume filtré.

## Estimations des stocks de microplastiques dans la matrice eau

Les estimations de stock de MP dans la matrice eau (colonne et surface) sont calculées à partir des concentrations moyennes en MP/m<sup>3</sup> et en ng de MP/m<sup>3</sup> (Tableau 11).

Lacs	Concentrations moyennes en MP/m <sup>3</sup>		Concentrations moyennes en ng de MP/m <sup>3</sup>	
	Colonne	Surface	Colonne	Surface
Bourget	0,3	27,4	650	42 000
Annecy	0,2	34,9	220	57 000
Merlet	nd	10,7	nd	26 000

Tableau 11 Concentrations moyennes en nombre et en masse de MP selon la matrice et le site

Afin de calculer les stocks de MP dans la matrice eau, il convient d'estimer les volumes d'eau de la colonne et de la surface du lac qui ont été échantillonnés de façon distincte (Tableau 12). Le volume de la surface de l'eau est calculé en multipliant la hauteur d'échantillonnage, soit 0,3 mètre, à la superficie du lac. Le volume de la couche de surface est ainsi estimé à  $1,3 \times 10^7$  m<sup>3</sup> pour le Bourget et  $8,3 \times 10^6$  m<sup>3</sup> pour Annecy. Le lac Merlet supérieur n'a pas fait l'objet d'échantillonnage sur la matrice colonne d'eau, seul le stock de MP en surface est estimé.

Lacs	Volumes (m <sup>3</sup> )	
	Colonne	Eau de surface
Bourget	$3,6 \times 10^9$	$1,3 \times 10^7$
Annecy	$1,0 \times 10^9$	$8,3 \times 10^6$
Merlet	nd	$1,5 \times 10^4$

Tableau 12 Volumes d'eau estimés de chaque matrice selon le site

Les estimations des stocks de MP dans les matrices surface de l'eau et colonne d'eau sont répertoriés dans la Figure 43, qui sera la ligne directrice de ces travaux de thèse complétée au fur et à mesure de l'avancée du manuscrit.

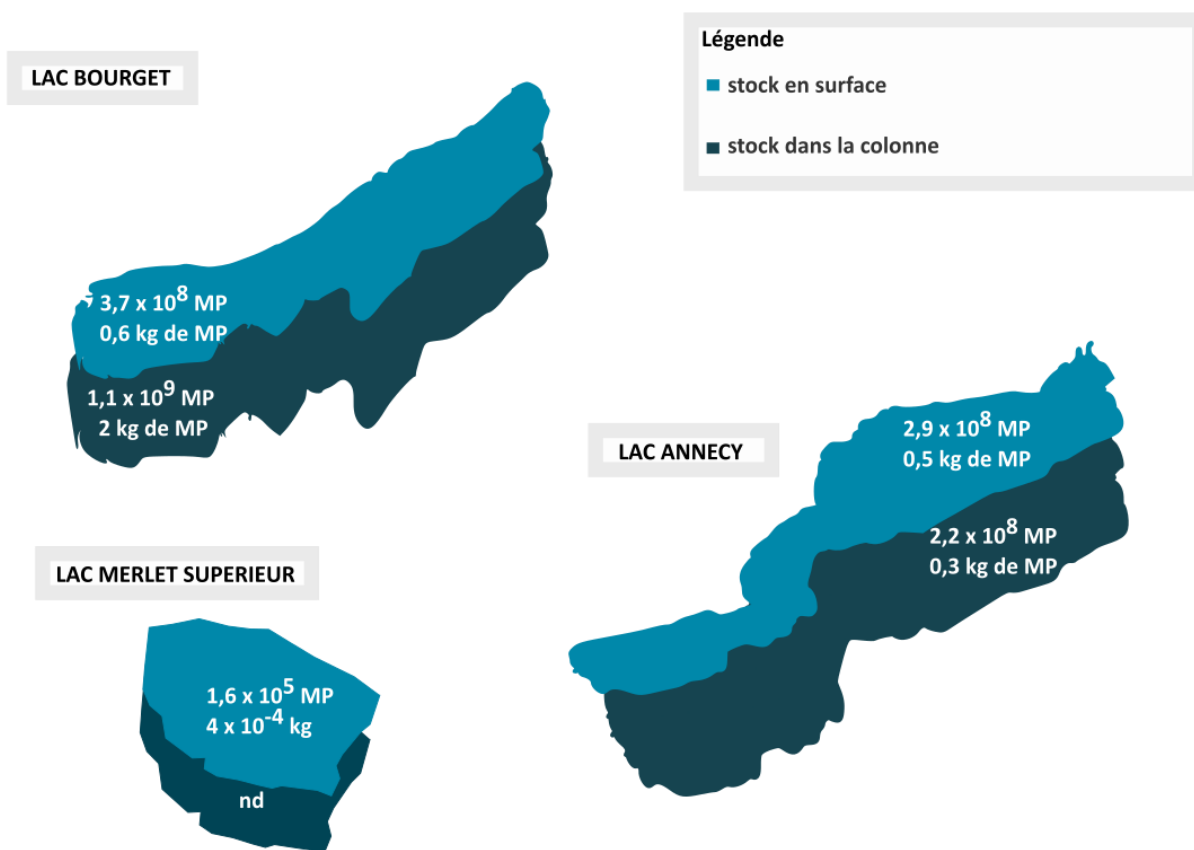


Figure 43 Estimations des stocks de MP en nombre et en masse dans la matrice eau (surface et colonne) à travers les sites étudiés

## Évaluation de la contamination aux microplastiques dans les sédiments lacustres

Dans le but d'améliorer la compréhension de la dynamique des MP en suspension dans la colonne d'eau, un suivi de la contamination des sédiments a été mis en place.

### Quantification des microplastiques

Les résultats (Figure 44, gauche) montrent des concentrations en nombre de MP pour le lac du Bourget comprises entre 1 200 et 4 300 MP/kg de sédiment (ps), entre 1 900 et 4 300 MP/kg pour le lac d'Annecy et entre 950 et 4 000 MP/kg pour le lac Merlet supérieur. En termes de masse (Figure 44, droite), le lac du Bourget présente des concentrations massiques variant de 5,0 à 17,4 mg de MP/kg, le lac d'Annecy de 2,0 à 89,0 mg de MP/kg et le lac Merlet supérieur de 0,3 à 12,3 mg de MP/kg. Les résultats sont répertoriés dans le Tableau 13.

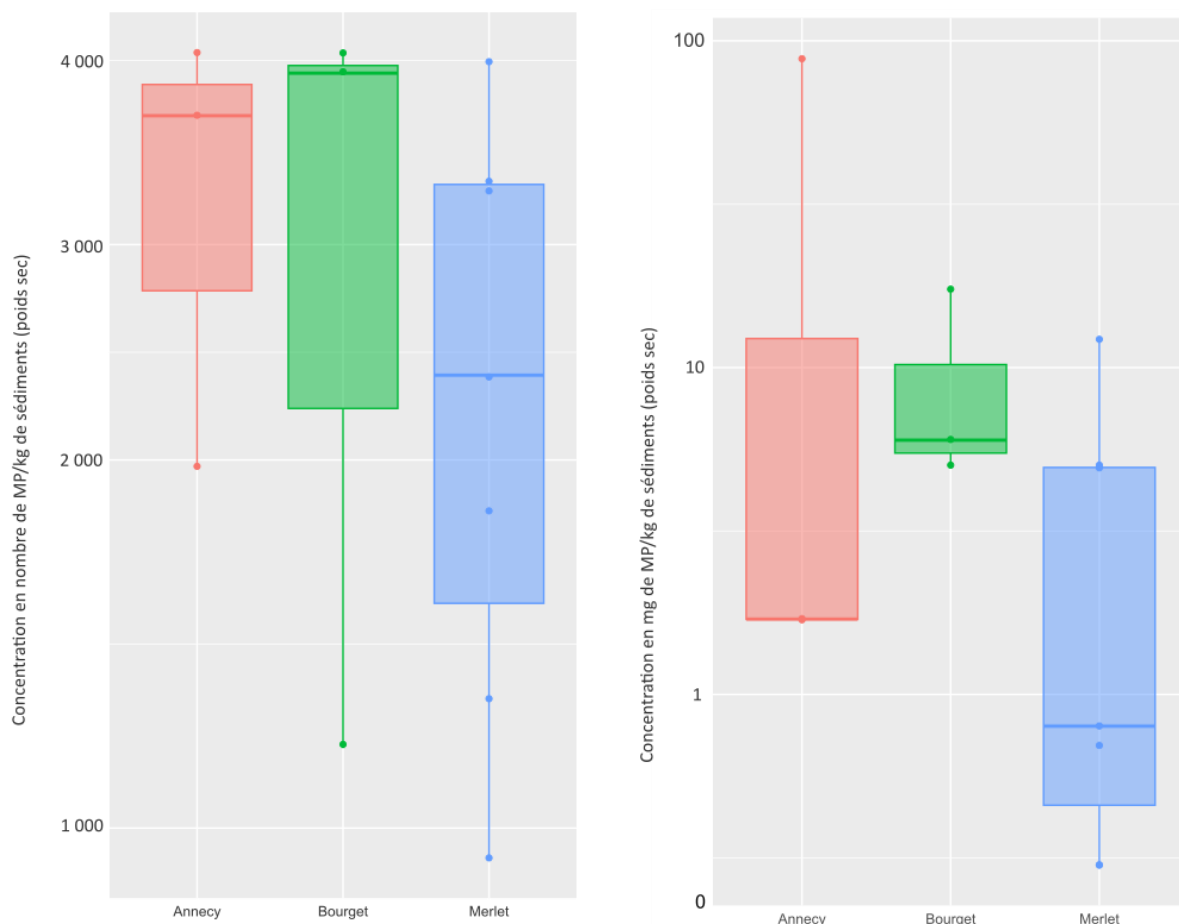


Figure 44 Représentation graphique des échantillons ponctuels de sédiments des lacs d'Annecy (n = 3), du Bourget (n = 3) et du Merlet supérieur (n = 7). Gauche : nombre de MP/kg de sédiments (ps). Droite : mg de MP/kg de sédiments (ps)



Lac	Concentration		Incertitude moyenne* (%)	Concentration		Incertitude moyenne* (%)	Distribution polymérique moyenne (%)					Distribution de taille moyenne (%)		
	moyenne	médiane		moyenne	médiane		PE	PP	PET	PVC	PS	50µm	300µm	1mm-
	en nb de MP/kg		en mg de MP/kg		-	-1mm						5mm		
Bourget	3 200	4 100	9	9,4	6,0	2	41	48	11	0	0	49	51	0
Annecy	3 400	3 800	19	30,7	1,7	10	38	27	23	6	6	67	22	11
Merlet	2 400	2 300	18	3,5	0,8	14	48	39	11	1	1	89	11	0

Tableau 13 Récapitulatif des résultats sur la matrice sédiment (échantillons ponctuels)

*\* cette incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II*

## *Variation spatiale de la contamination aux MP : comparaisons inter-sites*

Il est important d'établir un lien entre les résultats de la contamination aux MP des sédiments et les taux de sédimentation propres à chaque site. Au sein d'un lac, la sédimentation peut être affectée par divers facteurs d'ordres biologique, comme l'état trophique du lac, et physique, comme les caractéristiques du bassin versant (Trolle et al., 2008).

La connaissance des taux de sédimentation des lacs peut fournir des informations permettant de mieux comprendre la contamination des sédiments par les MP. En effet, un taux de sédimentation élevé pourrait entraîner une dilution des MP dans le sédiment, ce qui se traduirait par des concentrations plus faibles en MP que dans un lac avec un taux de sédimentation faible. Les carottages réalisés entre 2017 et 2019 ont montré que le lac du Bourget a des taux de sédimentation allant de 0,16 cm/an à 0,36 cm/an (Rapuc, 2022). Au lac d'Annecy une étude de Jean-Philippe Jenny a montré un taux de sédimentation de 0,183 cm/an (1986-2009) (Frossard et al., 2013). En ce qui concerne le lac Merlet supérieur, il n'existe pas de données sur le taux de sédimentation à notre connaissance. Toutefois, on peut se référer à d'autres lacs d'altitude tels que le lac de la Muzelle, où une étude a montré un taux de sédimentation de 0,5 cm/an en 2012/2013 et de 0,8 cm/an en 2014/2015 (Fouinat et al., 2017), ce qui est supérieur à celui du Bourget (5,3 g de sédiment/m<sup>2</sup>/jour selon nos estimations Tableau 14).

Il a été montré que l'urbanisation et la population sont des facteurs associés à un fort niveau de contamination en MP des sédiments lacustres (Sruthy and Ramasamy, 2017; Vaughan et al., 2017). Les données présentées dans la Figure 45 indiquent que les sites étudiés ont des concentrations en MP dans la matrice sédimentaire allant de 950 à 4 300 MP/kg de sédiments. En termes de masse, ces concentrations varient de 310 à 89 000 µg de MP/kg de sédiments. Aucune différence significative n'est observée entre les trois sites, que ce soit en nombre de MP ou en masse ( $n_{\text{BOURGET}} = 3$  ;  $n_{\text{ANNECY}} = 3$  ;  $n_{\text{MERLET}} = 7$  ;  $p\text{-value} > 0,05$ ). Toutefois, il est à noter que les lacs du Bourget et d'Annecy présentent un pic de concentration en masse de MP au niveau de leurs affluents (sites Embouchure Leysse et Doussard). En effet, le site Embouchure Leysse a révélé une concentration de 17 000 µg de MP/kg de sédiment et le site Doussard une

concentration de 89 000  $\mu\text{g}$  de MP/kg de sédiment. Ces affluents pourraient être une source d'apport de MP de grandes tailles et, par conséquent, de masses plus importantes.

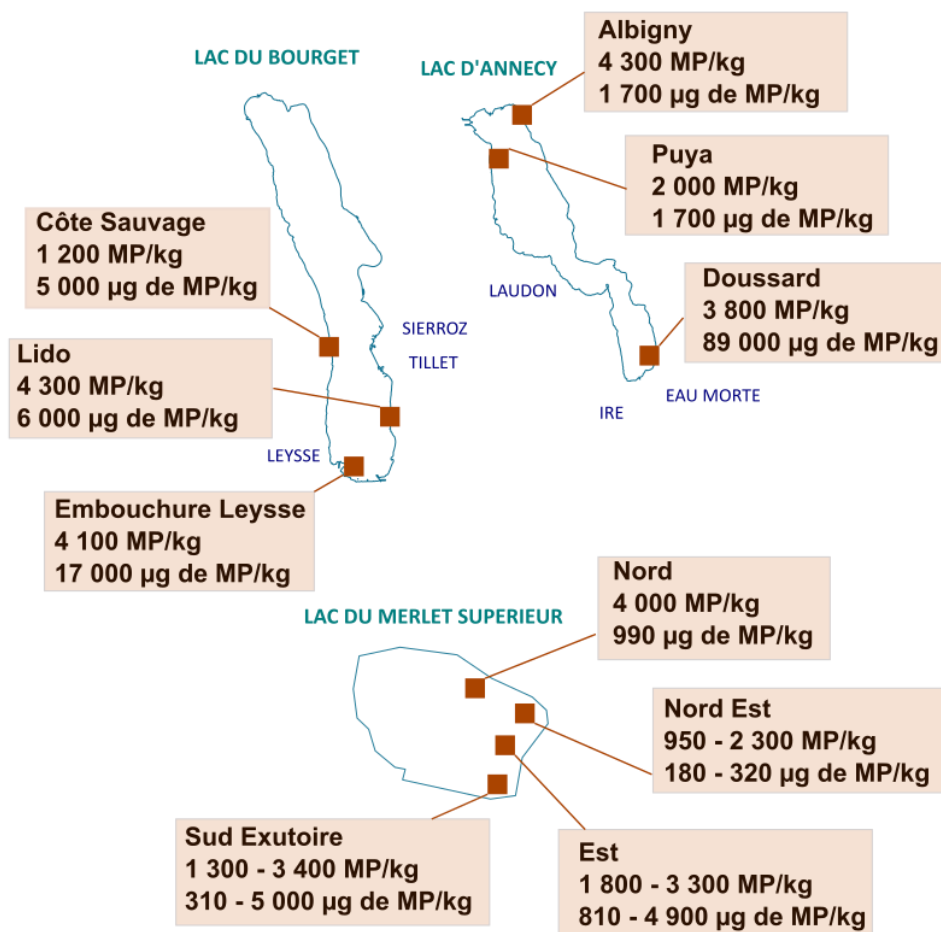


Figure 45 Contamination aux MP des sédiments (échantillons ponctuels) des trois sites lacustres

En examinant de manière approfondie, le site Doussard montre 33 % de MP entre 1 000 et 5 000  $\mu\text{m}$  tandis que les autres sites, Albigny et Puya, ne montrent aucun MP supérieurs à 1 000  $\mu\text{m}$ . Cela pourrait confirmer notre hypothèse. Cependant, le site Embouchure Lysse montre 62 % de MP entre 300 et 1 000  $\mu\text{m}$  et 38 % de MP entre 50 et 300  $\mu\text{m}$ . Cela est également noté pour le site Côte Sauvage avec 33 % de MP entre 50 et 300  $\mu\text{m}$  et 67 % entre 300 et 1 000  $\mu\text{m}$ . En revanche, le site Lido montre une prédominance de petit MP, 75 % entre 50 et 300  $\mu\text{m}$ . Par conséquent, il ne s'agit pas seulement d'une question de taille, mais aussi de polymère. Le site Doussard présente une concentration plus élevée de polymères de densités supérieures (type PVC) par rapport aux autres sites. Ainsi, ces différences de concentration de MP en termes de masse peuvent s'expliquer par une combinaison de deux facteurs : la taille des MP et le type de polymère. Des concentrations plus élevées de MP ont également été observées près des

affluents dans une étude menée sur le lac Tollense (Hengstmann et al., 2021). Ces résultats pourraient suggérer que les sites géographiquement proches des embouchures des affluents présentent une contamination en MP plus importante en termes de masse que les sites plus isolés ou situés à proximité de zones urbaines.

La contamination des sédiments du site Côte Sauvage du lac du Bourget, situé dans une zone géographique éloignée des sources potentielles de pollution urbaine, présente des niveaux similaires à ceux observés sur le site Lido, plus proche des zones urbanisées (présence de l'affluent Tillet, détourné au niveau de l'hippodrome d'Aix-les-Bains, au sein de l'agglomération). La proximité d'une zone urbaine ne peut donc pas être considérée comme le seul facteur influençant la contamination du sédiment par les MP. Selon les recherches d'Egessa et al. (2020), la concentration en MP diminue en s'éloignant du rivage. À l'inverse, dans le cas du lac Ontario, Corcoran et al. (2015) ont remarqué que l'abondance des MP dans les sédiments augmente en s'éloignant du rivage, en raison de la diminution de l'énergie des vagues et des turbulences causées par les affluents. Une autre étude récente a mis en évidence une faible corrélation entre l'abondance des MP dans les sédiments et l'économie locale ainsi que la densité de population (Yang et al., 2022). Ces données contradictoires suggèrent que d'autres facteurs pourraient influencer la contamination en MP des sédiments. Cette hypothèse est renforcée par les résultats obtenus au lac Merlet supérieur.

En effet, le lac Merlet supérieur présente des concentrations en nombre aussi élevées que celles des sites subalpins. Cependant, en termes de masse, les concentrations sont plus faibles, à l'exception des sites Sud Exutoire et Est (2022). Les lacs subalpins montrent en moyenne des concentrations en masse de MP/kg de sédiment supérieures à celles du lac Merlet supérieur. Cette observation pourrait être due aux différents vecteurs potentiels de MP aux lacs. Rappelons que le lac Merlet supérieur, selon notre hypothèse, ne serait affecté que par les dépôts atmosphériques, ce qui pourrait expliquer la concentration en masse de MP plus faible par rapport aux lacs subalpins qui sont soumis à d'autres sources de pollution par les MP (affluent, ruissellement, fragmentation de macroplastiques, etc.). Ces résultats sont étayés par la distribution de tailles des MP qui montrent que 89 % des MP des sédiments du lac Merlet sont de taille inférieure à 300  $\mu\text{m}$ . En revanche, les sites subalpins présentent entre 41 % et 51 % de MP supérieurs à 300  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, l'englacement du lac pourrait jouer un rôle dans le flux sédimentaire de MP. En effet, les MP pourraient être piégés dans la glace du lac pendant

l'hiver et être libérés lors de la fonte des glaces à la fin du printemps. Des études ont montré que la glace peut concentrer les MP dans sa structure pendant la congélation (Geilfus et al., 2019; Peeken et al., 2018). Par ailleurs, un taux de sédimentation important au lac Merlet supérieur pourrait avoir une action de dilution des MP. Cette hypothèse ne peut être vérifiée en raison d'absence de données sur le taux de sédimentation sur ce site. Enfin, une hypothèse supplémentaire pourrait être avancée pour expliquer le niveau similaire de contamination en nombre de MP dans les sédiments du lac Merlet par rapport aux lacs subalpins. Cette hypothèse est liée au fait que le lac Merlet est recouvert de glace pendant environ 8 mois par an et que son exutoire est en période d'étiage sévère pendant 2 mois, sans débit significatif. Ainsi, sur une année complète, les MP ne pourraient s'écouler par l'exutoire que pendant 2 mois, ce qui pourrait expliquer l'accumulation importante de MP dans les sédiments du lac Merlet.

### *Caractérisation des microplastiques*

La distribution polymérique des échantillons de sédiment ne présente pas de différences significatives entre les sites (Bourget n = 3 ; Annecy n = 3 ; Merlet n = 7 ; p-value > 0,05). Ce sont les polymères de type PE, PP et PET qui sont prédominants. Le site Doussard au lac d'Annecy montre une présence de 17 % de PS. Précédemment, la matrice eau de surface a montré une différence significative pour ce polymère. Le PVC est également présent à hauteur de 17 % sur ce site, tandis que les sites Puya et Albigny présentent entre 20 % et 50 % de PET. Sur le site Embouchure Leysse, les MP sont uniquement constitués de PP (100 %). Le Lido présente une majorité de PE (88 %), tandis que Côte Sauvage montre une composition plus variée avec des proportions égales de PE, PP et PET. En ce qui concerne le lac Merlet supérieur, les MP sont principalement constitués de PE, PP et PET.

La distribution en taille (50 - 300 µm, 300 - 1 000 µm, 1 000 - 5 000 µm) a également été observée. Au lac Merlet supérieur, 89 % des MP mesurent entre 50 et 300 µm et 11 % entre 300 et 1 000 µm, sans présence au-delà de ces gammes de taille. Au lac du Bourget, 49% de MP ont une taille comprise entre 50 et 300 µm, tandis que 51 % sont compris entre 300 et 1 000 µm. Au lac d'Annecy, on retrouve 11 % de MP entre 1 000 et 5 000 µm (provenant du site Doussard), 22 % entre 300 et 1 000 µm, et 67 % entre 50 et 300 µm. Ces variations dans

les gammes de tailles sont cohérentes avec l'éloignement des sources potentielles qui pourrait induire une fragmentation supérieure ou favoriser des particules initialement plus petites.

### *Accumulation des MP dans les sédiments lacustres*

L'étude du taux d'accumulation des MP dans les environnements lacustres revêt une importance cruciale pour comprendre l'évolution des concentrations en MP dans le temps. Jusqu'à présent, peu d'études ont été menées sur ce type de mesure (Ballent et al., 2016; Kallenbach et al., 2022; Y. Liu et al., 2022; Saarni et al., 2021). La dispersion et le dépôt des MP dans les milieux lacustres constituent un domaine de recherche récent. Effectivement, les dépôts sédimentaires des lacs constituent des réservoirs de particules de sol issues de l'érosion des bassins versants, déclenchée par les activités anthropiques ou les phénomènes météorologiques. Les activités agricoles intensives, la suppression de la végétation et l'irrigation sont des facteurs qui peuvent entraîner l'érosion des sols, tandis que les précipitations abondantes, les tempêtes de vent et les inondations peuvent accroître la sédimentation dans les lacs. En outre, la biomasse lacustre, comprenant les organismes planctoniques, algues et plantes aquatiques, ainsi que la précipitation de la calcite, peuvent également contribuer à l'augmentation de la sédimentation.

L'observation à long terme des flux de MP pourrait aider à comprendre les facteurs qui influencent la dynamique de sédimentation des particules de plastique. Ces informations seraient utiles pour modéliser l'accumulation future de MP, aider à déterminer les sources et vecteurs majeurs de MP, évaluer les risques et estimer l'impact ainsi que l'efficacité des méthodes de « dépollution » mises en place (Saarni et al., 2021).

### **Quantification de l'accumulation de microplastiques**

#### *Cas du Lac du Bourget*

Les échantillons de la trappe à sédiment du lac du Bourget couvrent trois périodes : du 25/01/2021 au 08/03/2021 (hiver 2021), du 22/03/2021 au 12/07/2021 (printemps/été 2021) et du 06/12/2021 au 31/01/2022 (hiver 2022). Les flux de MP sont compris entre 0,5 et 60,0 MP/m<sup>2</sup>/jour avec une moyenne de 28,9 MP/m<sup>2</sup>/jour (Figure 46) et une médiane de 30,5 MP/m<sup>2</sup>/jour. En termes de masses, les flux sont compris entre 240 et 90 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour avec une moyenne de 15 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour et une médiane de 3 400 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour. La distribution polymérique moyenne est constituée de 42 % de PE, 43 % de PP, 8 % de PET, 5

% de PS et 2 % de PVC. Concernant les gammes de taille de particules, 75 % sont situées entre 50 et 300  $\mu\text{m}$ , 23 % entre 300 et 1 mm et 2 % entre 1 et 5 mm (taille moyenne 240  $\mu\text{m}$ ). Aucune différence significative n'a été remarquée en ce qui concerne la distribution polymérique et la distribution de taille ( $n = 12$  ;  $p\text{-value} > 0,05$ ).

Les moyennes des flux de MP en période hivernale (2021 et 2022) et en période printemps/été (2021) sont de 33,8 et 42,5  $\text{MP}/\text{m}^2/\text{jour}$ , respectivement avec des moyennes de taux de sédimentation de 9,9 et 5,2  $\text{g}/\text{m}^2/\text{jour}$ , respectivement. Aucune différence significative ( $p\text{-value} > 0,05$ ) n'est observée en termes de flux de  $\text{MP}/\text{m}^2/\text{jour}$  entre les trois périodes considérées, à savoir l'hiver 2021 ( $n = 3$ ), le printemps-été 2021 ( $n = 6$ ) et l'hiver 2022 ( $n = 3$ ).

Il est tout de même observé que des épisodes de forts dépôts peuvent survenir par intermittence, alors que d'autres périodes montrent des flux faibles. Une étude menée sur le lac Haukivesi (Finlande) a analysé les variations temporelles de la sédimentation des MP (Saarni et al., 2021). Les chercheurs ont constaté que le taux de sédimentation le plus important a été enregistré pendant la saison hivernale, atteignant une valeur de 14,5  $\text{g}$  de sédiments/ $\text{m}^2/\text{jour}$ . Ce résultat rejoint les observations de notre étude qui a également relevé un taux de sédimentation maximal au cours de la période 03/01/2022 - 17/01/2022, avec une valeur de 23,9  $\text{g}/\text{m}^2/\text{jour}$ .

Par ailleurs, les chercheurs ont observé, tout comme nos résultats, que le flux de MP le plus élevé se produit au printemps. Toutefois, notre étude met également en évidence des flux de MP importants en hiver mais il est important de souligner que ces deux lacs ne sont pas dans les mêmes climats.

Le flux annuel moyen de MP pour le lac du Bourget est estimé à 14 000  $\text{MP}/\text{m}^2/\text{an}$ , inférieur à celui mesuré pour le lac Haukivesi (32 400  $\text{MP}/\text{m}^2/\text{an}$ ) (Saarni et al., 2021) mais supérieur à celui calculé à partir de carottes sédimentaires du Hampstead No. 1 Pond (Londres), qui est de 983  $\text{MP}/\text{m}^2/\text{an}$  (Turner et al., 2019). Cependant, les méthodes employées sont différentes et leur pertinence peut être discutée. En effet, la trappe piège les sédiments et permet une mesure précise du flux « instantané », mais peut avoir tendance à surestimer l'accumulation à long terme puisque la trappe empêche la remobilisation du sédiment déposé. Tandis que la carotte sédimentaire est davantage utilisée pour estimer la sédimentation nette sur le long

terme. Ces affirmations sont vraies pour les sédiments et pourraient également s'appliquer aux MP.

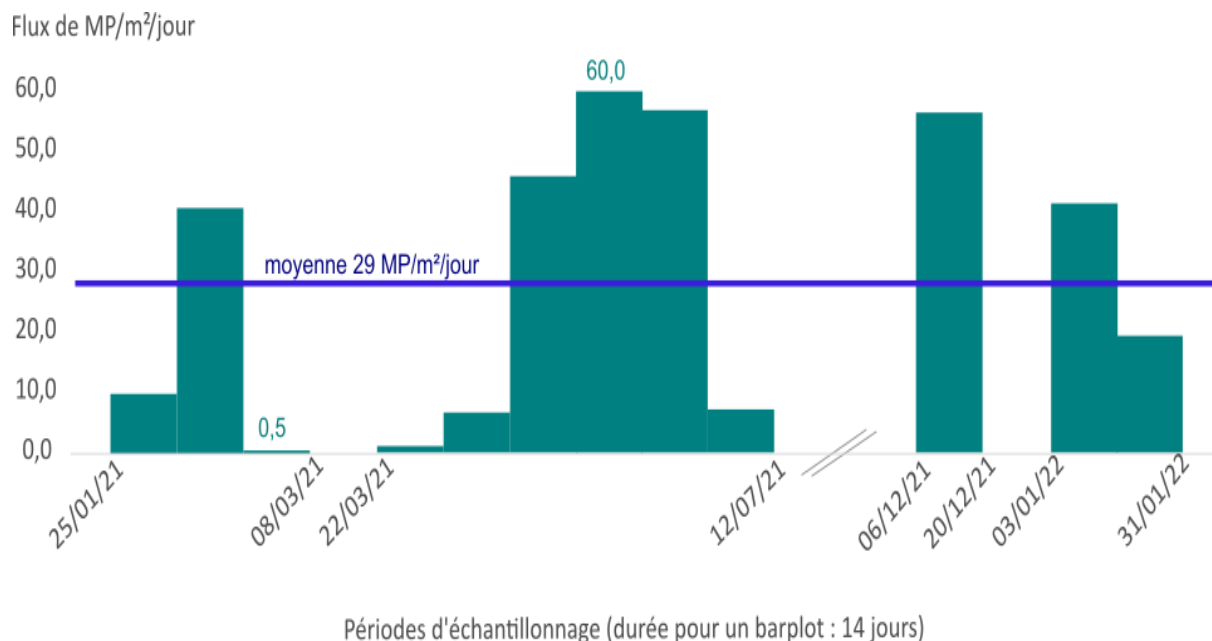


Figure 46 Représentation des flux de MP/m²/jour selon les périodes échantillonnées (trappe du Bourget)

#### Caractérisation des microplastiques

Les polymères de type PE et PP sont prédominants, représentant respectivement 42 % et 43 % de la composition totale en MP. D'autres polymères ont également été identifiés, tels que le PET (de 0 à 50 % selon les périodes), le PS (de 0 à 20 %) et le PVC (de 0 à 20 %). La présence de ces polymères, qui ont une densité inférieure à celle de l'eau, pourrait refléter une dynamique de biofouling. En effet, le développement de biofilm à la surface des MP ou leur incorporation à l'intérieur d'agrégats de matières organiques peut augmenter leur densité et faciliter leur sédimentation (Kaiser et al., 2017; Van Melkebeke et al., 2020). En ce qui concerne la taille, 75 % des MP identifiés sont compris entre 50 et 300 µm, 23 % entre 300 et 1 000 µm et 2 % entre 1 000 et 5 000 µm. Cela démontre que tous les types de MP, qu'ils soient composés de polymères ou de tailles différentes, ont la capacité de se déposer au fond du lac.

#### Influence des conditions météorologiques sur l'accumulation des MP

Les résultats obtenus ont été comparés aux débits moyens et maximaux des trois principaux affluents, aux cumuls mensuels de précipitations, aux vitesses moyennes et maximales de vent ainsi qu'aux taux de sédimentation (Tableau 14). Aucune corrélation significative n'a été



constatée entre le flux de MP (en nombre et en masse) et les variables étudiées ( $n = 12$  ;  $p$ -value  $> 0,05$ ). L'étude de Saarni et al. (2021) a suggéré que le flux de MP serait contrôlé par les conditions saisonnières plutôt que par le flux sédimentaire. Cependant, une autre étude menée sur la mer Baltique a démontré que le flux de MP augmente avec le taux de sédimentation (Enders et al., 2019). D'autre part, une étude récente menée sur le lac Ulansuhai (Chine) a révélé que le flux de MP est lié à la vitesse du vent. En effet, plus la vitesse du vent est élevée, plus l'abondance de MP à l'interface sédiments-eau est élevée, ce qui entraîne une intensification du mélange vertical des MP et donc une augmentation de leur flux (Y. Liu et al., 2022). Toutefois, nos résultats ne montrent pas de corrélation significative avec cette variable, ce qui pourrait être liée à un nombre limité d'échantillons.

### **Influence de la composition des sédiments : analyses complémentaires**

Cette partie vise à examiner la possible corrélation entre le flux de MP, le taux de sédimentation, le taux de matière organique, les apports terrigènes et la précipitation de la calcite. Par conséquent des mesures spécifiques ont été réalisées, notamment une analyse de perte au feu (PAF) suivie d'une spectrométrie par fluorescence des rayons X (XRF).

#### *Lien entre matière organique et microplastiques*

Les résultats obtenus à l'aide de la PAF (Tableau 14) ont permis de mesurer des taux de matières organiques allant de 6 % et 18 %, avec une moyenne de 8 %. Aucune corrélation n'a été révélée ( $p$ -value  $> 0,05$ ) entre le taux de matière organique ( $n = 9$ ) et le flux de MP ( $n = 9$ ), ce qui réfute l'hypothèse initiale selon laquelle l'intensité du flux de MP serait corrélée à l'abondance de la matière organique. Les résultats montrent que les moyennes des taux de matière organique en période hivernale (2021 et 2022) et en période printemps/été (2021) sont de 9,3 % et 7,0 %, respectivement.

	Période	Taux de matière organique (%)	Taux de sédimentation (g/m <sup>2</sup> /j)	Flux de MP/m <sup>2</sup> /jour
Hiver 2021	25/01/21 - 08/02/21	6,34	9,7	10,1
	08/02/21 - 22/02/21	8,35	2,4	40,8
Printemps/été 2021	17/05/21 - 31/05/21	8,57	3,4	46,0
	31/05/21 - 14/06/21	7,17	6,6	60,0
	14/06/21 - 28/06/21	6,20	6,0	56,9
	28/06/21 - 12/07/21	6,05	4,6	7,2
Hiver 2022	06/12/21 - 20/12/21	17,67	8,1	56,5
	03/01/22 - 17/01/22	7,50	23,9	41,5
	17/01/22 - 31/01/22	6,40	5,6	20,1

Tableau 14 Résultats de la méthode PAF : taux de matière organique en fonction de la période échantillonnée et du flux de MP/m<sup>2</sup>/jour.

#### *Lien entre composition chimique et microplastiques*

Les résultats de l'analyse XRF ont mis en évidence des taux d'oxyde d'aluminium (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) compris entre 4,42 % et 11,18 %, de dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>) entre 27,06 % et 44,05 % et d'oxyde de calcium (CaO) entre 29,80 % et 56,45 % (Tableau 15). Aucune corrélation n'a été observée entre les composés quantifiés et la masse de sédiments, le flux de MP ou encore le taux de matière organique (n = 9 ; p-value > 0,05).

Les débits des affluents (maximaux et moyens) ainsi que les cumuls mensuels des hauteurs de précipitations ont été corrélés avec les taux des composés quantifiés. Seules les variables débit moyen du Tillet et taux d'Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ont révélé une tendance vers une corrélation positive (n = 9 ; p-value = 0,08 ; rho = 0,63). Par ailleurs, une corrélation significative positive a été notée entre les composés Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et SiO<sub>2</sub> (n = 9 ; p-value = 0,01 ; rho = 0,82) indiquant une variation simultanée dans le même sens. Des corrélations significatives négatives sont observées entre SiO<sub>2</sub> et CaO (n = 9 ; p-value = 0,00005 ; rho = - 0,98), Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et CaO (n = 9 ; p-value = 0,003 ; rho = -0,88) indiquant une variation simultanée en sens inverse.

	Période	Taux de Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	Taux de SiO <sub>2</sub> (%)	Taux de CaO (%)	Flux de MP/m <sup>2</sup> /jour
Hiver 2021	25/01/21 - 08/02/21	10,55	39,04	34,07	10,1

	08/02/21 - 22/02/21	11,18	43,49	29,80	40,8
Printemps/été 2021	17/05/21 - 31/05/21	9,22	44,05	32,38	46,0
	31/05/21 - 14/06/21	7,58	37,35	42,25	60,0
	14/06/21 - 28/06/21	5,49	31,06	51,36	56,9
	28/06/21 - 12/07/21	4,42	27,06	56,45	7,2
Hiver 2022	06/12/21 - 20/12/21	5,50	28,33	53,54	56,5
	03/01/21 - 17/01/22	10,45	38,02	35,67	41,5
	17/01/22 - 31/01/22	10,10	37,40	37,14	20,1

Tableau 15 Résultats de la méthode XRF : taux de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub> et CaO en fonction de la période échantillonnée et du flux de MP/m<sup>2</sup>/jour

### Estimations des stocks et flux de microplastiques

En supposant que les sédiments sont répartis de manière égale sur toute la surface du lac et que la superficie du fond du lac correspond à la superficie du lac, les estimations de stock de MP dans la matrice sédimentaire sont calculées (Figure 47). La profondeur d'échantillonnage concerne les 10 premiers centimètres de sédiments. En considérant une porosité du sédiment proche de 80 %, la masse sèche de sédiment est d'environ 52 kg par m<sup>2</sup>. Pour ces concentrations moyennes de 3 368 MP/kg et 9 500 µg de MP/kg de sédiment du lac du Bourget, 3 368 MP/kg et 31 000 µg de MP/kg de sédiment du lac d'Annecy, on obtient 1,7 × 10<sup>5</sup> MP/m<sup>2</sup> et 0,5 g de MP/m<sup>2</sup> dans les sédiments du lac du Bourget, et 1,8 × 10<sup>5</sup> MP/m<sup>2</sup> et 1,6 g de MP/m<sup>2</sup> dans les sédiments du lac d'Annecy.

Le stock dans les sédiments du lac du Bourget, atteint 7,6 × 10<sup>12</sup> MP et 22 tonnes de MP contre 5,0 × 10<sup>13</sup> MP et 44 tonnes de MP pour le lac d'Annecy. Ces stocks, correspondant à une épaisseur de sédiment de 10 cm, équivalent à 40 ans de dépôt en admettant une accumulation moyenne de 0,26 cm/an (Rapuc, 2022). Le lac Merlet montre un stock de 6,2 × 10<sup>9</sup> MP et 5 kg de MP. Le temps d'accumulation de stock, d'une épaisseur similaire aux lacs subalpins, ne peut pas être estimé avec certitude du aux problèmes techniques rencontrés avec la trappe à sédiments du Merlet (cf. Chapitre II). En se basant sur le taux de sédimentation moyen de 0,7 cm/an (à partir des données mesurées au lac de la Muzelle, lac d'altitude des Écrins par Fouinat et al. (2017) en 2012/2013 (0,5 cm/an) et 2014/2015 (0,8 cm/an), on peut estimer un temps équivalent à 15 ans.

Le stock généré annuellement dans le lac du Bourget égale  $1,9 \times 10^{11}$  MP et 550 kg de MP contre  $1,3 \times 10^{12}$  MP et 1 100 kg de MP dans le lac d’Annecy. Ces données sont cohérentes avec le flux sédimentaire de MP mesuré égal à  $5,5 \times 10^{11}$  MP/an et 240 kg de MP/an à l’aide de la trappe à sédiments implantée en rive est du lac du Bourget.

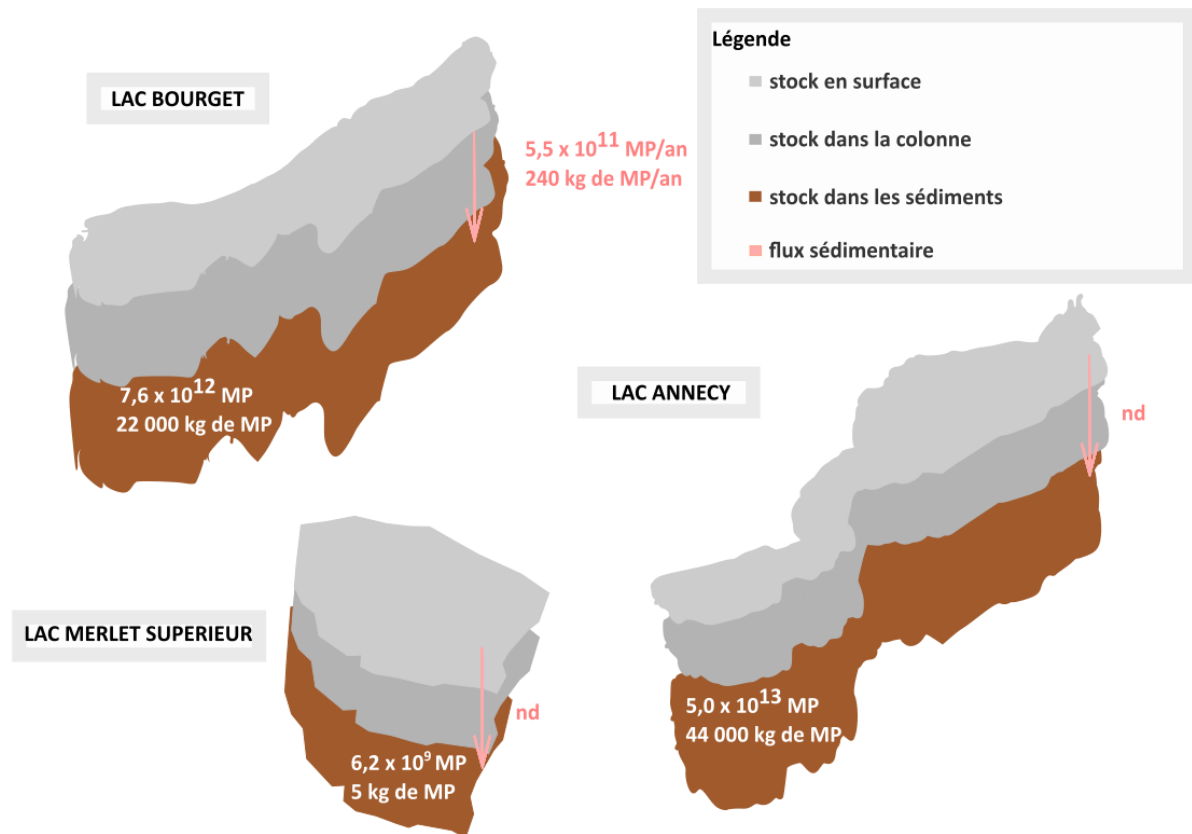


Figure 47 Estimations des stocks de MP en nombre et en masse dans la matrice sédimentaire sur les dix premiers centimètres et estimation du flux sédimentaire à travers les sites étudiés

## Conclusion du chapitre

Nos résultats mettent en évidence la présence généralisée de MP dans tous les sites étudiés et matrices environnementales. Cette observation suggère que les écosystèmes lacustres jouent un rôle clé dans le cycle de la pollution plastique.

Le lien supposé direct entre quantité de MP dans un environnement lacustre, l’urbanisation des rivages, et la pression démographique n’est pas confirmé par les données recueillies, qui indiquent une contamination similaire entre les sites d’étude, qu’ils soient situés en zones alpines ou subalpines et proches ou éloignés des zones anthropisées. Ces résultats sont aussi

constatés par Beteler et al. (2021) : les lacs dont les rivages sont urbanisés ou non montrent des contaminations en MP similaires.

Les sédiments lacustres sont plus contaminés que l'eau de surface, comme relevé par Yang et al. (2022). La faible concentration de MP en surface et dans la colonne d'eau suggère une sédimentation rapide des MP dans la colonne d'eau et que les MP flottants sortent rapidement du lac par l'exutoire sans pénétrer dans la colonne d'eau. Cette hypothèse est examinée dans le prochain chapitre.

Aucune corrélation significative n'a pu être établie entre la variation spatio-temporelle des concentrations dans l'eau et les paramètres météorologiques (brassage, stratification, débit des affluents, pluie, vent, etc.). De même, les flux de sédimentation des MP sont indépendants des conditions météorologiques ou de la composition des matières en décantation (taux de matière organique, concentration en minéraux).

Bien que la densité des polymères et la forme des particules soient parfois considérées déterminants pour la sédimentation des MP dans les milieux lacustres (Kowalski et al., 2016), les polymères identifiés dans cette étude ne sont pas significativement différents dans l'eau de surface, dans la colonne d'eau ou dans le sédiment. Les facteurs hydrodynamiques, la formation de biofilms ou le piégeage de MP dans les matières en suspension pourraient contribuer à l'homogénéité des polymères identifiés.

## | Chapitre IV |

# Sources et vecteurs de la pollution aux microplastiques dans les milieux lacustres



Dans ce quatrième chapitre, sont examinées et quantifiées les sources d'émission de MP dans l'environnement lacustre : les dépôts atmosphériques, les différents affluents des lacs subalpins (Bourget et Annecy) en tant que potentiels vecteurs des sources urbaines, domestiques et agricoles de MP. Afin d'affiner les contributions de ces dernières sources, des ERU épurées, des eaux pluviales de ruissellement en zone urbaine ont été prélevées et analysées sur différents sites dans les bassins versants des lacs d'Annecy et du Bourget. L'objectif de ce chapitre est de déterminer la(les) source(s) et le(s) vecteur(s) majeure(s) de MP aux milieux lacustres. Enfin, pour compléter les bilans de masse, les concentrations et flux aux exutoires des lacs du Bourget, d'Annecy et du Merlet seront déterminés.



## Retombées atmosphériques

La méthodologie de quantification des flux de MP déposés depuis l’atmosphère est détaillée avec une comparaison intra-site (Bourget), permettant d’évaluer l’incidence de la fréquence d’échantillonnage, de la pluviométrie et de la géographie locale. Ensuite, une comparaison inter-sites (lacs du Bourget, d’Annecy et du Merlet) permet d’évaluer les fluctuations des flux en fonction de la géographie régionale et des conditions météorologiques.

### *Importance du choix du site et de la méthode de prélèvement*

Les caractéristiques locales (topographie, végétation, etc.) d’un site pourrait avoir un impact sur la collecte des MP présents dans les retombées atmosphériques. Les retombées dans le bassin versant du lac du Bourget (BO) ont fait l’objet d’études sur deux zones distinctes. La **Figure 48** met en évidence les disparités relatives à l’occupation des sols entre le site CEN, situé dans un espace naturel protégé au sud du lac du Bourget, et le site BU, situé dans la zone urbanisée de Savoie Technolac.



Figure 48 Photographie aérienne des deux zones de collecte des retombées atmosphériques sur le site du lac du Bourget (Google Earth)

Une première campagne de mesures a été réalisée sur le site BU (n = 10, entre novembre 2020 et mai 2022) avec une unique jauge Owen, puis, sur le site CEN (n = 16, entre juin 2022 et novembre 2022). Les flux sont compris entre 2,5 et 22,1 MP/m<sup>2</sup>/jour (640 et 160 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour) sur BU, entre 0,5 et 33,1 MP/m<sup>2</sup>/jour (140 et 8 100 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour) sur CEN.

Les deux sites présentent des flux similaires en nombre et type de polymères (Tableau 16). Cependant, une abondance supérieure de MP de taille importante (6% de MP entre 1 et 5 mm) est observée sur BU, donnant un flux moyen en masse supérieur, mais avec un impact limité sur le flux médian. Deux échantillons sur dix révèlent une présence de particules de grande taille (4 999  $\mu\text{m}^*$  et 3 301  $\mu\text{m}^{**}$ ), entraînant une augmentation significative du flux moyen en masse de MP (700 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour\* et 320 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour\*\*).

Ces deux échantillons ont été collectés sur les périodes du 11/12/2020 au 08/01/2021\* et, du 20/06/2021 au 20/07/2021\*\*. Pendant la première période\*, les précipitations totales ont été de 102,5 mm (Météo France), tandis que la seconde période\*\* a enregistré 210,0 mm de précipitations (Météo France). Les autres périodes sont caractérisées par des hauteurs de précipitations comprises entre 5,6 et 98,5 mm. Au vu de ces résultats, il nous a paru nécessaire d'étudier quels facteurs, en plus des précipitations, peuvent influencer le dépôt de MP (exemples : *direction et vitesse du vent*).

Lac	Flux		Incertitude moyenne*	Flux		Incertitude moyenne*	Distribution polymérique moyenne					Distribution de taille moyenne (%)		
	moyen	médian		moyen	médian		(%)					50µm	300µm	1mm-
	nb de MP/m <sup>2</sup> /jour		(%)	ng de MP/m <sup>2</sup> /jour		(%)	PE	PP	PET	PVC	PS	-	-1mm	5mm
Bourget CEN	6,6	3,6	19	13 000	9 800	13	37	21	29	13	0	68	30	2
Bourget BU	7,4	5,7	23	110 000	12 000	14	30	27	21	16	6	70	24	6

Tableau 16 Récapitulatif des résultats sur les dépôts atmosphériques sur les deux sites du lac du Bourget

*\* l'incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II*

Quatre jauges Owen ont été implantées sur CEN pour évaluer d'une part l'influence de la périodicité de collecte des échantillons et pour distinguer d'autre part les flux déposés par temps sec et par temps de pluie. Une jauge est relevée toutes les deux semaines (sur une période de deux mois) alors qu'une seconde jauge n'est relevée qu'au bout de deux mois. Deux autres jauges sont équipées d'un volet obturateur et de capteurs de pluie (cf. *Chapitre II*).

Pendant la première période d'échantillonnage (*Figure 49*, haut), du 27/07/2022 au 23/09/2022, le flux moyen calculé à partir des quatre échantillons prélevés toutes les deux semaines est de 10,7 MP/jour/m<sup>2</sup>, soit 2 fois supérieur à celui calculé à l'aide de l'échantillon prélevé au bout des deux mois. Par ailleurs, le flux calculé par la somme des flux mesurés en temps sec et en temps de pluie est de 7,1 MP/jour/m<sup>2</sup>, soit non significativement différent du flux mesuré sur deux mois avec la jauge récoltant indifféremment dépôts secs et dépôts humides.

Pendant la seconde période d'échantillonnage (*Figure 49*, bas), du 23/09/2022 au 30/11/2022, le flux moyen calculé à partir des quatre échantillons prélevés toutes les deux semaines est de 7,9 MP/jour/m<sup>2</sup>, soit 3 fois supérieur à celui calculé à l'aide de l'échantillon prélevé au bout des deux mois. Par ailleurs, le flux calculé par la somme des flux mesurés en temps sec et en temps de pluie est de 2,9 MP/jour/m<sup>2</sup>, soit non significativement différent du flux mesuré sur deux mois avec la jauge récoltant indifféremment dépôts secs et dépôts humides.

Une fréquence d'échantillonnage élevée (toutes les deux semaines) permet une collecte plus efficace des MP, évitant la remobilisation des particules déposées en temps sec sur les parois de la jauge à la faveur d'un coup de vent. En augmentant la fréquence d'échantillonnage (les parois de la jauge sont rincées à l'eau ultrapure à chaque récupération), le piégeage des particules est optimisé. Toutefois, l'absence de différence entre les dépôts totaux (réalisés avec une jauge unique) et la somme « dépôts secs + dépôts humides » (réalisés avec les jauges occultantes) contredisent ces résultats. Les flux de dépôt sec sont toutefois très inférieurs au flux de dépôt humide, suggérant une influence des précipitations sur le dépôt des MP sur les surfaces continentales.

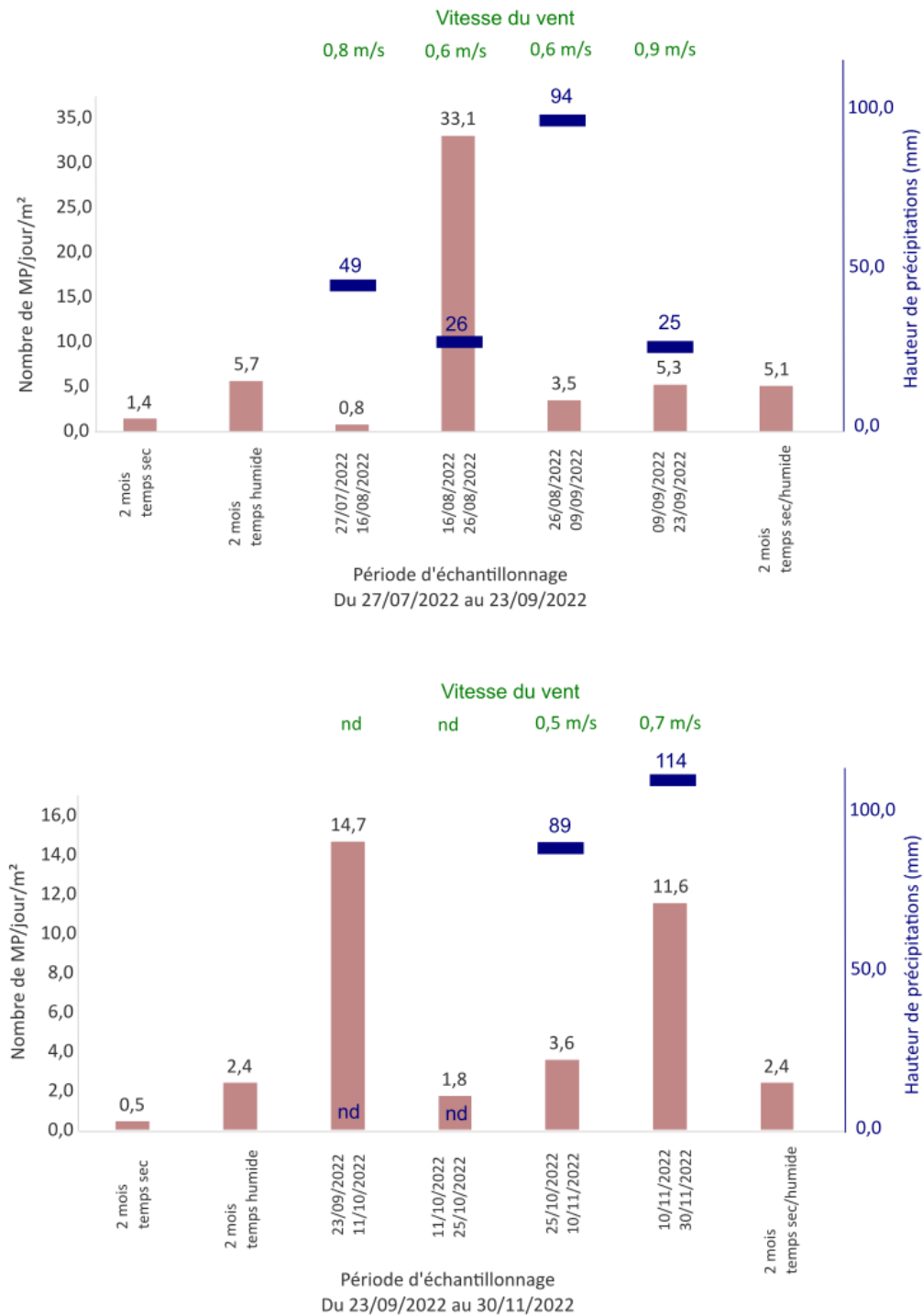


Figure 49 Représentation graphique des deux périodes d'échantillonnages sur le site CEN au Bourget-du-Lac. Les hauteurs de précipitations sont déterminées à partir du pluviomètre à auget basculant installé sur le site, nd correspond à un manque de données par soucis technique (saturation de la mémoire)

La collecte des échantillons sur le site CEN (en période automnale) a pu être perturbée par la présence de nombreuses feuilles dans les échantillons. Malgré le rinçage minutieux de chaque

feuille, des MP ont pu rester piégés à leur surface, diminuant ainsi les valeurs de flux en proportion du nombre de feuilles (plus nombreuses après deux mois qu’après deux semaines).

### Quantification des microplastiques

Tous les échantillons collectés sur les différents sites ont montré la présence significative de MP (Tableau 17). Les flux (Figure 50, gauche) varient entre 0,5 et 33,1 MP/m<sup>2</sup>/jour sur les sites du Bourget-du-Lac (BO) au sud du lac du Bourget, entre 1,4 et 15,6 MP/m<sup>2</sup>/jour sur le site du Veyrier-du-Lac (VE) à l’est du lac d’Annecy, entre 7,9 et 18,8 MP/m<sup>2</sup>/jour sur les sites du Merlet supérieur (ME). Les flux massiques (Figure 50, droite) varient de 140 à 160 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour pour BO, de 250 à 29 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour pour VE et de 1 500 à 300 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour pour ME.

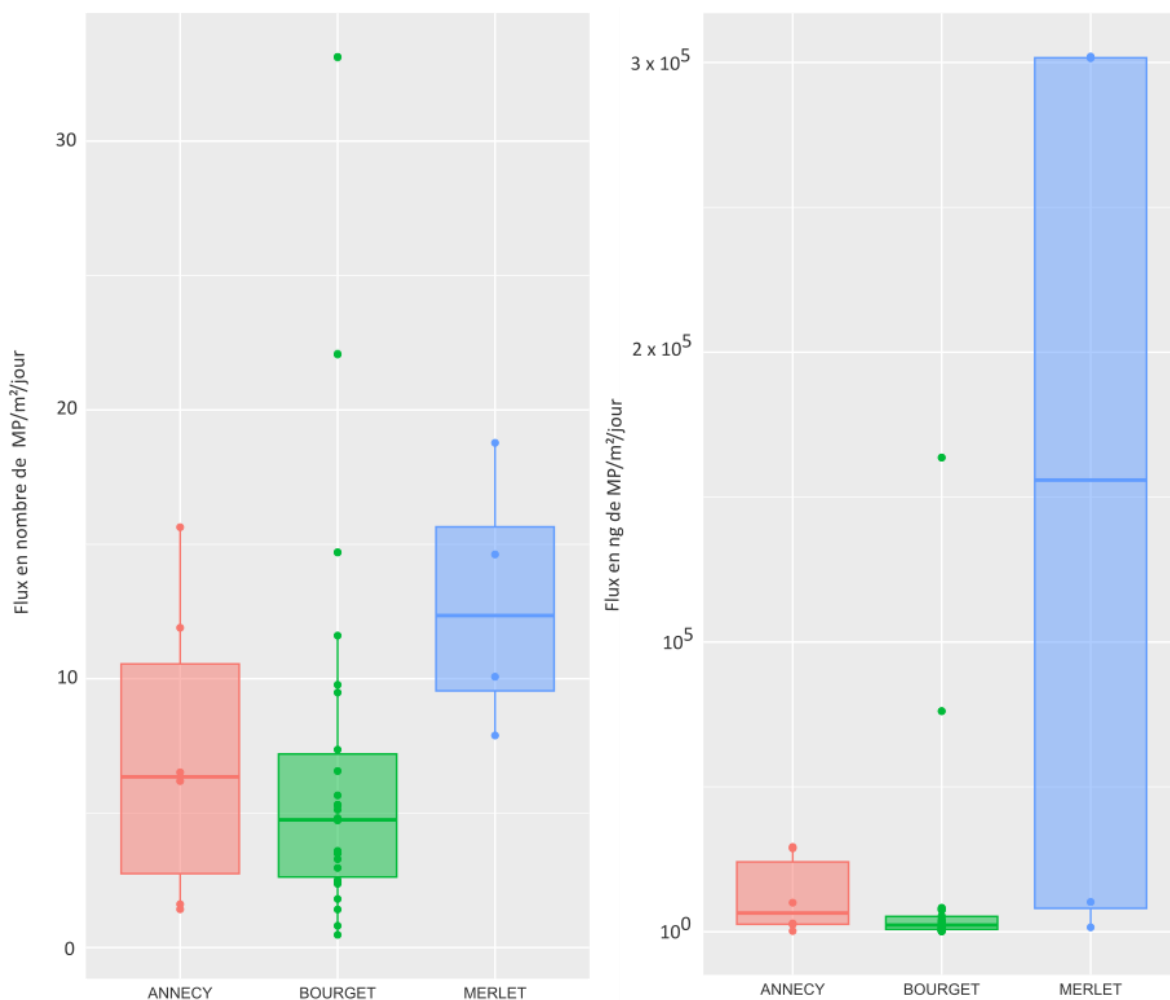


Figure 50 Représentation graphique des flux de MP au sein des retombées atmosphériques sur les sites du lac du Bourget (n = 24, zones CEN+BU), d’Annecy (n = 6) et du Merlet supérieur (n = 4) (nombre MP/m<sup>2</sup>/jour).

Gauche : flux en nombre de MP/m<sup>2</sup>/jour. Droite : flux en ng de MP/m<sup>2</sup>/jour

Aucune différence significative (test de Wilcoxon) n'est observée entre les sites BO-VE, VE-ME et les zones BU-CEN, que ce soit en nombre de MP ou en masse ( $n_{BO} = 24$  ;  $n_{CEN} = 14$  ;  $n_{BU} = 10$  ;  $n_{VE} = 6$  ;  $n_{ME} = 4$  ;  $p\text{-value} > 0,05$ ). En revanche, on note une différence significative en nombre de MP ( $p\text{-value} = 0,03$ ) et en masse ( $p\text{-value} = 0,03$ ) pour les sites BO-ME ainsi qu'entre la zone CEN et le site ME, en nombre de MP ( $p\text{-value} = 0,03$ ) et en masse ( $p\text{-value} = 0,04$ ).

Les dépôts importants de MP sur le site du Merlet pourraient être dus au transport atmosphérique depuis des sources urbaines et à la fréquentation touristique.

### Caractérisation des microplastiques

La distribution en taille des MP est identique pour les trois lacs : 68 % à 76 % des MP ont une taille comprise entre 50 et 300  $\mu\text{m}$ , 20 % à 28 % ont une taille entre 300 et 1 000  $\mu\text{m}$ , et enfin, entre 3 % et 4 % sont de taille comprise entre 1 000 à 5 000  $\mu\text{m}$ . Les dépôts atmosphériques observés sur les trois lacs sont principalement composés de PE (de 14 % à 31 %), de PP (de 26 % à 31 %) et de PET (de 27 % à 49 %), mais contiennent également du PS et du PVC. Au lac Merlet supérieur, la présence de PET est particulièrement élevée (49 % en moyenne). La prédominance de PET pourrait être liée à la pratique d'activités de plein air à proximité du site (randonnée), et l'utilisation de textiles synthétiques. De plus, le site est localisé sous les vents dominants provenant de la station de ski de Courchevel. Une potentielle contamination des jauges collectrices ne peut être exclue car elles étaient accessibles aux promeneurs ; ce qui pourrait expliquer les valeurs élevées et la prédominance du PET, polymère entrant dans la composition de nombreux textiles.

Les flux journaliers ( $\Phi_{\text{dépôts atmosphériques}}$ ) pour chaque site sont présentés dans le Tableau 17.

Les flux sont calculés selon :

$$\Phi_{\text{dépôts atmosphériques}} = \frac{\text{Nombre ou Masse MP}}{\text{Durée P}} \div 0,483$$

avec **Nombre ou Masse MP** : nombre ou masse totale de MP détectés sur la période échantillonnée, **Durée P** : durée de la période (en jours) et **0,483** correspondant à la surface de collecte ( $\text{m}^2$ ).

Lac	Flux		Incertitude moyenne* (%)	Flux		Incertitude moyenne* (%)	Distribution polymérique moyenne (%)					Distribution taille moyenne (%)			
	moyen	médian		moyen	médian							50µm	300µm	1mm-	
	nb de MP/m <sup>2</sup> /jour		ng de MP/m <sup>2</sup> /jour						PE	PP	PET	PVC	PS	- 300µm	-1mm
Bourget (BU/CEN)	6,7	4,8	21	12 000	2 300	14	31	26	27	13	3	68	28	4	
Annecy (VE)	7,2	6,4	17	12 000	6 500	10	17	26	31	11	15	76	20	4	
Merlet (ME)	12,9	12,4	16	150 000	160 000	5	14	31	49	4	2	71	26	3	

Tableau 17 Récapitulatif des résultats sur les dépôts atmosphériques sur les trois sites du Bourget, d'Annecy et du Merlet

\* l'incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II



## Comparaison inter-sites

Le flux moyen de MP au Merlet est presque 2 fois plus important en nombre de particules que les sites BO et VE. Le flux moyen massique est, de plus, près de 13 fois supérieur aux sites BO et VE. Ces résultats contredisent l'influence majeure des zones urbaines sur les flux de MP atmosphériques. Cependant, la comparaison inter-sites est délicate étant donné que les fréquences d'échantillonnages diffèrent d'un site à l'autre (*cf. section Importance du choix du site et de la méthode prélèvement*).

Les flux massiques varient beaucoup au Merlet : deux échantillons correspondent à des flux élevés (300 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour), tandis que les deux autres échantillons correspondent à des valeurs faibles (1 500 et 10 000 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour). Ces variations sont liées à la taille des MP puisque la nature des polymères (donc leur densité) ne varie pas. Les tailles maximales observées pour chaque échantillon sont respectivement de 4 999 µm, 2 279 µm, 183 µm et 791 µm. La présence de MP de grandes dimensions pourrait s'expliquer par une contamination directe des jauges Owen par le passage de personnes à proximité directe.

Les flux de dépôts atmosphériques de MP recensés dans la littérature varient entre 9 et 771 MP/m<sup>2</sup>/j (Figure 7), permettant d'estimer un flux moyen « mondial » de 209 particules/m<sup>2</sup>/j (*cf. Chapitre I*). Les flux mesurés sur les trois lacs de cette étude sont dans la gamme basse de la littérature avec des valeurs comprises entre 7 et 13 MP/m<sup>2</sup>/jour (Tableau 17). Bergmann et al. (2019) a estimé le flux de MP déposés depuis l'atmosphère dans les Alpes suisses et bavaroises compris de  $66 \pm 60$  (0 à 308) MP/m<sup>2</sup>/an. Dans ce flux, 80 % des MP ont des dimensions inférieures à 25 µm alors que les flux mesurés sur BO, VE ou ME quantifient uniquement les MP d'une taille supérieure à 50 µm.

## Influence des conditions météorologiques

Les conditions météorologiques constituent des facteurs susceptibles d'influencer le transport (vitesse du vent, courants atmosphériques d'altitude, etc.) et le dépôt des MP sur les surfaces continentales (intensité des précipitations, forme des précipitations, etc.). Des corrélations positives ont été établies entre le flux de dépôt de MP et l'intensité des précipitations météorologiques, ou la fréquence et l'intensité du vent dans les Pyrénées (Allen et al., 2019). Toutefois, Bergmann et al. (2019) n'ont pas trouvé de corrélation entre vitesse du vent et flux de MP dans les Alpes suisses et allemandes.

Durant nos travaux, aucune corrélation significative n'a pu être observée entre les cumuls de précipitations, les vitesses moyenne et maximale de vent et le flux de MP (en nombre ou en masse) pour les sites BO et VE ( $n_{BO} = 26$  ;  $n_{VE} = 6$  ;  $p\text{-value} > 0,05$ ). Les flux déposés sont plus élevés durant les périodes de précipitations, sans corrélation significative avec la lame d'eau tombée. Il est en effet possible que le lessivage des MP de l'atmosphère soit très efficace dès le début de la pluie et donc, indépendant de la hauteur totale de précipitations.

Le dispositif de collecte sélectif (dépôt sec versus dépôt humide) installé sur le site CEN n'a pas mis en évidence de corrélation entre l'intensité des précipitations (ou la vitesse du vent) et les flux déposés. De même, la seconde période (du 23/09/2022 au 30/11/2022) caractérisée par des précipitations plus fréquentes et plus abondantes que la première période (du 27/07/2022 au 23/09/2022), ne correspond pas à un flux déposé supérieur.

Les flux déposés depuis l'atmosphère peuvent varier en fonction de la distance aux sources de MP dans l'air (Allen et al., 2019). Les différences de flux peuvent être liées aux grands courants atmosphériques comme à la direction des vents dominants au sol. Les vents dominants sur les trois sites BO, VE et ME proviennent principalement du nord, voire du nord-ouest pour les sites du Bourget et d'Annecy. Le site VE présente un flux plus important de MP qui pourrait s'expliquer par une localisation au sud-est de l'agglomération d'Annecy (la zone urbaine impacterait le site). Le site BO est situé au sud du lac, dans un grand espace naturel pour le site CEN. L'hypothèse serait que cette zone naturelle est moins affectée par la contamination aux MP que les zones urbaines ou industrielles de Chambéry.

Les différences entre sites subalpins et alpins pourraient aussi être liées aux précipitations neigeuses. Les résultats du site ME ont montré des flux plus importants de MP au cours de la période hiver-printemps avec  $18,8 \text{ MP/jour/m}^2$  et  $14,6 \text{ MP/jour/m}^2$  (12/10/21 - 23/06/22) qu'au cours de la période été avec  $10,1 \text{ MP/jour/m}^2$  (23/06/22 - 16/07/22) et automne avec  $7,9 \text{ MP/jour/m}^2$  (22/09/21 - 12/10/21). Les précipitations sous forme de neige ont été observées quasi exclusivement sur le site ME où elles constituent l'essentielle des apports hydrologiques or la présence de neige est à même d'influencer la dynamique de dépôt des MP. Ainsi, la neige capturerait une plus grande diversité de tailles et de formes de MP que les précipitations de type pluie dû à la taille plus importante des flocons de neige et à des vitesses terminales plus faibles (Abbasi et al., 2022). Cependant, en termes de nombre de MP déposés,

l'étude précédente a montré une similarité entre les précipitations sous forme de pluie et de neige. Par ailleurs, il est possible qu'un dépôt sec soit plus facilement remobilisable qu'un dépôt humide en raison de la tendance du dépôt humide à ruisseler, immédiatement ou lors de la fonte, et à être piégé dans le filet collecteur. De plus, la fixation des MP sur une surface rugueuse telle que la neige pourrait être supérieure à celle sur une surface lisse (jauge) conduisant à une meilleure efficacité de collecte en présence d'une couche de neige.

### *Estimation des dépôts atmosphériques de microplastiques sur les lacs étudiés*

Les flux moyens des dépôts atmosphériques (moyenne arithmétique) permettent d'estimer les flux annuels déposés à l'échelle de chaque lac (Figure 51).

Les flux annuels  $\Phi_{\text{dépôts atmosphériques}}$  sont calculés selon :

$$\Phi_{\text{dépôts atmosphériques}} = \text{Flux moyen de MP} \times \text{Superficie du lac}$$

avec *Superficie du lac* en m<sup>2</sup> et *Flux moyen de MP* en nombre ou masse de MP/m<sup>2</sup>/an.

Ces flux atmosphériques similaires pourraient expliquer les niveaux de contamination comparables de l'eau de surface et du sédiment, si les flux des autres sources (apport des affluents, apport des ERU, apport des eaux pluviales) sont très inférieurs.

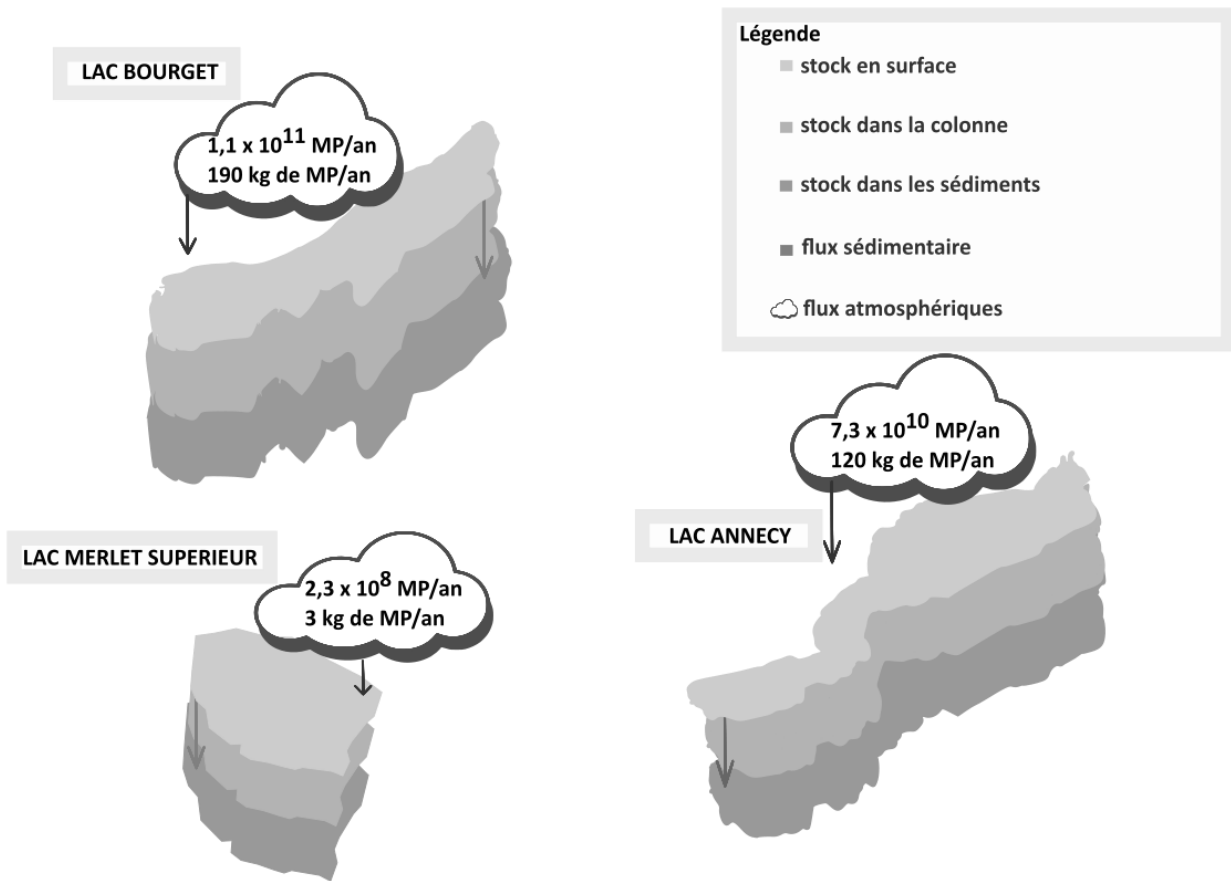


Figure 51 Estimations des dépôts atmosphériques sur les trois lacs étudiés

## Apport des affluents

### Quantification des microplastiques selon conditions hydrologiques

Tous les échantillons prélevés dans les six affluents ont révélé la présence significative de MP. Les concentrations varient de 0,9 MP/m<sup>3</sup> à 92,1 MP/m<sup>3</sup>, soit 3 × 10<sup>-7</sup> g MP/m<sup>3</sup> à 10<sup>-3</sup> g MP/m<sup>3</sup> (

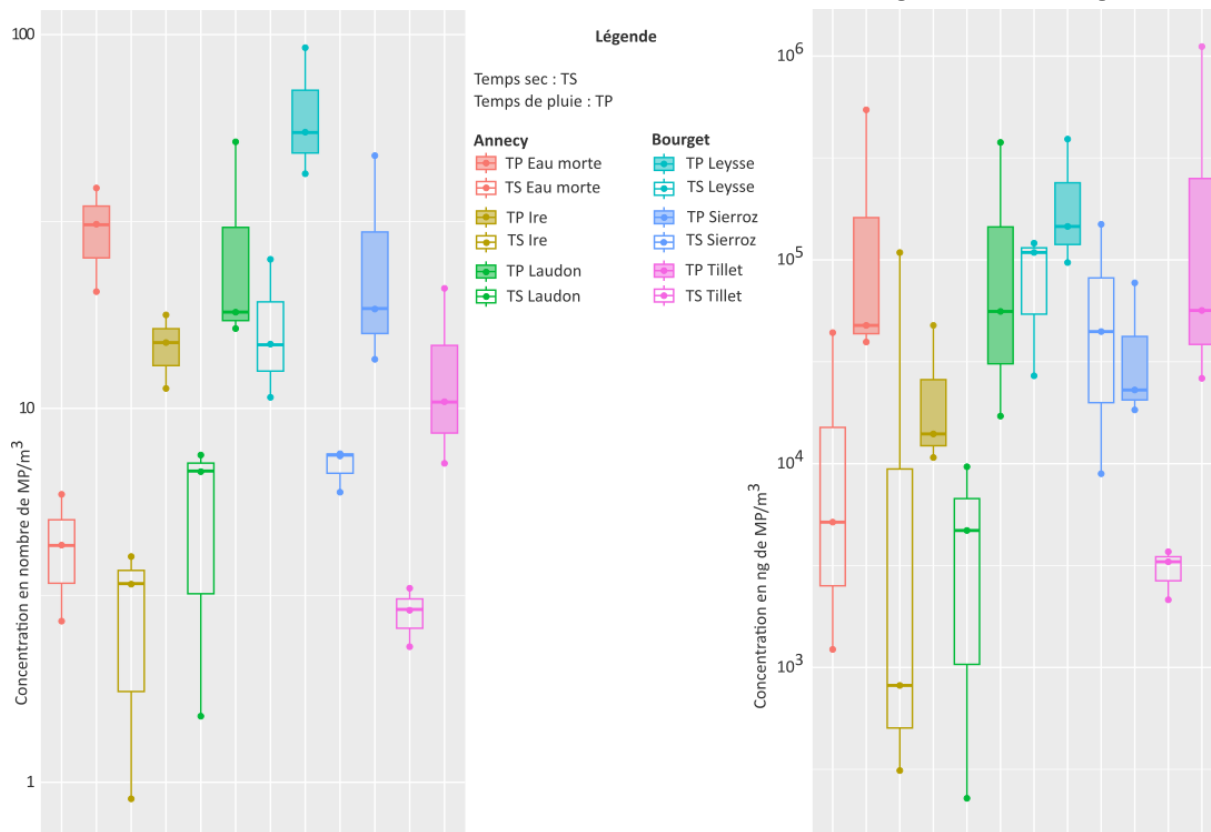


Figure 52). Un test de Wilcoxon apparié révèle des différences significatives de concentrations de MP à la fois en nombre (p-value = 0,03 ; V = 21) et en masse (p-value = 0,02 ; V = 34) en période de hautes eaux et de basses eaux (n = 18 hautes eaux, n = 18 basses eaux).

En temps sec, la concentration moyenne est de 6,5 MP/m<sup>3</sup> (médiane : 5,1 MP/m<sup>3</sup>), tandis qu'en période pluvieuse, elle augmente à 29,3 MP/m<sup>3</sup> (médiane : 19,5 MP/m<sup>3</sup>). L'augmentation varie de 3,8 à 7,0 selon l'affluent, avec les plus fortes augmentations pour ceux du lac d'Annecy. La concentration massique moyenne est égale à de 36 µg de MP/m<sup>3</sup> (médiane : 7 µg de MP/m<sup>3</sup>) à l'étiage contre 172 µg de MP/m<sup>3</sup> (médiane : 52 µg de MP/m<sup>3</sup>) pendant les crues.

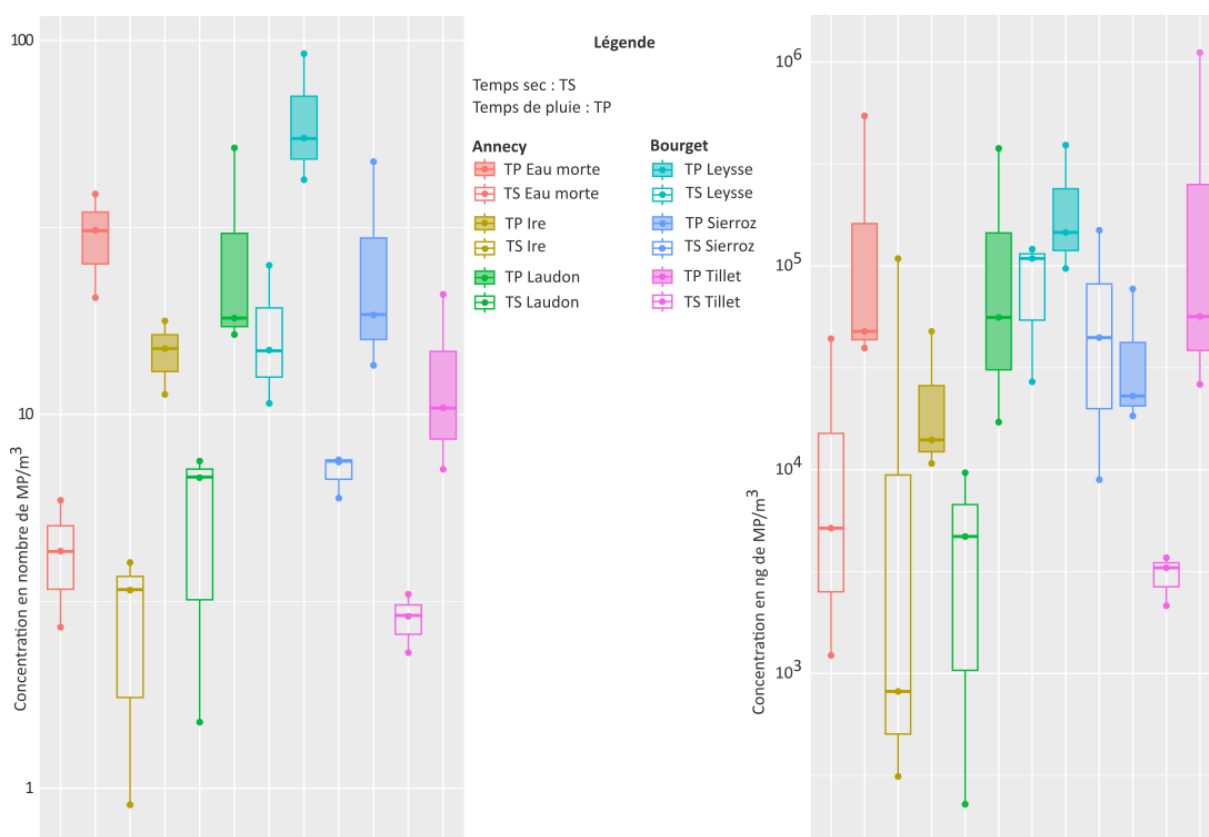


Figure 52 Concentrations en nombre MP/m<sup>3</sup> (gauche) ; et en masse ng MP/m<sup>3</sup> (droite) en période de basse eaux (n = 18) et de hautes eaux (n = 18) des affluents

Ces différences significatives peuvent s’expliquer par :

- la remobilisation par ruissellement sur les surfaces urbaine ou rurale, ayant accumulées les MP déposées depuis le compartiment atmosphérique, issues de la fragmentation des macrodéchets plastiques présents sur les sols, des matériaux plastiques utilisés dans l’agriculture, le bâtiment, l’industrie, etc.
- la remobilisation des plastiques piégés dans les sédiments ou les berges des affluents sous forme de macrodéchets ou de MP (de nombreux macroplastiques sont piégés par la ripisylve et soumis à la photo-fragmentation).
- dans le cas spécifique de la Leysse et du Sierroz, le rejet du volume d’eaux résiduaires urbaines dépassant le volume des bassins de stockage restitution (BSR) du réseau d’assainissement unitaire de Grand Chambéry et Grand Lac (cette dernière hypothèse sera discutée dans la *section Eaux résiduaires urbaines*).

Lorsque les affluents sont comparés deux à deux, aucune différence significative n’est observée (p-value > 0,05) suggérant des contaminations similaires en zones urbaines et rurales.

Toutefois, la Leyse, affluent dont le bassin versant est le plus urbanisé, présente la plus forte contamination en nombre de MP pendant les périodes sèches et humides (

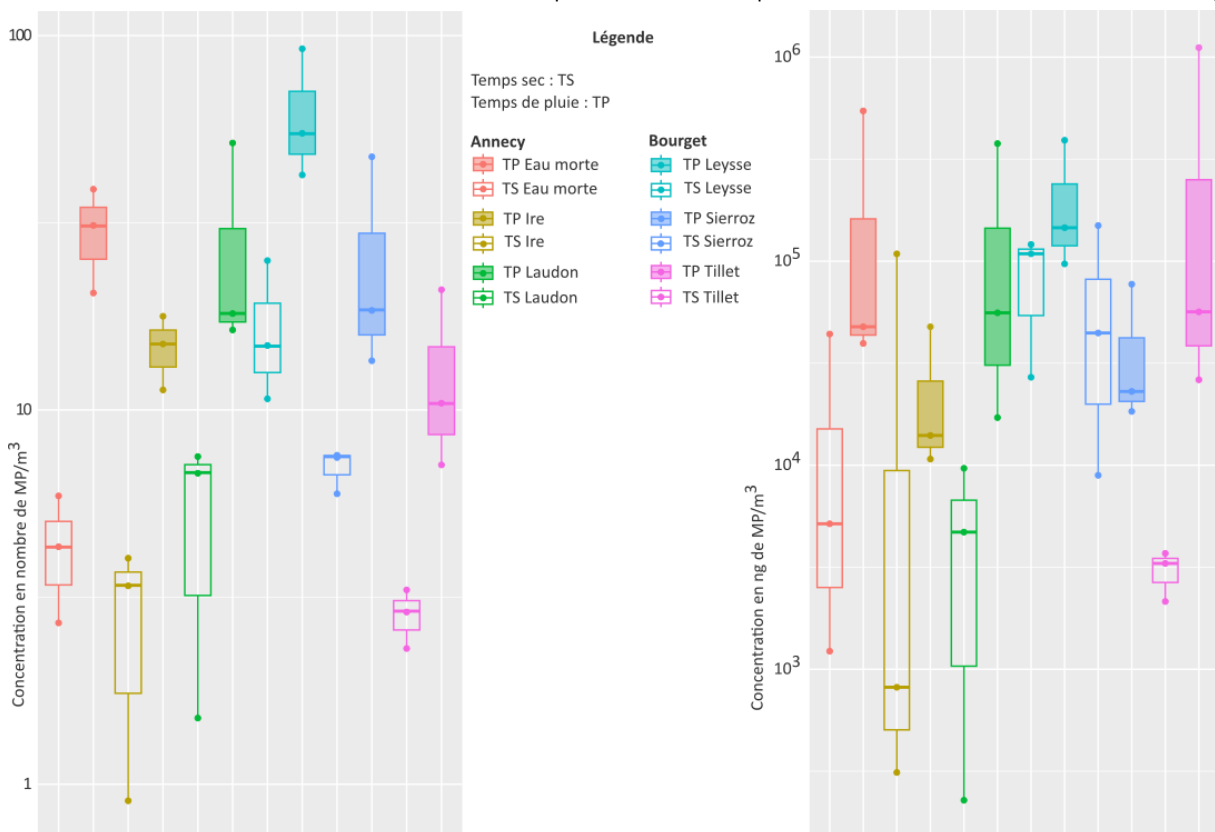


Figure 52). Il est probable que l'imperméabilisation importante des sols de son bassin versant urbain facilite le transport de MP vers le cours d'eau lors des précipitations. De plus, la Leyse est soumise aux rejets des d'ERU les plus importants (cf. *Eaux résiduaires urbaines*).

Des études ont montré que les concentrations en MP seraient corrélées à l'urbanisation et à la densité de la population (Kataoka et al., 2019; Pol et al., 2023; Yonkos et al., 2014). Dans ce travail, les affluents qui drainent les bassins versants à prédominance rurale ou agricole (Ire et Eau Morte) présentent des concentrations relativement similaires à celles des affluents drainant des bassins versants « semi-urbains » (Laudon, Sierroz, Tillet). Aucune corrélation existe entre concentrations en MP des affluents et superficie du bassin versant ou densité de population ( $n_{\text{AFFLUENT, CRUE}} = 6$  ;  $n_{\text{AFFLUENT, ETIAGE}} = 6$  ;  $n_{\text{SUPERFICIE, BASSINVERSANT}} = 6$  ;  $n_{\text{DENSITE, POPULATION}} = 6$  ;  $p\text{-value} > 0,05$ ). Une corrélation positive ( $\rho = 0,82$  ;  $p\text{-value} = 0,06$ ) de la concentration en nombre MP/m³ avec la superficie du bassin versant est toutefois perceptible par temps sec.

### *Caractérisation des microplastiques*

Les polymères PE (17 % en moyenne), PP (58 % en moyenne) et PET (17 % en moyenne) sont les plus présents dans les affluents. Aucune différence significative ( $p$ -value > 0,05) n'est observée entre les périodes de temps sec ( $n = 18$ ) et de pluie ( $n = 18$ ). Le PP représente 25 % à 82 % du total. En taille, 70 % des MP compris entre 50  $\mu\text{m}$  et 300  $\mu\text{m}$ , 24 % entre 300  $\mu\text{m}$  et 1 000  $\mu\text{m}$  et 6 % entre 1 000  $\mu\text{m}$  et 5 000  $\mu\text{m}$ . Aucune différence significative ( $p$ -value > 0,05) n'est observée entre les périodes de temps sec ( $n = 18$ ) et de pluie ( $n = 18$ ).

Une prédominance de PP (entre 53 % et 64 %) est constatée dans la Leysse, qui explique la présence de ce polymère dans les sédiments prélevés à son embouchure au lac du Bourget. De même, la présence de PVC (17 %) dans les sédiments lacustres du site Doussard du lac d'Annecy sont à relier à la présence de PVC dans les affluents Eau Morte et Ire.



Lac S : temps sec P : temps pluie	Concentration		Incertitude moyenne* (%)	Concentration		Incertitude moyenne* (%)	Distribution polymérique moyenne (%)					Distribution de taille moyenne (%)		
	moyenne	médiane		moyenne	médiane		PE	PP	PET	PVC	PS	50µm - 300µm	300µm -1mm	1mm- 5mm
	nb de MP/m <sup>3</sup>			ng de MP/m <sup>3</sup>										
Eau Morte S	4,3	4,3	10	17 000	5 200	5	18	38	21	23	0	61	29	10
Eau Morte P	30,2	31,0	14	210 000	48 000	10	29	48	17	6	0	71	26	3
Ire S	2,8	3,4	19	37 000	820	20	0	67	33	0	0	100	0	0
Ire P	14,7	15,0	13	24 000	14 000	3	7	75	2	16	0	76	24	0
Laudon S	5,3	6,8	14	4 900	4 700	12	0	76	24	0	0	95	5	0
Laudon P	28,6	18,1	11	150 000	56 000	1	16	82	1	0	1	59	33	8
Leyse S	16,8	14,8	10	86 000	110 000	2	10	64	11	11	4	50	39	11
Leyse P	63,1	54,7	17	210 000	150 000	3	21	53	12	13	1	63	24	13
Sierroz S	7,0	7,5	13	68 000	45 000	11	28	49	4	15	4	53	40	7
Sierroz P	26,5	18,5	12	40 000	23 000	5	20	56	14	5	5	72	25	3
Tillet S	2,8	2,9	22	3 100	3 300	17	41	25	34	0	0	82	18	0
Tillet P	12,8	10,4	7	400 000	57 000	1	11	64	25	0	0	59	24	17

Tableau 18 Récapitulatif des résultats sur les affluents

\* l'incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II

## Estimations des flux de microplastiques via les affluents

En 2022, le volume total transité via les affluents du lac du Bourget est d'environ 196 millions de m<sup>3</sup> (142 millions de m<sup>3</sup> pour la Leysse, 45 millions de m<sup>3</sup> pour le Sierroz et 9 millions de m<sup>3</sup> pour le Tillet) (CISALB). Pour le lac d'Annecy, le volume total transité estimé est de 98 millions de m<sup>3</sup> (60 millions de m<sup>3</sup> pour l'Eau Morte, 23 millions de m<sup>3</sup> pour l'Ire et 15 millions de m<sup>3</sup> pour le Laudon) (débits moyens journaliers issus de Hydroportail).

Pour chaque affluent, aucune relation simple (type linéaire) entre les concentrations en MP et les débits journaliers n'a pu être établie. Le manque de débits intermédiaires a restreint l'exploration de modèles alternatifs. Toutefois, des différences significatives de concentration existent entre les conditions de temps sec et de pluie, pris en considération pour les estimations de flux de MP (Tableau 19). Le seuil de crue est défini à 10 % du débit maximal annuel (données issues de hydro eaufrance).

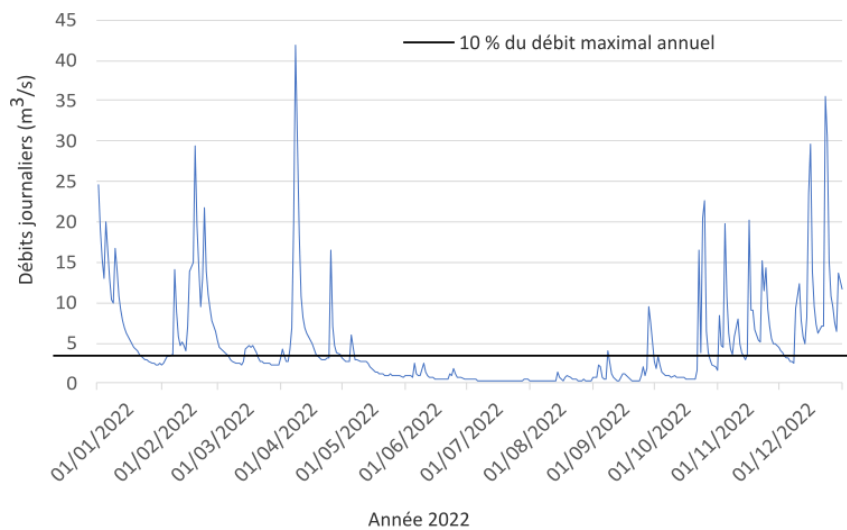


Figure 53 Représentation graphique des débits journaliers sur l'année 2022 pour la Leysse

Les débits moyens journaliers ( $Q_{24h}$ ) de l'année 2022 ont été relevés pour chaque affluent. Si le débit est supérieur au seuil de crue, le flux est calculé en prenant en compte la concentration moyenne en MP de l'affluent en crue ( $[MP]_{aff,crue}$ ). Au contraire, si le débit est inférieur au seuil de crue, le flux est calculé à partir de la concentration moyenne de MP en temps sec ( $[MP]_{aff,tempsec}$ ). Les flux journaliers en MP apportés par les affluents ( $\Phi_{aff,tempsec/crue}$ ) sont alors calculés selon :

$$\Phi_{aff,tempsec/crue} = Q_{24h} \times [MP]_{aff,tempsec/crue} \times 86\,400$$

Affluent	Flux en nombre de MP		Flux en masse de MP	
	MP/jour	MP/an	g de MP/jour	kg de MP/an
Leyse (B)	$1,7 \times 10^7$	$6,2 \times 10^9$	61,9	23,0
Eau Morte (A)	$2,3 \times 10^6$	$8,4 \times 10^8$	14,8	5,4
Sierroz (B)	$2,3 \times 10^6$	$8,2 \times 10^8$	6,3	2,3
Tillet (B)	$1,6 \times 10^5$	$5,8 \times 10^7$	6,1	2,2
Laudon (A)	$6,6 \times 10^5$	$2,4 \times 10^8$	3,0	1,1
Ire (A)	$3,4 \times 10^5$	$1,2 \times 10^8$	2,2	7,9

Tableau 19 Estimation des flux de MP apportés par les affluents des lacs du Bourget (B) et d'Annecy (A)

Les flux des affluents sont égaux à  $6,3 \times 10^9$  MP/an (27,5 kg de MP/an) pour le lac du Bourget et  $1,2 \times 10^9$  MP/an (14,4 kg MP/an) pour le lac d'Annecy (Figure 54). Ces flux sont inférieurs d'un ordre de grandeur en nombre (et presque autant en masse) aux dépôts de MP depuis l'atmosphère (compris entre  $7,3 \times 10^{10}$  MP/an (124 kg de MP/an) au lac d'Annecy et  $1,1 \times 10^{11}$  MP/an (190 kg de MP/an) au lac du Bourget).

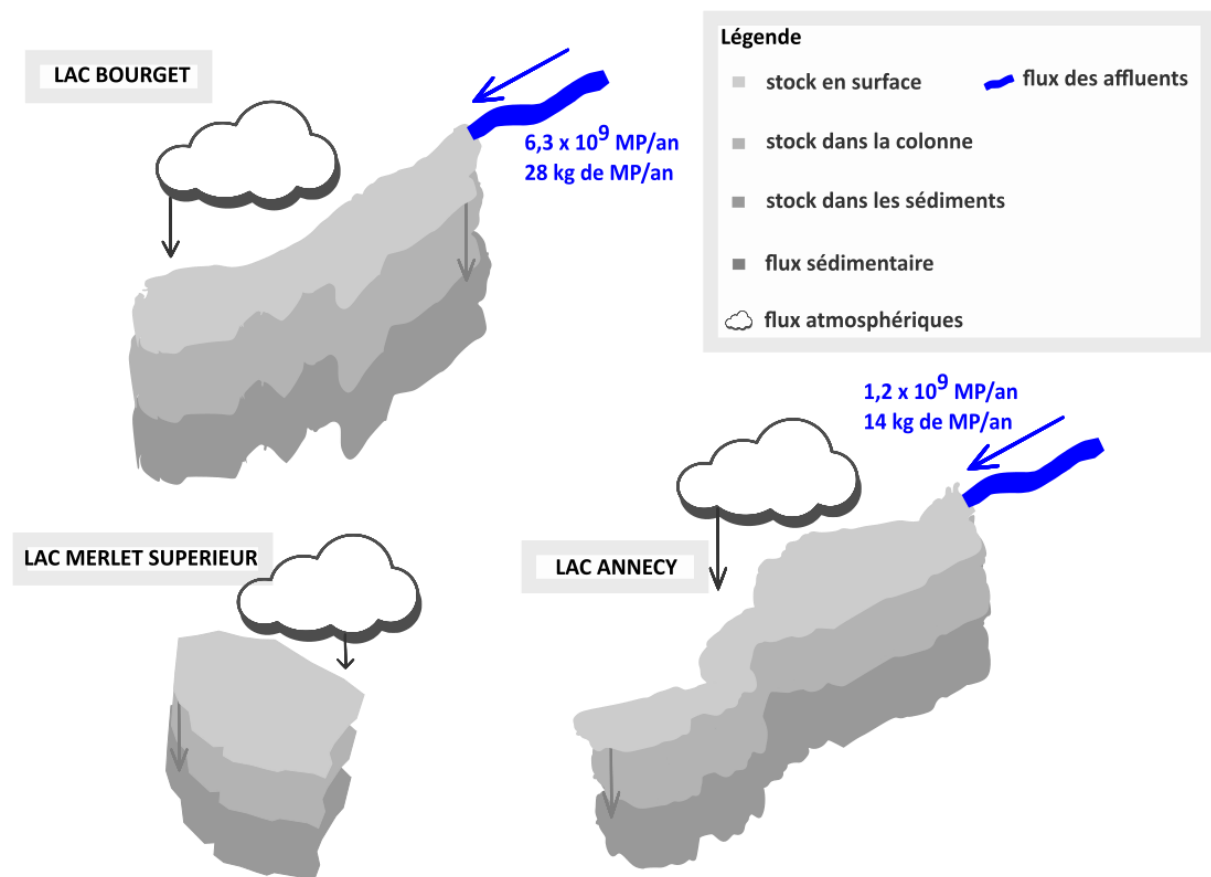


Figure 54 Estimations des flux de MP par les affluents à travers les sites étudiés

La comparaison des flux de chaque affluent à la superficie du bassin versant hydrographique ne révèle pas de corrélation ( $n_{\text{AFFLUENT}} = 6$  ;  $n_{\text{BASSINVERSANT}} = 6$  ;  $p\text{-value} < 0,05$ ).

La quantité annuelle de MP déposés depuis le compartiment atmosphérique sur chaque bassin versant est estimée avec les flux de dépôt des sites du Bourget (6,7 MP/m<sup>2</sup>/jour et 11 909 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour) et du Veyrier-du-Lac (7,2 MP/m<sup>2</sup>/jour et 12 292 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour) (Tableau 20).

La comparaison des flux annuels de MP provenant des affluents et des retombées atmosphériques révèle que les flux en nombre de MP des affluents représentent entre 0,1 et 0,8 % des dépôts atmosphériques à l'échelle des bassins versant, et entre 0,8 et 6,6 % pour la masse de MP. Cela signifie qu'une partie des MP déposés sur les sols y sont stockés et ne sont pas transférés au lac. Ce phénomène pourrait s'expliquer par une faible capacité de ruissellement des bassins versants vers les affluents. Une autre hypothèse est que ces MP seraient effectivement remobilisés à la faveur d'évènements pluvieux plus importants que nous aurions manqué lors des échantillonnages des affluents (*exemple : pics de crue*).

Affluent	Superficie bassin versant (BV) (km <sup>2</sup> )	Flux atmosphérique	
		en nombre de MP/BV/an	en kg de MP/BV/an
Leyse (B)	306,0	$7,7 \times 10^{11}$	1 300
Eau Morte (A)	92,5	$2,4 \times 10^{11}$	420
Sierroz (B)	157,0	$4,0 \times 10^{11}$	680
Tillet (B)	49,5	$1,2 \times 10^{11}$	220
Laudon (A)	29,2	$7,7 \times 10^{10}$	130
Ire (A)	27,5	$7,3 \times 10^{10}$	120

Tableau 20 Estimation des flux de MP déposés depuis l'atmosphère sur les bassins versants respectifs de chaque affluent étudié pour les lacs du Bourget (B) et d'Annecy (A)

Une étude portant sur le flux de macrodéchets dans la Leyse entre mai et décembre 2019 (Gaillard et al., 2021; Gondouin, 2022) a montré que les polymères les plus couramment identifiés sont le PE (55 %) et le PP (24 %). D'autres polymères tels que le PET, le PVC et le PS ont également été identifiés. Plus de la moitié des macroplastiques récoltés mesurent entre 0,5 et 2,5 cm, qualifiés de mésoplastiques, tandis qu'un peu moins d'un tiers mesurent plus de

2,5 cm et sont considérés comme des macroplastiques. Selon les résultats de ces études, entre 220 kg et 1,5 t de plastiques provenant du bassin versant de la Leysse seraient rejetés en moyenne dans le lac du Bourget chaque année principalement suite à des épisodes de crues (débit > 10 m<sup>3</sup>/s). Ce flux de macroplastiques est sous-estimé car seule la Leysse est considérée dans l'étude et les apports directs au lac sont manquants.

Dans ces travaux de thèse, un flux annuel de MP apportés par la Leysse a été estimé à 23 kg et  $6,2 \times 10^9$  MP/an. Il serait intéressant de déterminer la part potentielle de la fragmentation des macroplastiques dans le lac. En divisant le flux massique de MP par le flux en nombre de MP, on estime qu'un MP aurait une masse approximative de 3,7 µg. En supposant que ces macroplastiques, arrivant par la Leysse restent dans le lac et se fragmentent en MP alors on peut estimer la formation de MP par la fragmentation des macroplastiques comprise entre  $5,9 \times 10^{10}$  MP et  $4,1 \times 10^{11}$  MP. Ce flux est du même ordre de grandeur que l'apport de MP via les retombées atmosphériques, qui a été estimé dans nos travaux à  $1,1 \times 10^{11}$  MP/an pour le lac du Bourget. Toutefois, si l'on considère les masses, le flux annuel de MP via les retombées atmosphériques est estimé à 190 kg, soit du même ordre de grandeur que le flux minimal de macroplastiques mais 100 fois inférieur au flux maximal calculé par Gondouin (2022). Ainsi, en considérant le processus de fragmentation des macroplastiques qui atteignent les lacs par les affluents, il est possible que cette source potentielle soit plus importante que les retombées atmosphériques.

## Apport des eaux résiduaires urbaines épurées

### *Quantification des microplastiques*

Des eaux usées traitées ont été échantillonnées dans le rejet au Rhône qui rassemble les effluents des stations d'épuration de Grand Chambéry (220 000 EH), de Grand Lac (90 000 EH) et du Bourget-du-Lac (10 000 EH). Les échantillons contiennent des fortes quantités de MP avec des concentrations comprises entre 2 000 MP/m<sup>3</sup> et 59 000 MP/m<sup>3</sup> (moyenne : 24 700 MP/m<sup>3</sup> ; médiane : 13 000 MP/m<sup>3</sup>) correspondant à des masses comprises entre 378 et 138 927 µg de MP/m<sup>3</sup> (moyenne : 52 437 µg de MP/m<sup>3</sup> ; médiane : 18 007 µg de MP/m<sup>3</sup>) (Tableau 22).

Des prélèvements ont également été effectués dans la Leysse pendant la période bisannuelle de 9 jours de fermeture de l'ouvrage de rejet au Rhône. Un volume total de 408 634 m<sup>3</sup> d'eaux usées épurées, provenant des communes d'Aix-les-Bains (101 786 m<sup>3</sup>), Bourget-du-Lac (9 115

m<sup>3</sup>) et Chambéry (297 733 m<sup>3</sup>), a ainsi rejoint le lac du Bourget après 1 km de transit via la Leysse. Le débit moyen était de 0,5 m<sup>3</sup>/s pour un débit moyen de la Leysse de 4,35 m<sup>3</sup>/s soit un facteur de dilution de 9,7.

Les concentrations dans la Leysse pendant cette période sont comprises entre 110,0 MP/m<sup>3</sup> et 410,0 MP/m<sup>3</sup> (moyenne : 255,0 MP/m<sup>3</sup> ; médiane : 245,0 MP/m<sup>3</sup>) correspondant à des masses comprises entre 69 µg de MP/m<sup>3</sup> et 723 µg de MP/m<sup>3</sup> (moyenne : 318 µg de MP/m<sup>3</sup> ; médiane : 247 µg de MP/m<sup>3</sup>). Elles sont nettement supérieures aux concentrations relevées dans la Leysse en absence de ce rejet, qu'il s'agisse de périodes sèches ou humides (Tableau 21).

En soustrayant la concentration en MP, pendant le rejet d'eaux usées, dans la Leysse (255,0 MP/m<sup>3</sup> et 318 µg de MP/m<sup>3</sup>) à celle de la Leysse avant le rejet (en moyenne 78,8 MP/m<sup>3</sup> et 60 µg de MP/m<sup>3</sup>), on obtient une concentration de 176,2 MP/m<sup>3</sup> et 260 µg de MP/m<sup>3</sup> soit nettement supérieure à celle de Leysse avant le rejet. En multipliant par le facteur de dilution (9,7), ces résultats permettent d'estimer les concentrations du rejet des ERU épurées à la Leysse, pendant la période considérée, à 1 700 MP/m<sup>3</sup> et 2 500 µg de MP/m<sup>3</sup> ce qui correspond à la gamme basse des concentrations mesurées directement dans les ERU épurées (2 000 MP/m<sup>3</sup>).

La différence de concentration moyenne dans les ERU épurées et dans la Leysse sous influence de ce rejet excède le facteur de dilution du rejet par le cours d'eau. La différence (2 500 MP/m<sup>3</sup> si on considère une dilution de 1/10 contre 255 MP/m<sup>3</sup> en moyenne mesuré dans la Leysse) peut s'expliquer par la variabilité temporelle importante de la concentration de MP dans un effluent d'UDEP, non prise en compte par l'échantillonnage instantané effectué dans l'affluent.

### *Caractérisation des microplastiques*

Les eaux de la Leysse sous influence du rejet d'ERU épurées contiennent des MP composés de PE (42 %), PP (30 %), PET (12 %) ainsi que de PVC (16 %). Les eaux résiduaires urbaines épurées contiennent des MP avec du PP (79 %), du PE (17 %) et du PET (4 %). Le PVC serait donc présent dans la Leysse en raison d'une autre source d'émission. La Leysse à l'aval du rejet, comme les effluents des UDEP, contiennent une majorité de MP de la gamme de taille 50 - 300 µm, représentant 75 % et 92 %, respectivement. Les MP de taille 300 - 1 000 µm représentent 25 % du total dans la Leysse sous influence du rejet et 8 % du total dans les eaux usées épurées.

Aucune particule de taille supérieure à 1 000  $\mu\text{m}$  n'a été observée, probablement en raison de leur rétention efficace dans les UDEP.

Lac	Concentration		Incertitude moyenne* (%)	Concentration		Incertitude moyenne* (%)	Distribution polymérique moyenne (%)					Distribution de taille moyenne (%)		
	moyenne	médiane		moyenne	médiane		PE	PP	PET	PVC	PS	50µm	300µm	1mm- 5mm
	nb de MP/m <sup>3</sup>		µg de MP/m <sup>3</sup>							- 300µm	-1mm			
Leyse avant rejet EU	78,8	80,0	23	60	70	10	34	18	38	8	2	82	18	0
Leyse pendant rejet EU	255,0	245,0	27	320	250	17	42	30	12	16	0	75	25	0
La Balme EU	24 700	13 000	3	52 000	18 000	10	17	79	4	0	0	92	8	0
Eaux pluviales Annecy	35,7	19,9	8	180	120	3	22	64	14	0	0	55	34	11

Tableau 21 Récapitulatif des résultats sur les ERU et eaux pluviales

*\* l'incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II*



### *Estimation des flux de microplastiques liés aux ERU*

Pour estimer le flux annuel de MP apportés au lac du Bourget via les eaux usées, deux méthodes sont employées. Il est important également de souligner que les prélèvements du rejet au Rhône et des eaux usées diluées dans la Leysse n'ont pas été effectués à la même période.

La première méthode consiste à multiplier la concentration moyenne de MP dans le rejet au Rhône (24 700 MP/m<sup>3</sup> et 52 000 µg de MP/m<sup>3</sup>) par le débit moyen du rejet durant la période de fermeture de la galerie (0,5 m<sup>3</sup>/s). Ainsi, on obtient un flux annuel de  $1,0 \times 10^{11}$  MP/an et une masse de 22 kg de MP/an (Figure 56) sur l'année 2021.

La seconde méthode consiste à multiplier la concentration moyenne de MP dans la Leysse due au rejet des effluents (différence de concentration dans la Leysse amont/aval du point de rejet, soit 176,2 MP/m<sup>3</sup> et 240 µg de MP/m<sup>3</sup>) par le débit moyen de la Leysse durant la période considérée (4,35 m<sup>3</sup>/s). Le flux annuel en nombre vaut alors  $2,4 \times 10^{10}$  MP/an et en masse 66 kg de MP/an sur l'année 2021.

Ces résultats sont du même ordre de grandeur que ceux de Murphy et al. (2016) pour les effluents de la station d'épuration de Glasgow en Écosse (650 000 EH). Malgré un taux de rétention des MP d'environ 98 % au sein de l'UDEP,  $6,5 \times 10^7$  MP/jour, soit  $2,4 \times 10^{10}$  MP/an sont rejetés au milieu aquatique récepteur.

Récemment, trois BSR des ERU excédentaires de temps de pluie ont été mis en service sur le bassin versant du lac du Bourget pour limiter les rejets d'ERU au milieu naturel lors du dépassement des capacités hydrauliques des UDEP. Un bassin créé en 2007 est situé sur la commune d'Albens (1 000 m<sup>3</sup>). Le bassin des Biâtres (10 000 m<sup>3</sup>) situé sur la commune d'Aix-les-Bains a été mis en service en janvier 2021. Un BSR (8 000 m<sup>3</sup>) a également été mis en service à Chambéry en mars 2020. Au cours des années 2021 à 2022, un volume total de 237 478 m<sup>3</sup> a été rejeté au Sierroz depuis le BSR des Biâtres (162 349 m<sup>3</sup> en 2021 et 59 760 m<sup>3</sup> en 2022), et depuis le BSR Albens (15 369 m<sup>3</sup> en 2021 et absence de rejet en 2022) et 25 424 m<sup>3</sup> ont été rejetés à la Leysse depuis le BSR de Chambéry (19 629 m<sup>3</sup> en 2021 et 5 795 m<sup>3</sup> en 2022).

L'apport de MP au lac du Bourget peut être calculé par :

### ***Volume ERU × Concentration de MP des ERU excédentaires***

En l'absence de mesure de concentration en MP dans les ERU (en amont des UDEP), elle est estimée en supposant un rendement d'élimination des MP en UDEP de 95 % (moyenne mondiale), soit 20 fois la concentration mesurée dans le rejet au Rhône (500 000 MP/m<sup>3</sup> et 1,0 g de MP/m<sup>3</sup>). Les apports de MP au lac du Bourget par les by-pass des BSR s'élèveraient à 9,1 × 10<sup>10</sup> MP et 190 kg en 2021, 3,3 × 10<sup>10</sup> MP et 70 kg en 2022, soient du même ordre de grandeur que les dépôts atmosphériques. Ces différences d'apport sont liées aux conditions météorologiques qui ont montré une plus forte pluviométrie en 2021 qu'en 2022. Il serait pertinent de réaliser des prélèvements directement en BSR pour confirmer ces estimations.

## **Apport des eaux pluviales**

### ***Quantification des microplastiques***

Les échantillons d'eau de ruissellement sur les surfaces urbaines imperméabilisées ont été prélevés à l'émissaire au lac d'Annecy du réseau d'eau pluvial de la commune d'Annecy-le-Vieux (au Petit Port). Tous les échantillons contiennent des MP avec des concentrations comprises entre 13,2 MP/m<sup>3</sup> et 90,0 MP/m<sup>3</sup> et des masses comprises entre 71 µg de MP/m<sup>3</sup> et 412 µg de MP/m<sup>3</sup> (Tableau 21).

### ***Caractérisation des microplastiques***

Les échantillons sont composés en moyenne de 22 % de PE, 64 % de PP et 14 % de PET. Les MP se répartissent à 55 % en taille 50 - 300 µm, 34 % pour 300 - 1 000 µm et 11 % pour 1 000 - 5 000 µm. Les eaux pluviales se distinguent des autres matrices par l'abondance de particules supérieures à 300 µm efficacement remobilisées depuis les surfaces urbaines.

### ***Estimation des flux de microplastiques***

D'après Free et al. (2014) et Unice et al. (2019), les eaux de ruissellement constituent le principal vecteur de transport des MP vers les eaux de surface. Piñon-Colin et al. (2020) ont relevé les concentrations les plus élevées en MP (entre 66 000 et 191 000 MP/m<sup>3</sup>) sur les trottoirs et dans des collecteurs d'eaux pluviales de zones résidentielles et commerciales lors de fortes précipitations. Werbowski et al. (2021) ont également mesuré des concentrations comprises entre 1 100 MP/m<sup>3</sup> et 24 600 MP/m<sup>3</sup> (125 - 5 000 µm) dans les eaux de ruissellement

urbain. Les valeurs nettement plus faibles mesurées sur le site d’Annecy-le-Vieux pourraient s’expliquer par des sols non imperméabilisés alimentant le réseau de collecte ou la dilution dans le ruisseau rejoignant le rejet. La superficie du bassin versant alimentant l’émissaire au lac d’Annecy mesure 1,58 km<sup>2</sup> (EGIS / AQUASCOP, 2016) avec 1,32 km<sup>2</sup> de zone urbaine dense, 0,2 km<sup>2</sup> d’espaces naturels et agricoles et 0,06 km<sup>2</sup> de zone urbaine peu dense, sans aucune zone industrielle ni artisanale (Figure 55).

Le flux annuel de MP vers le lac d’Annecy est calculé à partir du débit moyen pondéré de 12 écoulements mensuels (7,3 m<sup>3</sup>/s) (EGIS / AQUASCOP, 2016) et des concentrations moyennes en nombre et en masse de MP : il vaut  $8,2 \times 10^9$  MP/an (41,4 kg/an) (Figure 56). La quantité de MP déposés sur les surfaces terrestres de ce bassin versant en une année est estimée à l’aide du flux moyen de MP depuis l’atmosphère sur le site VE (7,2 MP/m<sup>2</sup>/jour et 12 292 ng de MP/m<sup>2</sup>/jour) :  $4,2 \times 10^9$  MP/an et 7,1 kg de MP/an. En considérant les flux déposés depuis l’atmosphère sur le site VE représentatif de ceux déposés à Annecy-le-Vieux, il apparaît donc que  $4,0 \times 10^9$  MP/an (34,2 kg de MP/an) proviendrait de la fragmentation de macroplastiques dans le sous bassin versant de la commune d’Annecy-le-Vieux.

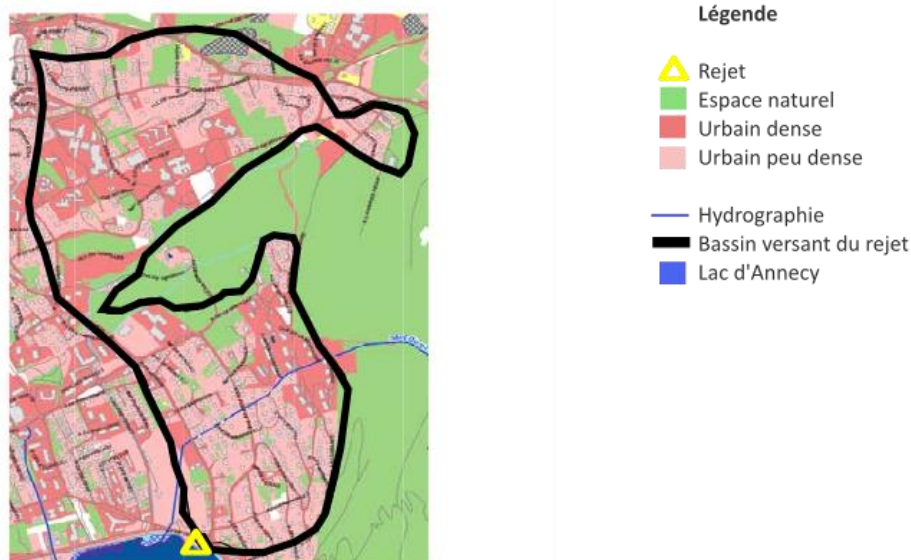


Figure 55 Carte du bassin versant du rejet d’eaux pluviales à Annecy-le-Vieux (modifié à partir de (EGIS / AQUASCOP, 2016))

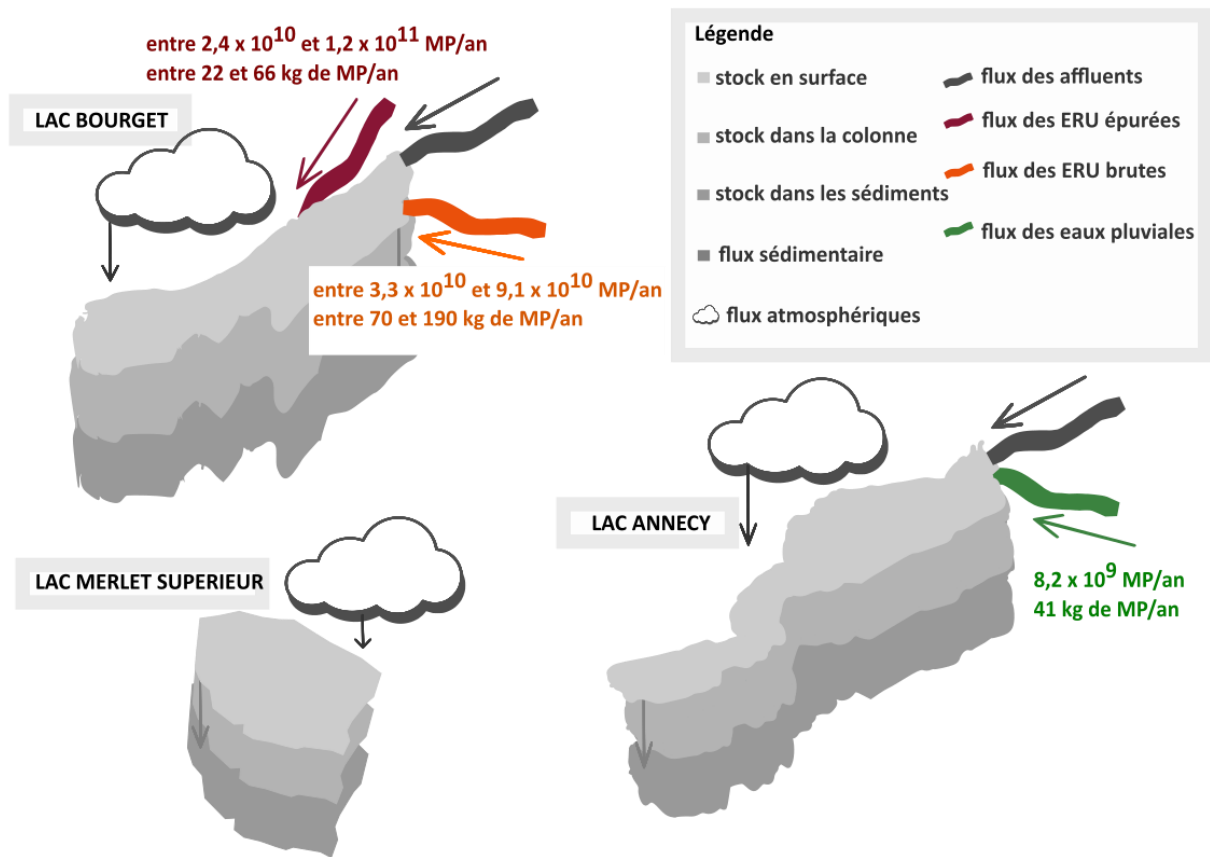


Figure 56 Estimations des flux de MP par les ERU brutes et épurées, et eaux pluviales selon les sites étudiés

## Export des microplastiques par l'exutoire du lac

L'exutoire du lac Merlet supérieur contient entre 2,0 et 6,3 MP/m<sup>3</sup> (moyenne : 4,0 MP/m<sup>3</sup>; médiane : 3,4 MP/m<sup>3</sup>). En termes de masses, les concentrations varient de 2 200 à 26 000 ng de MP/m<sup>3</sup> (moyenne : 8 200 ng de MP/m<sup>3</sup>; médiane : 4 500 ng de MP/m<sup>3</sup>). La répartition des MP en composition de polymères correspond à 38 % de PE, 33 % de PP, 14 % de PET, 13 % de PVC et 1 % de PS. Les particules sont à 70 % de dimensions comprises entre 50 et 300 µm et 30 % entre 300 et 1 000 µm. Aucune particule de taille entre 1 000 et 5 000 µm n'a été identifiée (taille minimale 60 µm, taille maximale 778 µm).

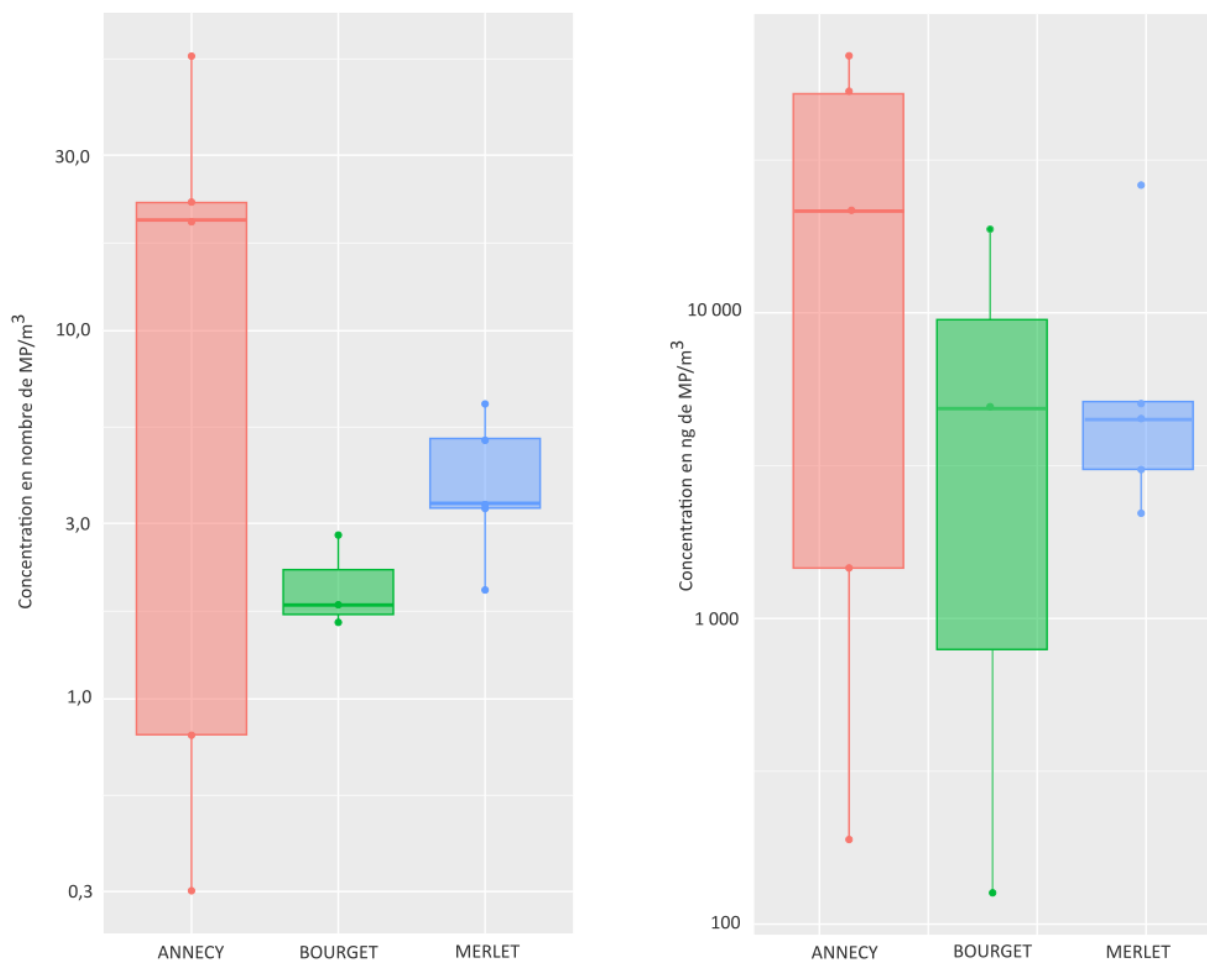


Figure 57 Concentrations en MP des échantillons de l'exutoire des lacs d'Annecy (n = 5), du Bourget (n = 3) et du Merlet supérieur (n = 5). Gauche : nombre de MP/m<sup>3</sup>. Droite : ng de MP/m<sup>3</sup>

Exutoire	Concentration			Incertitude moyenne* (%)	Concentration			Distribution polymérique moyenne (%)					Distribution de taille moyenne (%)		
	moyenne	médiane	nb de MP/m <sup>3</sup>		moyenne	médiane	μg de MP/m <sup>3</sup>						50μm	300μm	1mm-
								PE	PP	PET	PVC	PS	-	-1mm	5mm
Bourget	2,0	1,8	12	7,9	4,9	16	54	35	11	0	0	80	20	0	
Anncy	20,0	20,0	15	29,0	22,0	4	31	38	13	16	2	74	26	0	
Merlet	4,0	3,4	14	8,2	4,5	5	50	30	13	7	0	83	17	0	

Tableau 22 Récapitulatif des résultats sur les exutoires

*\* l'incertitude est liée à l'analyse spectrale voir Chapitre II*

Le débit moyen annuel de l'exutoire du lac Merlet a été estimé par la moyenne de trois mesures réalisées les 15/07/2020 ( $1,3 \times 10^{-2} \text{ m}^3/\text{s}$ ), 23/09/2020 ( $2,6 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ ) et 19/07/2022 ( $2,3 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s}$ ), soit  $5,3 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$ . Le débit à l'exutoire est nul lors de l'englacement du lac. Au cours des années 2020-2022, le lac est englacé entre 210 et 239 jours (CEN Haute-Savoie). Le volume annuel à l'exutoire du lac Merlet serait ainsi compris entre 58 000  $\text{m}^3$  et 71 000  $\text{m}^3$ . Le flux annuel de MP sortant est compris entre 230 000 et 280 000 MP/an (soit entre 470 et 580 mg de MP/an).

Compte-tenu du faible nombre de mesures de débit à l'exutoire, Le volume d'eau annuel peut aussi être évalué en réalisant un bilan hydrique simplifié (négligeant l'évaporation). En considérant la superficie du bassin versant (0,62  $\text{km}^2$ ), le cumul des précipitations (2020 : 480,2 mm ; 2021 : 287,3 mm ; 2022 : 805,8 mm, *données Météo France station Courchevel*) et un coefficient de ruissellement de 0,2 (pour un bassin versant en pelouse pâturée et en éboulis rocheux), les volumes annuels à l'exutoire seraient de 59 546  $\text{m}^3$  (2020), 35 625  $\text{m}^3$  (2021) et 99 919  $\text{m}^3$  (2022). Les flux annuels de MP à l'exutoire sont alors égaux à 238 179 MP/an (2020), 142 501 MP/an (2021) et 399 677 MP/an (2022) soit des masses de 490 mg de MP/an (2020), 290 mg de MP/an (2021) et 820 mg de MP/an (2022).

Les estimations sont du même ordre de grandeur et permettent de retenir un flux sortant à l'exutoire égal à  $1,6 \times 10^5$  MP/an et 560 mg de MP/an (Figure 58). La comparaison du flux entrant via les dépôts atmosphériques et du flux sortant suggère que les MP ont tendance à sédimenter plutôt qu'à sortir vers l'exutoire et rejoindre d'autres cours d'eau en aval.

Le volume transitant en 2021 à l'exutoire du lac du Bourget, le canal de Savières, est égal à 479,5 millions de  $\text{m}^3$ . Avec une concentration moyenne de 2,1 MP/ $\text{m}^3$  et 7 900 ng de MP/ $\text{m}^3$ , le flux sortant annuel du lac du Bourget est égal à  $1,0 \times 10^9$  MP/an et 4 kg de MP/an.

L'exutoire du lac d'Annecy, le Thiou, évacue environ 260 millions de  $\text{m}^3$  (CEN Haute-Savoie). Avec une concentration moyenne à l'exutoire du lac d'Annecy de 20,0 MP/ $\text{m}^3$  et 29 000 ng de MP/ $\text{m}^3$ , le flux annuel sortant du lac d'Annecy atteint  $5,2 \times 10^9$  MP/an et 8 kg de MP/an (Figure 58). À l'instar du lac Merlet, la comparaison des flux entrants et sortants des lacs subalpins montrent que les MP sédimenter et restent piégés dans les milieux lacustres, alpin ou subalpin.

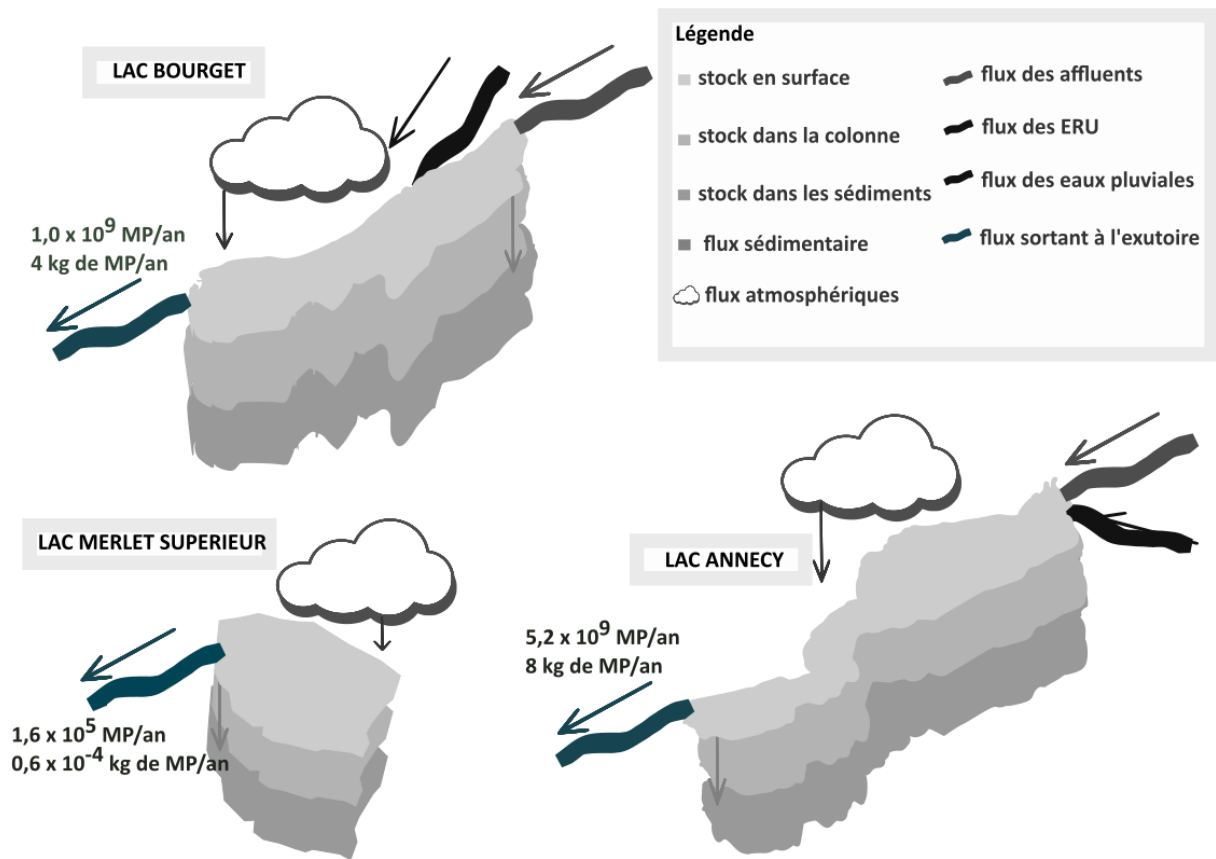


Figure 58 Estimations des flux de MP des exutoires à travers les sites étudiés



## Conclusion du chapitre

La présence de MP est commune à toutes les sources étudiées : retombées atmosphériques, affluents, ERU brutes et épurées et eaux pluviales. La pollution aux MP des environnements lacustres est donc complexe à évaluer et à limiter.

Les flux de dépôts atmosphériques sont similaires en zones urbaines (lacs du Bourget et d'Annecy) et isolées (lac du Merlet). Les précipitations neigeuses semblent favoriser le dépôt de MP sur les surfaces continentales.

Les affluents, de bassin versant urbains ou ruraux, apportent des quantités similaires de MP aux lacs. Les concentrations en MP sont significativement plus élevées en périodes de hautes eaux, en raison des rejets d'eaux pluviales d'ERU (déversoirs d'orage ou surverse des BSR) ou de la remobilisation des plastiques stockés dans les sédiments et berges des cours d'eau. Nos résultats suggèrent que les bassins versants pourraient fortement contribuer aux flux de MP vers les lacs à la faveur d'évènements pluvieux majeurs, capables de remobiliser les MP déposés depuis l'atmosphère et accumulés sur les sols.

Les concentrations en MP les plus élevées sont mesurées dans les ERU (brutes mais aussi épurées). Compte-tenu des volumes d'ERU (surverse des BSR) ou d'effluents d'UDEP déversés annuellement au lac du Bourget, la source « eaux usées urbaines » correspond à la contribution principale de MP au lac du Bourget (ordre de grandeur équivalent à la source atmosphérique).

Les concentrations de MP dans les eaux pluviales du site d'Annecy sont du même ordre de grandeur que celles mesurées en moyenne dans les affluents. Cette concentration est probablement sous-estimée par dilution avec l'apport d'un ruisseau drainant une zone montagnaise dans le réseau de collecte des eaux de ruissellement.

Les flux sortants aux exutoires sont relativement faibles, ce qui confirme l'accumulation des MP dans les sédiments des lacs. Les MP sédimentés ne sont pas constitués de polymères de densité particulière. Les processus amenant à la décantation de particules, en théorie, moins denses que l'eau pourraient être la colonisation des surfaces plastiques par un biofilm, l'association des MP avec d'autres particules (calcite précipitée, matière organique, etc.).

## Conclusion générale & perspectives



## Bilan à l'échelle des trois lacs étudiés

La contamination globale par les MP des lacs subalpins, du Bourget et d'Annecy, et du lac alpin du Merlet est représentée Figure 59. Les résultats montrent que le stock de MP dans la couche de surface varie entre  $1,6 \times 10^5$  et  $3,7 \times 10^8$  MP (et entre  $4 \times 10^{-4}$  et 0,6 kg de MP). Dans la colonne d'eau, le stock varie entre  $2,2 \times 10^8$  et  $1,1 \times 10^9$  MP (et 0,3 et 2 kg de MP). La matrice sédimentaire montrée un stock annuel compris entre  $6,2 \times 10^9$  et  $1,3 \times 10^{12}$  MP (et 5 kg et 1 100 kg de MP). Le flux sédimentaire est de  $5,5 \times 10^{11}$  MP/an et 240 kg de MP/an au lac du Bourget.

Le flux total annuel au lac du Bourget (Figure 59) (retombées atmosphériques, affluent, ERU épurées et brutes – flux sortant de l'exutoire) est de  $2,0 \times 10^{11}$  MP/an. Cette estimation est de l'ordre de grandeur du flux sédimentaire estimé à  $5,5 \times 10^{11}$  MP/an. Cela signifie que l'essentiel des MP entrant dans le lac finit par se déposer dans les sédiments. Le flux total massique est estimé entre 306 et 470 kg de MP/an, similaire au flux sédimentaire de 240 kg de MP/an. Les différences de flux massiques pourraient être dues à des apports de MP résultant de la fragmentation de macroplastiques ou à des incertitudes inhérentes aux mesures réalisées. Le flux sédimentaire annuel est cohérent avec le stock accumulé dans les sédiments. Ce flux sédimentaire pourrait être plus important sur certaines zones du lac et être réestimé en disposant plusieurs trappes à sédiments.

Les lacs d'Annecy et du Merlet montrent des flux totaux (entrants - sortants) de MP évalués à  $7,7 \times 10^{10}$  et  $2,3 \times 10^8$  MP/an, et des flux massiques de 175 et 3 kg de MP/an, respectivement. À l'instar du lac du Bourget, les flux sortants à l'exutoire sont relativement négligeables par rapport aux flux entrants. Ce constat suggère que la majeure partie des MP entrants dans les lacs sédimentent. En ce sens, les lacs seraient plutôt des puits de pollution que des zones transitoires vers d'autres cours d'eau. À noter cependant que notre échantillonnage au Merlet est représentatif du fonctionnement estival du lac et a pu sous-estimer le flux sortant au début de la période de fonte, quand le niveau du lac est au plus haut.

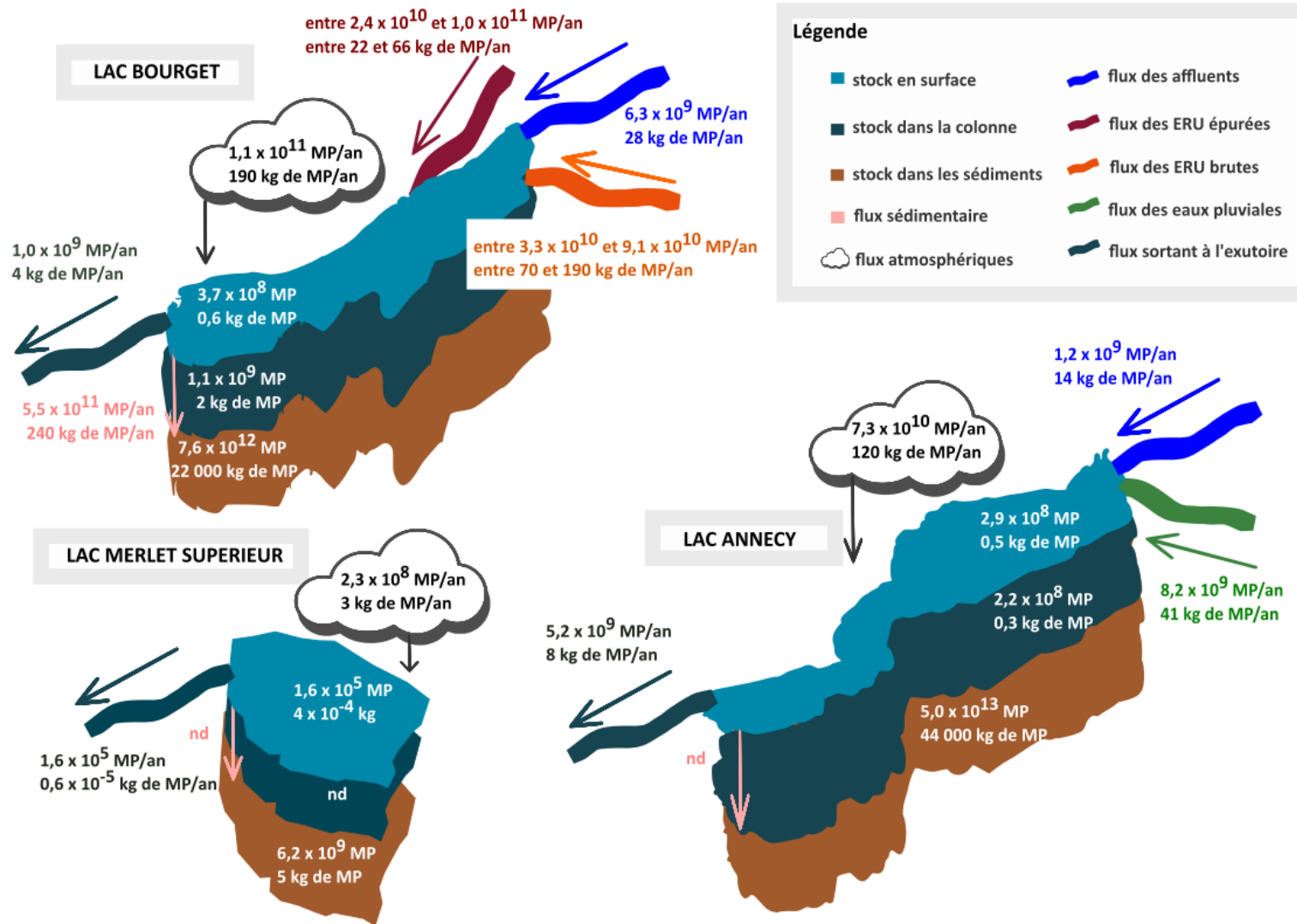


Figure 59 Estimations des stocks de MP en nombre et en masse dans les matrices eaux (surface et colonne), sédiments (stock annuel) et estimations des flux sédimentaire, atmosphérique, des affluents, ERU épurées et brutes, eaux pluviales et des exutoires à travers les trois sites étudiés

Les retombées atmosphériques et ERU (via le rejet direct au milieu des eaux usées épurées et via le rejet des eaux usées non traitées depuis les BSR) sont les contributeurs majeurs à la pollution aux MP des trois lacs étudiés (Figure 59).

Il est important de souligner que ces estimations de stocks et de flux sont probablement sous-estimées en raison de plusieurs facteurs :

- les MP compris entre 1  $\mu\text{m}$  et 49  $\mu\text{m}$  ne sont pas considérés ;
- tous les polymères plastiques ne sont pas étudiés (*exemples : polyamide, acrylique, PTFE, acétate de cellulose*) ;
- les rendements d'extraction des MP avec les systèmes de collecte sur le terrain sont peu connus ;
- l'absence de quantification des PUPR (non mesurée par analyse FTIR) considérée comme une source potentielle majeure de MP dans l'environnement ;
- la non prise en compte de la fragmentation de macroplastiques au sein du lac.

Les polymères prédominants sont le PE et le PP même si la répartition des polymères varie en fonction des matrices analysées. Le PP est présent en quantité majoritaire dans les eaux de surface et les particules décantant, représentant respectivement en moyenne 41 % et 43 % des MP. Il est également majoritaire dans les affluents (28 %), les ERU (79 %) et les eaux pluviales (64 %), malgré sa production plus limitée que le PE à l'échelle mondiale. Cette différence pourrait s'expliquer par une fragmentation plus rapide que le PE (Song et al., 2017). Le PE est majoritaire dans la colonne d'eau (53 %), les sédiments (42 %) et les exutoires (45 %) malgré sa production plus limitée que le PE à l'échelle mondiale. Le PET est le troisième polymère le plus abondant dans toutes les matrices, représentant 4 % à 17 %, à l'exception des retombées atmosphériques où il prédomine (36 %) devant le PP (28 %) et le PE (21 %). La répartition des différents types de polymères est relativement homogène dans le milieu lacustre (eau de surface, colonne d'eau et sédiments). En revanche, l'hétérogénéité de polymères est plus marquée entre les affluents, ERU et eaux pluviales (prédominance de PP) et les retombées atmosphériques (prédominance de PET).

Les MP de taille comprise entre 50 et 300  $\mu\text{m}$  prédominent dans le milieu lacustre. Les MP de taille supérieure à 300  $\mu\text{m}$  sont plus abondants dans l'eau de surface et les sédiments (33 % et 32 %, respectivement) que dans la colonne d'eau (17 %), peut-être en lien avec une

sédimentation plus rapide des particules de grandes tailles dans la colonne d'eau. Toutefois, les MP piégées dans la trappe à sédiments du site Bourget sont de toutes tailles, avec une prédominance de MP inférieurs à 1 000  $\mu\text{m}$  (98 %). Les tailles de MP sont similaires dans les retombées atmosphériques et dans les affluents.

## Bilan des sources de microplastiques aux lacs

Les flux annuels de MP apportés aux lacs par les affluents, les retombées atmosphériques, les ERU et les eaux pluviales sont rapportés au mètre carré ou à l'équivalent habitant en vue de proposer des données utilisables dans d'autres écosystèmes lacustres (Figure 60). Les flux annuels moyens ont été rapportés à la superficie des bassins versants de chaque affluent et de l'émissaire du réseau d'eaux pluviales (de Annecy-le-Vieux). L'absence de spécificité des affluents traversant des zones urbaines ou des zones rurales ont conduit à moyenner les flux au  $\text{m}^2$  des 5 affluents. Les flux de MP des ERU (brutes ou épurées) ont été ramené au nombre d'équivalent-habitant raccordés aux usines de dépollution de Chambéry, le Bourget-du-Lac et Aix-les-Bains (320 000 EH).

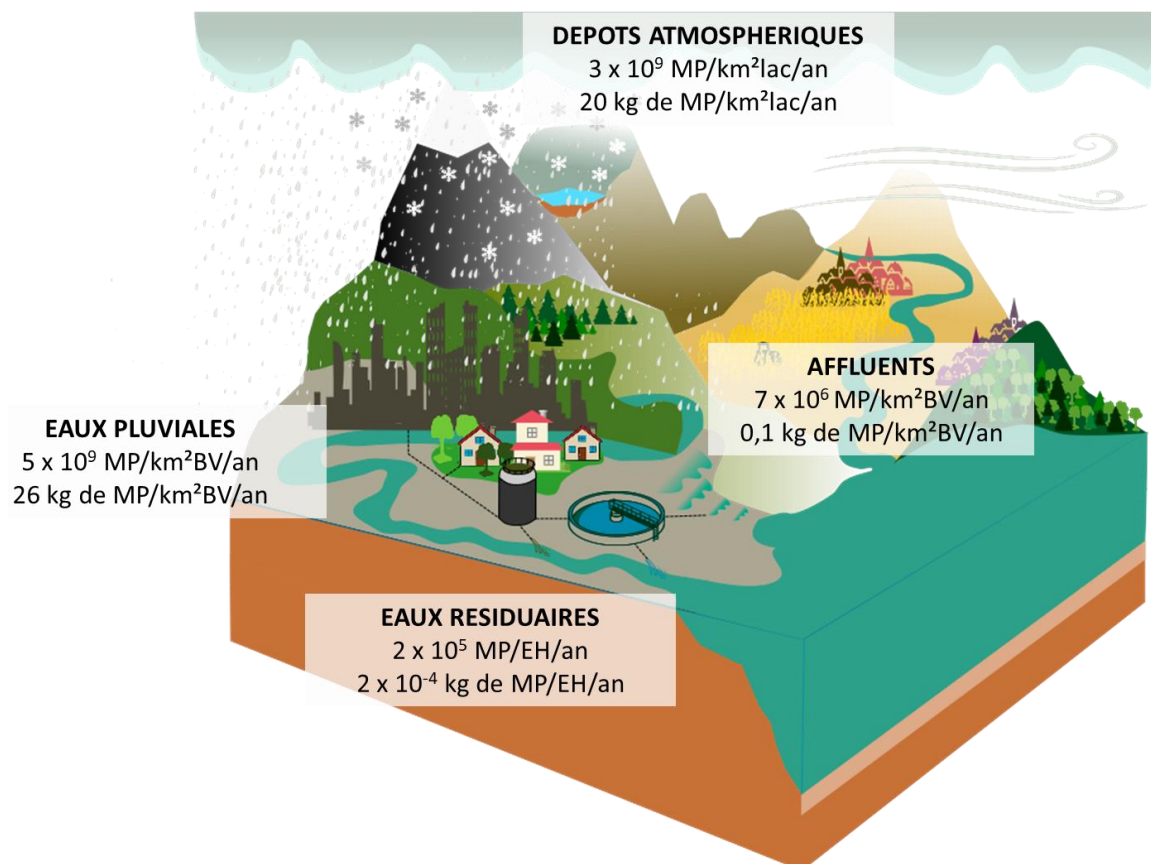


Figure 60 Estimations des flux annuels de MP provenant de différentes sources

Les eaux pluviales et les eaux usées constituent donc des sources importantes de MP, nécessitant des mesures de gestion adaptée pour préserver les milieux lacustres de cette pollution (comparaison lac Annecy/lac Bourget). Les caractéristiques spécifiques de chaque lac et bassin versant influencent largement l'impact des différentes sources de MP. Ainsi, dans le cas des trois lacs étudiés dans cette thèse, les retombées atmosphériques et les ERU sont les sources principales de MP au lac du Bourget. Pour les lacs d'Annecy et du Merlet, les retombées atmosphériques de MP représentent la contribution principale à la contamination du milieu lacustre. Toutefois, les EP ne sont pas négligeables pour Annecy.

Les résultats de ces travaux ont une importance cruciale pour la planification de mesures environnementales visant à préserver les écosystèmes lacustres de la pollution aux MP. Une augmentation des rejets d'ERU, d'eaux pluviales ou une augmentation de la surface d'imperméabilisation des bassins versants pourrait conduire à une augmentation de la pollution aux MP. Il est donc essentiel de prendre des mesures préventives et d'anticiper les évolutions possibles du milieu (événements extrêmes, changement climatique), afin de concevoir des politiques environnementales efficaces et durables qui tiennent compte de ces paramètres. Ces politiques peuvent englober diverses mesures visant à améliorer la gestion des ERU (développement BSR, soutenir la recherche et le développement de techniques de recyclages des ERU) et favoriser l'adoption de pratiques d'urbanisation respectueuses de l'environnement.



## Conclusion générale

Ces travaux de thèse ont permis de rendre compte de l'état de contamination en MP des environnements lacustres, à travers les lacs subalpins du Bourget, d'Annecy et du Merlet supérieur. L'étude a permis également d'identifier les sources et vecteurs de la pollution par les MP dans ces sites d'étude, ainsi qu'à l'échelle des milieux lacustres en général.

Notre hypothèse initiale était que la pollution serait plus conséquente sur les lacs subalpins situés dans des zones urbaines et rurales par rapport au lac d'altitude, isolé des sources anthropiques directes.

Cependant, nos résultats ont mis en évidence l'absence de différence significative entre zones urbaines et zones isolées en termes de contamination des matrices environnementales (eau de surface, colonne d'eau et sédiments). Les résultats des estimations de flux de MP réalisées sur les trois sites étudiés ont permis de mettre en évidence que les retombées atmosphériques et les ERU épurées et brutes constituent les principales sources de MP. Une fois les flux estimés à une échelle plus large, nos résultats ont montré que les eaux pluviales sont également des sources importantes de pollution par les MP, tandis que les affluents ont montré un impact plus faible.

Les résultats de cette thèse soulignent l'importance cruciale des écosystèmes lacustres en tant que sentinelles de la pollution MP. En tant que sources d'eau douce, les lacs sont indispensables à la continuité des services écosystémiques et leur contamination par les MP doit être absolument prise en compte dans les mesures de gestion environnementale. Cela nécessite une coopération étroite entre les politiques, entreprises, associations, scientifiques et citoyens dans la lutte contre la pollution plastique.

## Perspectives

Il serait pertinent pour les études futures d'explorer en priorité la matrice sédimentaire pour établir des comparaisons intra- et inter-sites ainsi que pour mener des études spatio-temporelles. Cette approche peut se justifier par la difficulté de développer des méthodes appropriées, robustes et reproductibles pour échantillonner les eaux de surface et de colonne.

La compréhension des sources de MP dans l'atmosphère, tant en termes de sources d'émission que de type de produits impliqués, est essentielle pour élaborer des solutions efficaces à

grande échelle visant à réduire la pollution aux MP. Par conséquent, il est impératif de mener des recherches scientifiques pour identifier les principales émissions de MP dans l'environnement atmosphérique. Cette approche permettrait de mettre en place des stratégies ciblées et efficaces pour réduire l'émission.

Il est également essentiel de continuer les études sur les ERU épurées et brutes et eaux pluviales (*exemples : prélèvements directs en BSR*). Le déploiement et la mise en place de systèmes de traitement efficaces pour minimiser les rejets de MP dans l'environnement sont indispensables. Ces travaux soulignent l'importance cruciale du traitement et de la gestion appropriée des ERU épurées et brutes pour prévenir la pollution des milieux lacustres, en particulier à travers la mise en œuvre de mesures significatives de gestion des bassins versants, d'autant plus nécessaire face à l'augmentation actuelle et attendue des événements climatiques extrêmes liés au changement climatique.

Il conviendrait d'explorer d'autres sources potentielles de MP, tels que le rejet direct de macroplastiques dans l'environnement lacustre, pouvant subir un processus de fragmentation relarguant de nombreux MP. Des études futures pourraient se pencher sur la quantification des macroplastiques entrant (affluents) et sortant (exutoire, rives et sédiments), en nombre et en masse. Cela permettrait de réaliser un bilan informatif de leur fragmentation. Une autre méthode serait d'étudier le processus de fragmentation en laboratoire. Ces perspectives permettraient de quantifier les MP générés et ainsi mieux déterminer la part de cette source dans la contamination aux MP des lacs et donc indirectement la part des affluents comme sources de MP générés par les macroplastiques apportés.

J'aimerais conclure ce manuscrit de thèse par une citation de Liu et al. (2020) : *« Historical lessons remind us that anthropogenically discharged pollutants will always find their way back to human bodies and pose potential adverse effects to human health, and plastic waste is no exception. »*



## Références

- Abbasi, S., Alirezazadeh, M., Razeghi, N., Rezaei, M., Pourmahmood, H., Dehbandi, R., Mehr, M.R., Ashayeri, S.Y., Oleszczuk, P., Turner, A., 2022. Microplastics captured by snowfall: A study in Northern Iran. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.153451>
- Alfonso, M.B., Arias, A.H., Piccolo, M.C., 2020a. Microplastics integrating the zooplanktonic fraction in a saline lake of Argentina: influence of water management. *Environmental Monitoring and Assessment*.  
<https://doi.org/10.1007/s10661-020-8080-1>
- Alfonso, M.B., Scordo, F., Seitz, C., Manstretta, G.M.M., Ronda, A.C., Arias, A.H., Tomba, J.P., Silva, L.I., Perillo, G.M.E., Piccolo, M.C., 2020b. First evidence of microplastics in nine lakes across Patagonia (South America). *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139385>
- Allen, D., Allen, S., Le Roux, G., Simonneau, A., Galop, D., Phoenix, V.R., 2021. Temporal archive of atmospheric microplastic deposition presented in ombrotrophic peat. *Environmental Science and Technology Letters*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.estlett.1c00697>
- Allen, S., Allen, D., Phoenix, V.R., Le Roux, G., Durántez Jiménez, P., Simonneau, A., Binet, S., Galop, D., 2019. Atmospheric transport and deposition of microplastics in a remote mountain catchment. *Nature Geoscience*.  
<https://doi.org/10.1038/s41561-019-0335-5>
- Ambrosini, R., Azzoni, R.S., Pittino, F., Diolaiuti, G., Franzetti, A., Parolini, M., 2019. First evidence of microplastic contamination in the supraglacial debris of an alpine glacier. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.07.005>
- Andrade, J.M., Ferreira, B., López-Mahía, P., Muniategui-Lorenzo, S., 2020. Standardization of the minimum information for publication of infrared-related data when microplastics are characterized. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111035>
- Andrady, 2011. Microplastics in the marine environment. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2011.05.030>
- Andrady, A.L. (Ed.), 2003. *Plastics and the environment*. John Wiley and Sons.
- Ballent, A., Corcoran, P.L., Madden, O., Helm, P.A., Longstaffe, F.J., 2016. Sources and sinks of microplastics in Canadian Lake Ontario nearshore, tributary and beach sediments. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.06.037>
- Balvay, G., 1978. Le régime thermique du lac d'Annecy (1966-1977).  
<https://doi.org/10.3406/rqa.1978.2130>
- Balvay, G., Druart, J.-C., 2020. *Le lac d'Annecy et son plancton*. Editions Quae.
- Bank, M.S., Hansson, S.V., 2019. The Plastic Cycle: A novel and holistic paradigm for the Anthropocene. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.9b02942>

- Barboza, L.G.A., Dick Vethaak, A., Lavorante, B.R.B.O., Lundebye, A.-K., Guilhermino, L., 2018. Marine microplastic debris: An emerging issue for food security, food safety and human health. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2018.05.047>
- Barnes, D.K.A., Galgani, F., Thompson, R.C., Barlaz, M., 2009. Accumulation and fragmentation of plastic debris in global environments. *Philosophical Transactions of the Royal Society B Biological Sciences*.  
<https://doi.org/10.1098/rstb.2008.0205>
- Beaurepaire, M., Dris, R., Tassin, B., Gasperi, J., 2022. Comparison of total atmospheric microplastic deposition on a peri-urban and an agricultural site in the Paris region. In EGU.  
<https://doi.org/10.5194/equsphere-egu22-8065>
- Bergmann, M., Mützel, S., Primpke, S., Tekman, M.B., Trachsel, J., Gerdt, G., 2019. White and wonderful? Microplastics prevail in snow from the Alps to the Arctic. *Science Advances*.  
<https://doi.org/10.1126/sciadv.aax1157>
- Bertoldi, C., 2020. First evidence of microplastic contamination in the freshwater of Lake Guaíba, Porto Alegre, Brazil. *Science of the Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.143503>
- Bharath K, M., Natesan, U., Ayyamperumal, R., Kalam S, N., 2021. Microplastics as an emerging threat to the freshwater ecosystems of Veeranam lake in south India: A multidimensional approach. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.128502>
- Bogdal, C., Schmid, P., Zennegg, M., Anselmetti, F.S., Scheringer, M., Hungerbühler, K., 2009. Blast from the Past: Melting Glaciers as a Relevant Source for Persistent Organic Pollutants. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/es901628x>
- Bordós, G., Urbányi, B., Micsinai, A., Kriszt, B., Palotai, Z., Szabó, I., Hantosi, Z., Szoboszlai, S., 2019. Identification of microplastics in fish ponds and natural freshwater environments of the Carpathian basin, Europe. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.10.110>
- Boucher, J., Faure, F., Pompini, O., Plummer, Z., Wieser, O., Felipe de Alencastro, L., 2019. (Micro) plastic fluxes and stocks in Lake Geneva basin. *Trends in Analytical Chemistry*.  
<https://doi.org/10.1016/j.trac.2018.11.037>
- Brahney, J., Hallerud, M., Heim, E., Hahnenberger, M., 2020. Plastic Rain in Protected Areas of the United States. *Science*.  
<https://doi.org/10.1126/science.aaz5819>
- Bretas Alvim, C., Mendoza-Roca, J.A., Bes-Piá, A., 2020. Wastewater treatment plant as microplastics release source – Quantification and identification techniques. *Journal of Environmental Management*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.109739>
- Bruno, P., 2011. Diagnose écologique des lacs de haute altitude du Parc national de la Vanoise.
- Cable, R.N., Beletsky, D., Beletsky, R., Wigginton, K., Locke, B.W., Duhaime, M.B., 2017. Distribution and modeled transport of plastic pollution in the Great Lakes, the world's largest freshwater resource. *Frontiers in Environmental Science*.  
<https://doi.org/10.3389/fenvs.2017.00045>

- Cabrera, M., Valencia, B.G., Lucas-Solis, O., Calero, J.L., Maisincho, L., Conicelli, B., Massaine Moulatlet, G., Capparelli, M.V., 2020. A new method for microplastic sampling and isolation in mountain glaciers: A case study of one antisana glacier, Ecuadorian Andes. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*.  
<https://doi.org/10.1016/j.cscee.2020.100051>
- Cadée, G.C., 2002. Seabirds and floating plastic debris. *Marine Pollution Bulletin*.  
[https://doi.org/10.1016/S0025-326X\(02\)00264-3](https://doi.org/10.1016/S0025-326X(02)00264-3)
- Cai, L., Wang, J., Peng, J., Tan, Z., Zhan, Z., Tan, X., Chen, Q., 2017. Characteristic of microplastics in the atmospheric fallout from Dongguan city, China: preliminary research and first evidence. *Environmental Science and Pollution Research*.  
<https://doi.org/10.1007/s11356-017-0116-x>
- Campanale, C., Savino, I., Pojar, I., Massarelli, C., Uricchio, V.F., 2020. A practical overview of methodologies for sampling and analysis of microplastics in riverine environments. *Sustainability*.  
<https://doi.org/10.3390/su12176755>
- Cao, Y., Wang, Q., Ruan, Y., Wu, R., Chen, L., Zhang, K., Lam, P.K.S., 2020. Intra-day microplastic variations in wastewater: A case study of a sewage treatment plant in Hong Kong. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111535>
- Carney Almroth, B.M., Åström, L., Roslund, S., Petersson, H., Johansson, M., Persson, N.-K., 2018. Quantifying shedding of synthetic fibers from textiles; a source of microplastics released into the environment. *Environmental Science and Pollution Research*.  
<https://doi.org/10.1007/s11356-017-0528-7>
- Carpenter, Smith, 1972. Plastics on the Sargasso Sea Surface. *Science*.
- Carrera, G., Fernández, P., Vilanova, R.M., Grimalt, J.O., 2001. Persistent organic pollutants in snow from European high mountain areas. *Atmospheric Environment*.  
[https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00201-6](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00201-6)
- Chamas, A., Moon, H., Zheng, J., Qiu, Y., Tabassum, T., Jang, J.H., Abu-Omar, M., Scott, S.L., Suh, S., 2020. Degradation rates of plastics in the environment. *ACS Sustainable Chemistry and Engineering*.  
<https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.9b06635>
- Chapron, E., 1999. Contrôles climatique et sismo-tectonique de la sédimentation lacustre dans l'avant pays alpin (Lac du Bourget) durant le quaternaire récent (Alpes françaises). Thèse, Université de Lille 1.  
<https://theses.hal.science/tel-00723721/>
- Cincinelli, A., Scopetani, C., Chelazzi, D., Lombardini, E., Martellini, T., Katsoyiannis, A., Fossi, M.C., Corsolini, S., 2017. Microplastic in the surface waters of the Ross Sea (Antarctica): Occurrence, distribution and characterization by FTIR. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.02.024>
- Clayer, F., Jartun, M., Buenaventura, N.T., Guerrero, J.-L., Lusher, A., 2021. Bypass of Booming Inputs of Urban and Sludge-Derived Microplastics in a Large Nordic Lake. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.0c08443>

- Colton, J.B., Knapp, F.D., Burns, B.R., 1974. Plastic Particles in Surface Waters of the Northwestern Atlantic: The abundance, distribution, source, and significance of various types of plastics are discussed. *Science*.  
<https://doi/10.1126/science.185.4150.491>
- Conkle, J.L., Báez Del Valle, C.D., Turner, J.W., 2018. Are we underestimating microplastic contamination in aquatic environments? *Environmental Management*.  
<https://doi.org/10.1007/s00267-017-0947-8>
- Corcoran, P.L., Norris, T., Ceccanese, T., Walzak, M.J., Helm, P.A., Marvin, C.H., 2015. Hidden plastics of Lake Ontario, Canada and their potential preservation in the sediment record. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2015.04.009>
- Corradini, F., Meza, P., Eguiluz, R., Casado, F., Huerta-Lwanga, E., Geissen, V., 2019. Evidence of microplastic accumulation in agricultural soils from sewage sludge disposal. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.03.368>
- Cuypers, Y., Vinçon-Leite, B., Groleau, A., Tassin, B., Humbert, J.-F., 2011. Impact of internal waves on the spatial distribution of *Planktothrix rubescens* (cyanobacteria) in an alpine lake. *Journal of Microbial Ecology*.  
<https://doi.org/10.1038/ismej.2010.154>
- Danopoulos, E., Twiddy, M., Rotchell, J.M., 2020. Microplastic contamination of drinking water: A systematic review. *Public Library of Science*.  
<https://doi.org/10.1371/journal.pone.0236838>
- De Falco, F., Di Pace, E., Cocca, M., Avella, M., 2019. The contribution of washing processes of synthetic clothes to microplastic pollution. *Scientific Reports*.  
<https://doi.org/10.1038/s41598-019-43023-x>
- Declercq, Y., Delbecq, N., De Grave, J., De Smedt, P., Finke, P., Mouazen, A.M., Nawar, S., Vandenberghe, D., Van Meirvenne, M., Verdoodt, A., 2019. A comprehensive study of three different portable XRF scanners to assess the soil geochemistry of an extensive sample dataset. *Remote Sensing*.  
<https://doi.org/10.3390/rs11212490>
- Di, M., Wang, J., 2018. Microplastics in surface waters and sediments of the Three Gorges Reservoir, China. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.10.150>
- Direction Départementale des Territoires, 2021. Etude de fréquentation du lac du Bourget, synthèse des études 2019/2020.
- Dong, H., Wang, L., Wang, X., Xu, L., Chen, M., Gong, P., Wang, C., 2021. Microplastics in a remote lake basin of the Tibetan plateau: Impacts of atmospheric transport and glacial melting. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.1c03227>
- Dris, R., 2016. First assessment of sources and fate of macro and micro plastics in urban hydrosystems: Case of Paris megacity. Thèse, Université de Bretagne Occidentale.
- Dris, R., Gasperi, J., Rocher, V., Saad, M., Renault, N., Tassin, B., 2015. Microplastic contamination in an urban area: a case study in Greater Paris. *Environmental Chemistry*.  
<https://doi.org/10.1071/EN14167>

- Dris, R., Gasperi, J., Saad, M., Mirande, C., Tassin, B., 2016. Synthetic fibers in atmospheric fallout: A source of microplastics in the environment? *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.01.006>
- Dubosson, C., 2016. Guide du patrimoine naturel de la région Rhône-Alpes - Le lac d'Annecy.
- Dusaucy, J., Gateuille, D., Perrette, Y., Naffrechoux, E., 2021. Microplastic pollution of worldwide lakes. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2021.117075>
- Egessa, R., Nankabirwa, A., Basooma, R., Nabwire, R., 2020. Occurrence, distribution and size relationships of plastic debris along shores and sediment of northern Lake Victoria. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113442>
- EGIS / AQUASCOP, 2016. Etude préalable au Contrat de bassin Fier et Lac d'Annecy pour la réduction des rejets de substances polluantes: Volet eaux pluviales.
- Enders, K., Käßler, A., Binasch, O., Feldens, P., Stollberg, N., Lange, X., Fischer, D., Eichhorn, K.-J., Pollehne, F., Oberbeckmann, S., Labrenz, M., 2019. Tracing microplastics in aquatic environments based on sediment analogies. *Scientific Reports*.  
<https://doi.org/10.1038/s41598-019-50508-2>
- Eriksen, M., Mason, S., Wilson, S., Box, C., Zellers, A., Edwards, W., Farley, H., Amato, S., 2013. Microplastic pollution in the surface waters of the Laurentian Great Lakes. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2013.10.007>
- Faure, F., Corbaz, M., Baecher, H., Felipe, L., 2012. Pollution due to plastics and microplastics in Lake Geneva and in the Mediterranean Sea. *Archives des Sciences*.
- Faure, F., De Alencastro, F., 2016. Microplastiques: Situation dans les eaux de surface en Suisse.
- Faure, F., Demars, C., Wieser, O., Kunz, M., de Alencastro, L.F., 2015. Plastic pollution in Swiss surface waters: nature and concentrations, interaction with pollutants. *Environmental Chemistry*.  
<https://doi.org/10.1071/EN14218>
- Fèvre-Lehoërf, G.L., 1985. Techniques utilisées pour l'étude du zooplancton sur les sites des centrales nucléaires des côtes françaises de manche et atlantique.
- Fischer, E.K., Paglialonga, L., Czech, E., Tamminga, M., 2016. Microplastic pollution in lakes and lake shoreline sediments – A case study on Lake Bolsena and Lake Chiusi (central Italy). *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.03.012>
- Fouinat, L., Malet, E., Sabatier, P., Poulenard, J., Bonet, R., Sagot, C., Arnaud, F., 2017. Monitoring d'un lac de haute altitude. Le cas du lac de la Muzelle (massif des Écrins). *Collection EDYTEM. Cahiers de géographie*.  
<https://doi.org/10.3406/edyte.2017.1382>
- Fox, J.M., Schworer, G.D., Schreiner, K.M., Minor, E.C., Maurer-Jones, M.A., 2022. Microplastics in the Water Column of Western Lake Superior. *ACS Environmental Science and Technology Water*.  
<https://doi.org/10.1021/acsestwater.2c00169>
- Free, C.M., Jensen, O.P., Mason, S.A., Eriksen, M., Williamson, N.J., Boldgiv, B., 2014. High-levels of microplastic pollution in a large, remote, mountain lake. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2014.06.001>
- Frias, J.P.G.L., Nash, R., 2019. Microplastics: Finding a consensus on the definition. *Marine Pollution Bulletin*.



- <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2018.11.022>
- Frossard, V., Goulon, C., Guillard, J., Hamelet, V., Jacquet, S., Laine, L., Rautureau, C., Rimet, F., Tran-Khac, V., 2021. Suivi de la qualité des eaux du lac d'Annecy en 2020. SILA et INRA-Thonon.
- Frossard, V., Laine, L., Rimet, F., Jacquet, S., Tran-Khac, V., Guillard, J., Goulon, C., Hamelet, V., 2022. Suivi de la qualité des eaux du lac d'Annecy en 2021. SILA et INRA-Thonon.
- Frossard, V., Millet, L., Verneaux, V., Jenny, J.-P., Arnaud, F., Magny, M., Poulenard, J., Perga, M.-E., 2013. Chironomid assemblages in cores from multiple water depths reflect oxygen-driven changes in a deep French lake over the last 150 years. *Journal of Paleolimnology*.  
<https://doi.org/10.1007/s10933-013-9722-x>
- Furness, R.W., 1985. Ingestion of plastic particles by seabirds at Gough Island, South Atlantic Ocean. *Environmental Pollution Series A, Ecological and Biological*.  
[https://doi.org/10.1016/0143-1471\(85\)90131-X](https://doi.org/10.1016/0143-1471(85)90131-X)
- Gaillard, J., Chanudet, V., Cunillera, G., Dambrine, E., 2021. Coarse and fine particulate organic matter transport by a fourth-order mountain stream to Lake Bourget (France). *Water*.  
<https://doi.org/10.3390/w13192783>
- Gasperi, J., Wright, S.L., Dris, R., Collard, F., Mandin, C., Guerrouache, M., Langlois, V., Kelly, F.J., Tassin, B., 2018. Microplastics in air: Are we breathing it in? *Current Opinion in Environmental Science and Health*.  
<https://doi.org/10.1016/j.coesh.2017.10.002>
- Gateuille, D., Naffrechoux, E., 2022. Transport of persistent organic pollutants: Another effect of microplastic pollution? *Wiley Interdisciplinary Reviews Water*.  
<https://doi.org/10.1002/wat2.1600>
- Geilfus, N.-X., Munson, K.M., Sousa, J., Germanov, Y., Bhugaloo, S., Babb, D., Wang, F., 2019. Distribution and impacts of microplastic incorporation within sea ice. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2019.06.029>
- Geyer, R., Jambeck, J.R., Law, K.L., 2017. Production, use, and fate of all plastics ever made. *Science Advances*.  
<https://doi.org/10.1126/sciadv.1700782>
- Gillet, F., Gallinelli, P., Naffrechoux, E., Gasperi, J., Gateuille, D., 2020. The "Mantamaran", a light, robust, portable and affordable sampler designed for altitudes lake microplastics sampling campaigns. In *MICRO 2020, Fate and Impact of Microplastics: Knowledge and Responsibilities*.
- Godoy, V., Calero, M., González-Olalla, J.M., Martín-Lara, M.A., Olea, N., Ruiz-Gutierrez, A., Villar-Argaiz, M., 2022. The human connection: First evidence of microplastics in remote high mountain lakes of Sierra Nevada, Spain. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2022.119922>
- Gondouin, J., 2022. Etude du transport des plastiques de la Leyse jusqu'au lac du Bourget. Rapport de stage.
- González-Pleiter, M., Velázquez, D., Edo, C., Carretero, O., Gago, J., Barón-Sola, Á., Hernández, L.E., Yousef, I., Quesada, A., Leganés, F., Rosal, R., Fernández-Piñas, F., 2020. Fibers spreading worldwide: Microplastics and other anthropogenic litter in an Arctic freshwater lake. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137904>

- Grbić, J., Helm, P., Athey, S., Rochman, C., 2020. Microplastics entering northwestern Lake Ontario are diverse and linked to urban sources. *Water Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.115623>
- Gregory, M.R., 1978. Accumulation and distribution of virgin plastic granules on New Zealand beaches. *New Zealand Journal of Marine and Freshwater Research*.  
<https://doi.org/10.1080/00288330.1978.9515768>
- Hamze-Ziabari, S.M., Lemmin, U., Soullignac, F., Foroughan, M., Barry, D.A., 2022. Basin-scale gyres and mesoscale eddies in large lakes: a novel procedure for their detection and characterization, assessed in Lake Geneva. *Geoscientific Model Development*.  
<https://doi.org/10.5194/gmd-15-8785-2022>
- Hatinoğlu, M.D., Sanin, F.D., 2021. Sewage sludge as a source of microplastics in the environment: A review of occurrence and fate during sludge treatment. *Journal of Environmental Management*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2021.113028>
- Hays, H., Cormons, G., 1974. Plastic particles found in tern pellets, on coastal beaches and at factory sites. *Marine Pollution Bulletin*.  
[https://doi.org/10.1016/0025-326X\(74\)90234-3](https://doi.org/10.1016/0025-326X(74)90234-3)
- Hengstmann, E., Weil, E., Wallbott, P.C., Tamminga, M., Fischer, E.K., 2021. Microplastics in lakeshore and lakebed sediments – External influences and temporal and spatial variabilities of concentrations. *Environmental Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envres.2021.111141>
- Hitchcock, J.N., 2020. Storm events as key moments of microplastic contamination in aquatic ecosystems. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139436>
- Horton, A.A., Dixon, S.J., 2018. *Microplastics: An introduction to environmental transport processes*. Wiley Interdisciplinary Reviews Water.  
<https://doi.org/10.1002/wat2.1268>
- Huang, S., Huang, X., Bi, R., Guo, Q., Yu, X., Zeng, Q., Huang, Z., Liu, T., Wu, H., Chen, Y., Xu, J., Wu, Y., Guo, P., 2022. Detection and analysis of microplastics in Human sputum. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.1c03859>
- Huang, Y., Liu, Q., Jia, W., Yan, C., Wang, J., 2020. Agricultural plastic mulching as a source of microplastics in the terrestrial environment. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.114096>
- Ibrahim, Y.S., Tuan Anuar, S., Azmi, A.A., Wan Mohd Khalik, W.M.A., Lehata, S., Hamzah, S.R., Ismail, D., Ma, Z.F., Dzulkarnaen, A., Zakaria, Z., Mustaffa, N., Tuan Sharif, S.E., Lee, Y.Y., 2021. Detection of microplastics in human colectomy specimens. *Journal of Gastroenterology and Hepatology Open*.  
<https://doi.org/10.1002/jgh3.12457>
- Imhof, H.K., Ivleva, N.P., Schmid, J., Niessner, R., Laforsch, C., 2013. Contamination of beach sediments of a subalpine lake with microplastic particles. *Current Biology*.  
<https://doi.org/10.1016/j.cub.2013.09.001>
- INERIS, 2018. Données technico-économiques sur les substances chimiques en France: Microplastiques (No. DRC-18-158744-01541A). INERIS.

- Irfan, T., Khalid, S., Taneez, M., Hashmi, M.Z., 2020. Plastic driven pollution in Pakistan: the first evidence of environmental exposure to microplastic in sediments and water of Rawal Lake. *Environmental Science and Pollution Research*.  
<https://doi.org/10.1007/s11356-020-07833-1>
- Jacquet, S., Cachera, S., Crépin, L., Goulon, C., Guillard, J., Hamelet, V., Hustache, J.C., Laine, L., Perney, P., Quéting, P., Raphy, J., Rasconi, S., Rautureau, C., Rimet, F., Tran-Khac, V., 2022. Suivi environnemental des eaux du lac du Bourget pour l'année 2021.
- Jacquet, S., Cachera, S., Crépin, L., Goulon, C., Guillard, J., Hamelet, V., Hustache, J.C., Laine, L., Perney, P., Quéting, P., Raphy, J., Rasconi, S., Rautureau, C., Rimet, F., Tran-Khac, V., 2021. Suivi environnemental des eaux du lac du Bourget pour l'année 2020. Rapport INRAE-CISALB.
- Jiang, C., Yin, L., Wen, X., Du, C., Wu, L., Long, Y., Liu, Y., Ma, Y., Yin, Q., Zhou, Z., Pan, H., 2018. Microplastics in sediment and surface water of West Dongting Lake and South Dongting Lake: Abundance, source and composition. *International Journal of Environmental Research and Public Health*.  
<https://doi.org/10.3390/ijerph15102164>
- Jiang, J.-Q., 2018. Occurrence of microplastics and its pollution in the environment: A review. *Sustainable Production and Consumption*.  
<https://doi.org/10.1016/j.spc.2017.11.003>
- Julienne, F., Delorme, N., Lagarde, F., 2019. From macroplastics to microplastics: Role of water in the fragmentation of polyethylene. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.124409>
- Kaiser, D., Kowalski, N., Waniek, J.J., 2017. Effects of biofouling on the sinking behavior of microplastics. *Environmental Research Letters*.  
<https://doi.org/10.1088/1748-9326/aa8e8b>
- Kaliszewicz, A., Winczek, M., Karaban, K., Kurzydowski, D., Górka, M., Koselak, W., Romanowski, J., 2020. The contamination of inland waters by microplastic fibres under different anthropogenic pressure: Preliminary study in Central Europe (Poland). *Waste Management and Research*.  
<https://doi.org/10.1177/0734242X20938448>
- Kallenbach, E.M.F., Friberg, N., Lusher, A., Jacobsen, D., Hurley, R.R., 2022. Anthropogenically impacted lake catchments in Denmark reveal low microplastic pollution. *Environmental Science and Pollution Research*.  
<https://doi.org/10.1007/s11356-022-19001-8>
- Käppler, A., Fischer, D., Oberbeckmann, S., Schernewski, G., Labrenz, M., Eichhorn, K.-J., Voit, B., 2016. Analysis of environmental microplastics by vibrational microspectroscopy: FTIR, Raman or both? *Analytical and Bioanalytical Chemistry*.  
<https://doi.org/10.1007/s00216-016-9956-3>
- Karnaukhov, D., Biritskaya, S., Dolinskaya, E., Teplykh, M., Ermolaeva, Y., Pushnica, V., Bukhaeva, L., Kuznetsova, I., Okholina, A., Silow, E., 2022. Distribution features of microplastic particles in the Bolshiye Koty Bay (Lake Baikal, Russia) in winter. *Pollution*.  
<https://doi.org/10.22059/poll.2021.328762.1159>
- Kataoka, T., Nihei, Y., Kudou, K., Hinata, H., 2019. Assessment of the sources and inflow processes of microplastics in the river environments of Japan. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.10.111>

- Katsumi, N., Kusube, T., Nagao, S., Okochi, H., 2020. The role of coated fertilizer used in paddy fields as a source of microplastics in the marine environment. *Marine Pollution Bulletin*. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111727>
- Kelly, A., Lannuzel, D., Rodemann, T., Meiners, K.M., Auman, H.J., 2020. Microplastic contamination in east Antarctic sea ice. *Marine Pollution Bulletin*. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111130>
- Kernchen, S., Löder, M.G.J., Fischer, F., Fischer, D., Moses, S.R., Georgi, C., Nölscher, A.C., Held, A., Laforsch, C., 2022a. Airborne microplastic concentrations and deposition across the Weser River catchment. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.151812>
- Kernchen, S., Schmalz, H., Löder, M.G.J., Georgi, C., Einhorn, A., Greiner, A., Nölscher, A.C., Laforsch, C., Held, A., 2022b. Wet and dry deposition flux measurements of atmospheric microplastic particles in central Germany. <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-1355961/v1>
- Khatmullina, L., Isachenko, I., 2017a. Settling velocity of microplastic particles of regular shapes. *Marine Pollution Bulletin*. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.11.024>
- Khatmullina, L., Isachenko, I., 2017b. Settling velocity of microplastic particles of regular shapes. *Marine Pollution Bulletin*. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.11.024>
- Klein, M., Fischer, E.K., 2019. Microplastic abundance in atmospheric deposition within the Metropolitan area of Hamburg, Germany. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.05.405>
- Koelmans, A.A., Mohamed Nor, N.H., Hermsen, E., Kooi, M., Mintenig, S.M., De France, J., 2019. Microplastics in freshwaters and drinking water: Critical review and assessment of data quality. *Water Research*. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2019.02.054>
- Kooi, M., Reisser, J., Slat, B., Ferrari, F.F., Schmid, M.S., Cunsolo, S., Brambini, R., Noble, K., Sirks, L.-A., Linders, T.E.W., Schoeneich-Argent, R.I., Koelmans, A.A., 2016. The effect of particle properties on the depth profile of buoyant plastics in the ocean. *Scientific Reports*. <https://doi.org/10.1038/srep33882>
- Kowalski, N., Reichardt, A.M., Waniek, J.J., 2016. Sinking rates of microplastics and potential implications of their alteration by physical, biological, and chemical factors. *Marine Pollution Bulletin*. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.05.064>
- Kukulka, T., Proskurowski, G., Morét-Ferguson, S., Meyer, D.W., Law, K.L., 2012. The effect of wind mixing on the vertical distribution of buoyant plastic debris. *Geophysical Research Letters*. <https://doi.org/10.1029/2012GL051116>
- Lenaker, P.L., Baldwin, A.K., Corsi, S.R., Mason, S.A., Reneau, P.C., Scott, J.W., 2019. Vertical distribution of microplastics in the water column and surficial sediment from the Milwaukee river basin to Lake Michigan. *Environmental Science and Technology*. <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b03850>
- Leslie, H.A., van Velzen, M.J.M., Brandsma, S.H., Vethaak, A.D., Garcia-Vallejo, J.J., Lamoree, M.H., 2022. Discovery and quantification of plastic particle pollution in human blood. *Environment International*.

- <https://doi.org/10.1016/j.envint.2022.107199>
- Li, C., Busquets, R., Campos, L.C., 2020. Assessment of microplastics in freshwater systems: A review. *Science of The Total Environment*.
- <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.135578>
- Liang, T., Lei, Z., Fuad, Md.T.I., Wang, Q., Sun, S., Fang, J.K.-H., Liu, X., 2022. Distribution and potential sources of microplastics in sediments in remote lakes of Tibet, China. *Science of The Total Environment*.
- <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.150526>
- Lindeque, P.K., Cole, M., Coppock, R.L., Lewis, C.N., Miller, R.Z., Watts, A.J.R., Wilson-McNeal, A., Wright, S.L., Galloway, T.S., 2020. Are we underestimating microplastic abundance in the marine environment? A comparison of microplastic capture with nets of different mesh-size. *Environmental Pollution*.
- <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.114721>
- Liu, F., Olesen, K.B., Borregaard, A.R., Vollertsen, J., 2019. Microplastics in urban and highway stormwater retention ponds. *Science of The Total Environment*.
- <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.03.416>
- Liu, L.-Y., Mai, L., Zeng, E.Y., 2020. Plastic and microplastic pollution: from ocean smog to planetary boundary threats. A new paradigm for environmental chemistry and toxicology: From concepts to insights.
- <https://doi.org/10.1007/978-981-13-9447-8>
- Liu, Y., Hao, R., Shi, X., Zhang, S., Sun, B., Zhao, S., Huotari, J., 2022. Application of a microplastic trap to the determination of the factors controlling the lakebed deposition of microplastics. *Science of The Total Environment*.
- <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.156883>
- Liu, Z., Bai, Y., Ma, T., Liu, X., Wei, H., Meng, H., Fu, Y., Ma, Z., Zhang, L., Zhao, J., 2022. Distribution and possible sources of atmospheric microplastic deposition in a valley basin city (Lanzhou, China). *Ecotoxicology and Environmental Safety*.
- <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2022.113353>
- Lusher, A.L., Tirelli, V., O'Connor, I., Officer, R., 2015. Microplastics in Arctic polar waters: the first reported values of particles in surface and sub-surface samples. *Scientific Reports*.
- <https://doi.org/10.1038/srep14947>
- Malla-Pradhan, R., Pradhan, B.L., Phoungthong, K., Joshi, T.P., 2023. Microplastic in Freshwater Environment: A review on techniques and abundance for microplastic detection in lake water. *Trends in Sciences*.
- <https://doi.org/10.48048/tis.2023.5202>
- Malygina, N., Mitrofanova, E., Kuryatnikova, N., Biryukov, R., Zolotov, D., Pershin, D., Chernykh, D., 2021. Microplastic Pollution in the Surface Waters from Plain and Mountainous Lakes in Siberia, Russia. *Water*.
- <https://doi.org/10.3390/w13162287>
- Mason, S.A., Daily, J., Aleid, G., Ricotta, R., Smith, M., Donnelly, K., Knauff, R., Edwards, W., Hoffman, M.J., 2020. High levels of pelagic plastic pollution within the surface waters of Lakes Erie and Ontario. *Journal of Great Lakes Research*.
- <https://doi.org/10.1016/j.jglr.2019.12.012>

- Mason, S.A., Kammin, L., Eriksen, M., Aleid, G., Wilson, S., Box, C., Williamson, N., Riley, A., 2016. Pelagic plastic pollution within the surface waters of Lake Michigan, USA. *Journal of Great Lakes Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jglr.2016.05.009>
- Materić, D., Kasper-Giebl, A., Kau, D., Anten, M., Greilinger, M., Ludewig, E., van Seville, E., Röckmann, T., Holzinger, R., 2020. Micro- and nanoplastics in Alpine snow: A new method for chemical identification and (semi)quantification in the nanogram range. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.9b07540>
- Meng, Y., Kelly, F.J., Wright, S.L., 2020. Advances and challenges of microplastic pollution in freshwater ecosystems: A UK perspective. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.113445>
- Merga, L.B., Redondo-Hasselerharm, P.E., Van den Brink, P.J., Koelmans, A.A., 2020. Distribution of microplastic and small macroplastic particles across four fish species and sediment in an African lake. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140527>
- Miao, L., Gao, Y., Adyel, T., Huo, Z., Liu, Z., Wu, J., 2021. Effects of biofilm colonization on the sinking of microplastics in three freshwater environments. *Journal of Hazardous Materials*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.125370>
- Migwi, F.K., Ogunah, J.A., Kiratu, J.M., 2020. Occurrence and Spatial Distribution of Microplastics in the surface Waters of Lake Naivasha, Kenya. *Environ Toxicol Chem*.  
<https://doi.org/10.1002/etc.4677>
- Montuelle, B., Clémens, A., 2015. Zone atelier bassin du Rhône, et observatoire des lacs alpins (France). Le tour des grands lacs alpins en 80 questions. Graie.  
<http://www.graie.org/zabr/OuvrageLacs/accueilLacs.htm>
- Motoda, S., 1959. Devices of simple plankton apparatus. *Memoirs of the faculty of fisheries Hokkaido University*.  
[https://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/bitstream/2115/21829/1/7\(1\\_2\)\\_P73-94.pdf](https://eprints.lib.hokudai.ac.jp/dspace/bitstream/2115/21829/1/7(1_2)_P73-94.pdf)
- Murphy, F., Ewins, C., Carbonnier, F., Quinn, B., 2016. Wastewater Treatment Works (WwTW) as a source of microplastics in the aquatic environment. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.5b05416>
- Napper, I.E., Davies, B.F.R., Clifford, H., Elvin, S., Koldewey, H.J., Mayewski, P.A., Miner, K.R., Potocki, M., Elmore, A.C., Gajurel, A.P., Thompson, R.C., 2020. Reaching New Heights in Plastic Pollution—Preliminary Findings of Microplastics on Mount Everest. *One Earth*.  
<https://doi.org/10.1016/j.oneear.2020.10.020>
- Nava, V., Chandra, Aherne, J., Antão-Geraldes, A.M., Attermeyer, K., Bao, R., Bartrons, M., Berger, S., Biernaczyk, M., Bissen, R., Brookes, J., Brown, D., Cañedo-Argüelles, M., Canle, M., Capelli, C., Carballeira, R., Cereijo, J.L., Chawchai, S., Christensen, S., Christoffersen, K., De Eyto, E., Delgado, J., Dornan, T., Doubek, J., Dusaucy, J., Erina, O., Ersoy, Z., Feuchtmayr, H., Frezzotti, M.L., Galafassi, S., Gateuille, D., Gonçalves, V., Grossart, H.P., Hamilton, D., Harris, T., Kangur, K., Kankılıç, G.B., Kessler, R., Kiel, C., Krynak, E., Leiva-Presa, A., Lepori, F., Matias, M.G., Matsuzaki, S., McElarney, Y., Messyasz, B., Mitchell, M., Mlambo, M., Motitsoe, S., Nandini, S., Orlandi, V., Owens, C., Özkundakci, D., Pinnow, S., Pocięcha, A., Raposeiro, P., Rööm, E.I., Rotta, F., Salmaso, N., Sarma, S.S.S., Sartirana, D., Scordo, F., Sibomana, C., Siewert, D., Stepanowska, K., Tavşanoğlu, U.N., Tereshina, M., Thompson, J., Tolotti, M., Verburg, P., Welsh, B., Wesolek,



- B., Weyhenmeyer, G., Wu, N., Zawisza, E., Zink, L., Leoni, B., 2023. Plastic debris in lakes and reservoirs worldwide. *Nature (article accepté)*.
- Negrete Velasco, A. de J., Rard, L., Blois, W., Lebrun, D., Lebrun, F., Pothe, F., Stoll, S., 2020. Microplastic and fibre contamination in a remote mountain lake in Switzerland. <https://doi.org/10.3390/w12092410>
- Nellier, Y.-M., Perga, M.-E., Cottin, N., Fanget, P., Malet, E., Naffrechoux, E., 2015. Mass budget in two high altitude lakes reveals their role as atmospheric PCB sinks. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.12.052>
- Nguyen, T.H., Kieu-Le, T.-C., Tang, F.H.M., Maggi, F., 2022. Controlling factors of microplastic fibre settling through a water column. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.156011>
- Obbard, R.W., Sadri, S., Wong, Y.Q., Khitun, A.A., Baker, I., Thompson, R.C., 2014. Global warming releases microplastic legacy frozen in Arctic Sea ice. *Earth's Future*.  
<https://doi.org/10.1002/2014EF000240>
- Oni, B.A., Ayeni, A.O., Agboola, O., Oguntade, T., Obanla, O., 2020. Comparing microplastics contaminants in (dry and raining) seasons for Ox- Bow Lake in Yenagoa, Nigeria. *Ecotoxicology and Environmental Safety*.  
<https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2020.110656>
- Ourgaud, M., Phuong, N.N., Papillon, L., Panagiotopoulos, C., Galgani, F., Schmidt, N., Fauvelle, V., Brach-Papa, C., Sempéré, R., 2022. Identification and quantification of microplastics in the marine environment using the Laser Direct Infrared (LDIR) Technique. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.1c08870>
- Pastorino, P., Pizzul, E., Bertoli, M., Anselmi, S., Kušće, M., Menconi, V., Prearo, M., Renzi, M., 2020. First insights into plastic and microplastic occurrence in biotic and abiotic compartments, and snow from a high-mountain lake (Carnic Alps). *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.129121>
- Pastorino, P., Prearo, M., Pizzul, E., Elia, A.C., Renzi, M., Ginebreda, A., Barceló, D., 2022. High-mountain lakes as indicators of microplastic pollution: current and future perspectives. *Water Emerging Contaminants and Nanoplastics*.  
<https://doi.org/10.20517/wecn.2022.01>
- Pawlak, F., Koziol, K., Polkowska, Z., 2021. Chemical hazard in glacial melt? The glacial system as a secondary source of POPs (in the Northern Hemisphere). A systematic review. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.145244>
- Peeken, I., Primpke, S., Beyer, B., Gütermann, J., Katlein, C., Krumpfen, T., Bergmann, M., Hehemann, L., Gerdt, G., 2018. Arctic sea ice is an important temporal sink and means of transport for microplastic. *Nature Communications*.  
<https://doi.org/10.1038/s41467-018-03825-5>
- Peixoto, D., Pinheiro, C., Amorim, J., Oliva-Teles, L., Guilhermino, L., Vieira, M.N., 2019. Microplastic pollution in commercial salt for human consumption: A review. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*.  
<https://doi.org/10.1016/j.ecss.2019.02.018>

- Peng, L., Fu, D., Qi, H., Lan, C.Q., Yu, H., Ge, C., 2020. Micro- and nano-plastics in marine environment: Source, distribution and threats — A review. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.134254>
- Peng, X., Chen, M., Chen, S., Dasgupta, S., Xu, H., Ta, K., Du, M., Li, J., Guo, Z., Bai, S., 2018. Microplastics contaminate the deepest part of the world's ocean. *Geochemical Perspectives Letters*. <https://doi.org/10.7185/geochemlet.1829>
- Perrin, Y., Claeysen, B., Chiri, M.-E., 2021. Observatoire de la fréquentation nautique du lac d'Annecy. [https://www.sila.fr/wp-content/uploads/2022/01/2021\\_SILA\\_Rapport-observatoire-frequentation-nautique-lac-dAnnecy-2021-def.pdf](https://www.sila.fr/wp-content/uploads/2022/01/2021_SILA_Rapport-observatoire-frequentation-nautique-lac-dAnnecy-2021-def.pdf)
- Pesce, S., Lyautey, E., Naffrechoux, E., Ferrari, B., Dabrin, A., Margoum, C., Miège, C., Masson, M., Vivien, R., Bonnineau, C., 2019. Pression chimique et impacts écologiques: Distribution des contaminants et réponses des communautés de microorganismes et d'invertébrés dans les sédiments de l'Ardières et du Tillet (CommuSED). Zone Atelier Bassin du Rhône. <https://hal.inrae.fr/hal-03797482>
- Piñon-Colin, T. de J., Rodriguez-Jimenez, R., Rogel-Hernandez, E., Alvarez-Andrade, A., Wakida, F.T., 2020. Microplastics in stormwater runoff in a semiarid region, Tijuana, Mexico. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.135411>
- PlasticsEurope, 2022. *Plastics - the Facts 2022*. An analysis of European plastics production, demand and waste data. <https://plasticseurope.org/fr/>
- PlasticsEurope, 2020. *Plastics – the Facts 2020*. An analysis of European plastics production, demand and waste data. <https://plasticseurope.org/fr/>
- PlasticsEurope, 2019. *Plastics - the Facts 2019*: An analysis of European plastics production, demand and waste data. <https://plasticseurope.org/fr/>
- Pol, W., Stasińska, E., Żmijewska, A., Więcko, A., Zieliński, P., 2023. Litter per liter – Lakes' morphology and shoreline urbanization index as factors of microplastic pollution: Study of 30 lakes in NE Poland. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.163426>
- Pont, D., 1983. *Recherches qualitatives sur le peuplement de Copépodes, Cladocères et Ostracodes des rizières de Camargue*. Thèse, Université Provence. <http://pascal-francis.inist.fr/vibad/index.php?action=getRecordDetail&idt=9425313>
- Purwiyanto, A.I., Prartono, T., Riani, E., Naulita, Y., Cordova, M.R., Koropitan, A.F., 2022. The deposition of atmospheric microplastics in Jakarta-Indonesia: The coastal urban area. *Marine Pollution Bulletin*. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2021.113195>
- Qi, Y., Yang, X., Pelaez, A.M., Huerta Lwanga, E., Beriot, N., Gertsen, H., Garbeva, P., Geissen, V., 2018. Macro- and micro- plastics in soil-plant system: Effects of plastic mulch film residues on wheat (*Triticum aestivum*) growth. *Science of The Total Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.07.229>
- Ragusa, A., Notarstefano, V., Svelato, A., Belloni, A., Gioacchini, G., Blondeel, C., Zucchelli, E., De Luca, C., D'Avino, S., Gulotta, A., Carnevali, O., Giorgini, E., 2022. Raman microspectroscopy



- detection and characterisation of microplastics in Human breastmilk. *Polymers*.  
<https://doi.org/10.3390/polym14132700>
- Ragusa, A., Svelato, A., Santacroce, C., Catalano, P., Notarstefano, V., Carnevali, O., Papa, F., Rongioletti, M.C.A., Baiocco, F., Draghi, S., D'Amore, E., Rinaldo, D., Matta, M., Giorgini, E., 2021. Plasticenta: First evidence of microplastics in human placenta. *Environment International*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envint.2020.106274>
- Raju, S., Carbery, M., Kuttykattil, A., Senthirajah, K., Lundmark, A., Rogers, Z., Scb, S., Evans, G., Palanisami, T., 2020. Improved methodology to determine the fate and transport of microplastics in a secondary wastewater treatment plant. *Water Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.115549>
- Rapuc, W., 2022. Les grands lacs périalpins: archives du fonctionnement de la zone critique. Thèse, Université Savoie Mont Blanc.  
<https://doi.org/10.4000/quaternaire.16539>
- Razeghi, N., Hamidian, A.H., Wu, C., Zhang, Y., Yang, M., 2021. Microplastic sampling techniques in freshwaters and sediments: a review. *Environmental Chemistry Letters*.  
<https://doi.org/10.1007/s10311-021-01227-6>
- Roblin, B., Ryan, M., Vreugdenhil, A., Aherne, J., 2020. Ambient atmospheric deposition of anthropogenic microfibers and microplastics on the western periphery of Europe (Ireland). *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.0c04000>
- Rothstein, S.I., 1973. Plastic particle pollution of the surface of the Atlantic Ocean: Evidence from a seabird. *The Condor*.  
<https://doi.org/10.2307/1366176>
- Rougier, H., 2000. Essai de typologie des lacs alpins. *Bulletin de l'Association de Géographes Français*.  
<https://doi.org/10.3406/baqf.2000.2180>
- Saarni, S., Hartikainen, S., Meronen, S., Uurasjärvi, E., Kalliokoski, M., Koistinen, A., 2021. Sediment trapping – An attempt to monitor temporal variation of microplastic flux rates in aquatic systems. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2021.116568>
- Schell, T., Hurley, R., Nizzetto, L., Rico, A., Vighi, M., 2021. Spatio-temporal distribution of microplastics in a Mediterranean river catchment: The importance of wastewater as an environmental pathway. *Journal of Hazardous Materials*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.126481>
- Schwabl, P., 2018. Des microplastiques retrouvés au niveau mondial dans les selles humaines. Une étude pilote. *Hegél*.  
<https://doi.org/10.3917/heg.084.0290>
- Scopetani, C., Chelazzi, D., Cincinelli, A., Esterhuizen-Londt, M., 2019. Assessment of microplastic pollution: occurrence and characterisation in Vesijärvi lake and Pikku Vesijärvi pond, Finland. *Environmental Monitoring and Assessment*.  
<https://doi.org/10.1007/s10661-019-7843-z>
- Semcesen, P.O., Wells, M.G., 2021. Biofilm growth on buoyant microplastics leads to changes in settling rates: Implications for microplastic retention in the Great Lakes. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2021.112573>

- Shruti, V.C., Pérez-Guevara, F., Elizalde-Martínez, I., Kutralam-Muniasamy, G., 2020. First study of its kind on the microplastic contamination of soft drinks, cold tea and energy drinks - Future research and environmental considerations. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.138580>
- Sighicelli, M., Pietrelli, L., Lecce, F., Iannilli, V., Falconieri, M., Coscia, L., Di Vito, S., Nuglio, S., Zampetti, G., 2018. Microplastic pollution in the surface waters of Italian subalpine lakes. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.02.008>
- Song, Y.K., Hong, S.H., Jang, M., Han, G.M., Jung, S.W., Shim, W.J., 2017. Combined effects of UV exposure duration and mechanical abrasion on microplastic fragmentation by polymer type. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.6b06155>
- Sruthy, S., Ramasamy, E.V., 2017. Microplastic pollution in Vembanad Lake, Kerala, India: The first report of microplastics in lake and estuarine sediments in India. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.12.038>
- Stang, C., Mohamed, B.A., Li, L.Y., 2022. Microplastic removal from urban stormwater: Current treatments and research gaps. *Journal of Environmental Management*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2022.115510>
- Stock, F., Kochleus, C., Bänsch-Baltruschat, B., Brennholt, N., Reifferscheid, G., 2019. Sampling techniques and preparation methods for microplastic analyses in the aquatic environment – A review. *Trends in Analytical Chemistry*.  
<https://doi.org/10.1016/j.trac.2019.01.014>
- Su, L., Nan, B., Craig, N.J., Pettigrove, V., 2020. Temporal and spatial variations of microplastics in roadside dust from rural and urban Victoria, Australia: Implications for diffuse pollution. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.126567>
- Su, L., Xue, Y., Li, L., Yang, D., Kolandhasamy, P., Li, D., Shi, H., 2016. Microplastics in Taihu Lake, China. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.06.036>
- Sujathan, S., Kniggendorf, A.-K., Kumar, A., Roth, B., Rosenwinkel, K.-H., Nogueira, R., 2017. Heat and bleach: A cost-efficient method for extracting microplastics from return activated sludge. *Archives of Environmental Contamination and Toxicology*.  
<https://doi.org/10.1007/s00244-017-0415-8>
- Talvitie, J., Mikola, A., Setälä, O., Heinonen, M., Koistinen, A., 2017. How well is microlitter purified from wastewater? – A detailed study on the stepwise removal of microlitter in a tertiary level wastewater treatment plant. *Water Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.watres.2016.11.046>
- Tamminga, M., Fischer, E.K., 2020. Microplastics in a deep, dimictic lake of the North German Plain with special regard to vertical distribution patterns. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.115507>
- Trolle, D., Hamilton, D.P., Hendy, C., Pilditch, C., 2008. Sediment and nutrient accumulation rates in sediments of twelve New Zealand lakes: influence of lake morphology, catchment characteristics and trophic state. *Marine and Freshwater Research*.  
<https://doi.org/10.1071/MF08131>

- Truong, T.-N.-S., Strady, E., Kieu-Le, T.-C., Tran, Q.-V., Le, T.-M.-T., Thuong, Q.-T., 2021. Microplastic in atmospheric fallouts of a developing Southeast Asian megacity under tropical climate. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.129874>
- Turner, S., Horton, A.A., Rose, N.L., Hall, C., 2019. A temporal sediment record of microplastics in an urban lake, London, UK. *Journal of Paleolimnology*.  
<https://doi.org/10.1007/s10933-019-00071-7>
- Uddin, S., Fowler, S., Behbehani, M., 2020. An Assessment of Microplastic Inputs into the Aquatic Environment from Wastewater Streams. *Marine Pollution Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111538>
- Unice, K.M., Weeber, M.P., Abramson, M.M., Reid, R.C.D., van Gils, J.A.G., Markus, A.A., Vethaak, A.D., Panko, J.M., 2019. Characterizing export of land-based microplastics to the estuary - Part I: Application of integrated geospatial microplastic transport models to assess tire and road wear particles in the Seine watershed. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.07.368>
- Uurasjärvi, E., Hartikainen, S., Setälä, O., Lehtiniemi, M., Koistinen, A., 2020. Microplastic concentrations, size distribution, and polymer types in the surface waters of a northern European lake. *Water Environment Research*.  
<https://doi.org/10.1002/wer.1229>
- Van Melkebeke, M., Janssen, C., De Meester, S., 2020. Characteristics and sinking behavior of typical microplastics including the potential effect of biofouling: Implications for remediation. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.9b07378>
- Vaughan, R., Turner, S.D., Rose, N.L., 2017. Microplastics in the sediments of a UK urban lake. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.05.057>
- Venrick, E.L., Bartram, W.C., Platt, C.J., Thornhill, M.S., Yates, R.E., 1973. Man-made objects on the surface of the central North Pacific Ocean. *Nature*.  
<https://doi.org/10.1038/241271a0>
- Verpoorter, C., Kutser, T., Seekell, D.A., Tranvik, L.J., 2014. A global inventory of lakes based on high-resolution satellite imagery. *Geophysical Research Letters*.  
<https://doi.org/10.1002/2014GL060641>
- Wagner, S., Hüffer, T., Klöckner, P., Wehrhahn, M., Hofmann, T., Reemtsma, T., 2018. Tire wear particles in the aquatic environment - A review on generation, analysis, occurrence, fate and effects. *Water Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.03.051>
- Waldschläger, K., Schüttrumpf, H., 2019. Effects of particle properties on the settling and rise velocities of microplastics in freshwater under laboratory conditions. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.8b06794>
- Walkinshaw, C., Lindeque, P.K., Thompson, R., Tolhurst, T., Cole, M., 2020. Microplastics and seafood: lower trophic organisms at highest risk of contamination. *Ecotoxicology and Environmental Safety*.  
<https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2019.110066>

- Waller, C.L., Griffiths, H.J., Waluda, C.M., Thorpe, S.E., Loaiza, I., Moreno, B., Pachterres, C.O., Hughes, K.A., 2017. Microplastics in the Antarctic marine system: An emerging area of research. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.03.283>
- Wang, W., Ndungu, A.W., Li, Z., Wang, J., 2017. Microplastics pollution in inland freshwaters of China: A case study in urban surface waters of Wuhan, China. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.09.213>
- Werbowski, L.M., Gilbreath, A.N., Munno, K., Zhu, X., Grbic, J., Wu, T., Sutton, R., Sedlak, M.D., Deshpande, A.D., Rochman, C.M., 2021. Urban stormwater runoff: a major pathway for anthropogenic particles, black rubbery fragments, and other types of microplastics to urban receiving waters. *ACS Environmental Science and Technology Water*.  
<https://doi.org/10.1021/acsestwater.1c00017>
- Wong, C.S., Green, D.R., Cretney, W.J., 1974. Quantitative tar and plastic waste distributions in the Pacific Ocean. *Nature*.  
<https://doi.org/10.1038/247030a0>
- Wong, J.K.H., Lee, K.K., Tang, K.H.D., Yap, P.-S., 2020. Microplastics in the freshwater and terrestrial environments: Prevalence, fates, impacts and sustainable solutions. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137512>
- Wright, S.L., Ulke, J., Font, A., Chan, K.L.A., Kelly, F.J., 2020. Atmospheric microplastic deposition in an urban environment and an evaluation of transport. *Environment International*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.105411>
- Wuest, A., Lorke, A., 2003. Small-scale hydrodynamics in lakes. *Annual Review of Fluid Mechanics*.  
<https://doi.org/10.1146/annurev.fluid.35.101101.161220>
- Xia, W., Rao, Q., Deng, X., Chen, J., Xie, P., 2020a. Rainfall is a significant environmental factor of microplastic pollution in inland waters. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139065>
- Xia, W., Rao, Q., Deng, X., Chen, J., Xie, P., 2020b. Rainfall is a significant environmental factor of microplastic pollution in inland waters. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139065>
- Xiong, X., Zhang, K., Chen, X., Shi, H., Luo, Z., Wu, C., 2018. Sources and distribution of microplastics in China's largest inland lake – Qinghai Lake. *Environmental Pollution*.  
<https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.12.081>
- Xue, B., Zhang, L., Li, R., Wang, Y., Guo, J., Yu, K.-F., Wang, S., 2020. Underestimated microplastic pollution derived from fishery activities and “hidden” in deep sediment. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.9b04850>
- Yang, L., Zhang, Y., Kang, S., Wang, Z., Wu, C., 2020. Microplastics in freshwater sediment: A review on methods, occurrence, and sources. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.141948>
- Yang, S., Zhou, M., Chen, X., Hu, L., Xu, Y., Fu, W., Li, C., 2022. A comparative review of microplastics in lake systems from different countries and regions. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.131806>

- Yin, L., Wen, X., Du, C., Jiang, J., Wu, L., Zhang, Y., Hu, Z., Hu, S., Feng, Z., Zhou, Z., Long, Y., Gu, Q., 2020. Comparison of the abundance of microplastics between rural and urban areas: A case study from East Dongting Lake. *Chemosphere*.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125486>
- Yonkos, L.T., Friedel, E.A., Perez-Reyes, A.C., Ghosal, S., Arthur, C.D., 2014. Microplastics in four estuarine rivers in the Chesapeake Bay, U.S.A. *Environmental Science and Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/es5036317>
- Yuan, W., Liu, X., Wang, W., Di, M., Wang, J., 2019. Microplastic abundance, distribution and composition in water, sediments, and wild fish from Poyang Lake, China. *Ecotoxicology and Environmental Safety*.  
<https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2018.11.126>
- Zbyszewski, M., Corcoran, P.L., 2011. Distribution and degradation of fresh water plastic particles along the beaches of Lake Huron, Canada. *Water Air Soil Pollution*.  
<https://doi.org/10.1007/s11270-011-0760-6>
- Zhang, Q., Xu, E.G., Li, J., Chen, Q., Ma, L., Zeng, E.Y., Shi, H., 2020. A review of microplastics in table salt, drinking water, and air: Direct Human Exposure. *Environmental Science Technology*.  
<https://doi.org/10.1021/acs.est.9b04535>
- Zhang, Yulan, Kang, S., Allen, S., Allen, D., Gao, T., Sillanpää, M., 2020. Atmospheric microplastics: A review on current status and perspectives. *Earth-Science Reviews*.  
<https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2020.103118>
- Zhang, Yafei, Liang, J., Zeng, G., Tang, W., Lu, Y., Luo, Y., Xing, W., Tang, N., Ye, S., Li, X., Huang, W., 2020. How climate change and eutrophication interact with microplastic pollution and sediment resuspension in shallow lakes: A review. *Science of The Total Environment*.  
<https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.135979>
- Zhou, Q., Tian, C., Luo, Y., 2017. Various forms and deposition fluxes of microplastics identified in the coastal urban atmosphere. *Chinese Science Bulletin*.  
<https://doi.org/10.1360/N972017-00956>
- Ziajahromi, S., Neale, P.A., Rintoul, L., Leusch, F.D.L., 2017. Wastewater treatment plants as a pathway for microplastics: Development of a new approach to sample wastewater-based microplastics. *Water Research*.  
<https://doi.org/10.1016/j.watres.2017.01.042>
- Zobkov, M., Belkina, N., Kovalevski, V., Zobkova, M., Efremova, T., Galakhina, N., 2020. Microplastic abundance and accumulation behavior in Lake Onego sediments: a journey from the river mouth to pelagic waters of the large boreal lake. *Journal of Environmental Chemical Engineering*.  
<https://doi.org/10.1016/j.jece.2020.104367>





Contents lists available at ScienceDirect

Environmental Pollution

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/envpol](http://www.elsevier.com/locate/envpol)

Review

Microplastic pollution of worldwide lakes<sup>☆,☆☆</sup>Julia Dusaucy<sup>\*</sup>, David Gateuille, Yves Perrette, Emmanuel Naffrechoux

Savoie Mont Blanc University, CNRS, Univ. Grenoble Alpes EDYTEM, 73000, Chambéry, France



## ARTICLE INFO

## Article history:

Received 7 July 2020

Received in revised form

29 March 2021

Accepted 31 March 2021

Available online 5 April 2021

## Keywords:

Microplastic

Freshwater

Source

Pollution

Lake

Contamination

## ABSTRACT

Studies on microplastic (MP) pollution in lakes are recent, although the problem of MP particles in the oceans was first discovered in the 1970s. The first study on lakes was published in 2011. Since then, to our knowledge, 98 lakes have been investigated worldwide. In recent years, studies on this topic have increased worldwide, particularly those focusing on urbanised lakes. Most of the plastic waste in the seas and oceans originates from the terrestrial environment and inland waters. Moreover, lakes are potential temporary or long-term MP accumulators, according to the residence time of water. They are also of high interest for biodiversity, ecology, and the economy. Lacustrine ecosystems may suffer the same fate as marine ecosystems, or even worse, owing to their greater exposure. With the significant focus on ocean and sea contamination, contamination of freshwater ecosystems and lakes is a new and rising topic. However, as a new field of research, several methodological issues have been raised. The team diversity worldwide has led to contrasting sampling techniques and materials, sample treatments, analyses, and presentation of results. Consequently, it is necessary to determine several consensus between scientific teams in order to work together with accuracy, produce comparable results, speed up knowledge sharing and reduce the reproducibility crisis. This review focuses on (1) MP contamination in 98 worldwide lakes. We identify (2) the theoretical sources of MPs and provide (3) an estimate of MP pollution in different compartments of the lakes based on current state-of-the-art methods. In addition, we also report (4) the predominant MP size classes and polymer types. Finally, we suggest (5) several recommendations to build a consensus between all the working teams to facilitate decision-making by public authorities.

© 2021 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

Macroplastics, microplastics (MPs), and nanoplastics have been widely studied in the past few years, particularly in marine and oceanic environments. Plastic pollution in aquatic environments was observed for the first time in the 1970s. In the Sargasso Sea, the plastic concentration was close to 3,500 items/km<sup>2</sup>, which was mainly comprised of cigarette holders (Carpenter and Smith, 1972). Recently, many studies have focused on plastic pollution in freshwater environments, especially rivers and lakes. In 2011, 80% of the

plastic pollution in seas and oceans originated from the terrestrial environment (Andrady, 2011). In 2019, the MP contamination observed in the terrestrial environment was 4–23 times higher than that in marine ecosystems (Horton et al., 2017). Freshwater is considered one of the sources of MPs flowing into the seas, and rivers are considered the main transport vector of plastic debris from terrestrial sources (Iannilli et al., 2020). It is of high importance to study freshwater ecosystems and analyse the plastic pollution sources, dispersion dynamics, accumulation, and fate of these pollutants. Lacustrine ecosystems are pollutant accumulators, and consequently, indicators of catchment functioning. Climatic, geographical, and physical characteristics determine the residence time of water in lakes. Pollutant circulations depend on this duration; a short retention time leads to quick contamination and cleaning, whereas a long retention time leads to slower changes in the plastic contents and additional processes such as local fragmentation (Montuelle et al., 2015). Therefore, lakes with long water retention times seem to accumulate a greater amount of MPs, as observed in Mongolia (Free et al., 2014; Iannilli et al., 2020). Some

<sup>\*</sup> This paper has been recommended for acceptance by Eddy Y. Zeng.

<sup>\*\*</sup> This research received specific grants from the Agence de l'Eau Rhône Méditerranée Corse (Agence de l'eau RMC) and the Fondation Université Savoie Mont-Blanc (Fondation USMB).

<sup>\*</sup> Corresponding author.

E-mail addresses: [juliadusaucy@univ-smb.fr](mailto:juliadusaucy@univ-smb.fr) (J. Dusaucy), [david.gateuille@univ-smb.fr](mailto:david.gateuille@univ-smb.fr) (D. Gateuille), [yves.perrette@univ-smb.fr](mailto:yves.perrette@univ-smb.fr) (Y. Perrette), [emmanuel.naffrechoux@univ-smb.fr](mailto:emmanuel.naffrechoux@univ-smb.fr) (E. Naffrechoux).



plastic polymers are positively buoyant and float on the surface or strand on the coast; some are negatively buoyant and will remain in the water column or sink to the benthic zone. The behaviour of polymers plays a crucial role and influences the subsequent contamination of rivers, seas, and oceans. Furthermore, human societies are dependent on these ecosystems. Lakes offer many resources to societies based on ecosystem services such as control services (flooding and drought), provision services (drinking water; food production via fisheries, aquaculture and irrigation of agricultural lands; energy production via hydropower dams), cultural services (recreation) and, support for favourable conditions for sustainable nutrient cycling. Lakes are essential to the function of the economy and offer many ecosystem benefits. Halieutic resources allow the local development of professional fishing spots, restaurants and, culinary businesses; sports and, recreational possibilities are key elements for tourism; biodiversity contributes to good ecological functioning and reinforces tourism. In addition, MPs, which threaten fauna (Bellasi et al., 2020), could endanger humans through their diet (Cox et al., 2019; Koelmans et al., 2019; Zhang et al., 2020c), and may be vectors of potentially pathogenic bacteria and viruses (Arias-Andres et al., 2018; Kirstein et al., 2016; Wu et al., 2019). Currently, MPs are ubiquitous in urbanised and more isolated environments. In 2010, worldwide plastic production reached 265 million t (PlasticsEurope, 2011). In 2018, it reached 359 million t (PlasticsEurope, 2019). In the same year, European plastic production reached 62 million t (PlasticsEurope, 2019). According to a recent study, the annual production of plastic fibres increased by more than 6%/y, reaching 60 million t in 2016, or approximately 16% of global plastic production (Gasperi et al., 2018). In 2019, it was predicted that the proportion part of poorly managed plastic waste could increase, from 60 to 99 million t in 2015 to 155–265 million t by 2060 (Lebreton and Andrady, 2019). If this estimation is correct, then lacustrine ecosystems will be significantly affected by MP contamination. However, knowledge of plastic pollution in lakes worldwide is still incomplete. In 2012, the mean publication rates on MP pollution were: 23, 5, and 2 papers for marine, freshwater, and estuarine ecosystems, respectively (Meng et al., 2020). Nevertheless, studies concerning MP pollution in lakes have recently increased. This review examines all the studies concerning MP in lakes to date to collect available data and to understand the types of plastic pollution in the lacustrine ecosystem. To our best knowledge, MP pollution has been studied in 98 lakes worldwide (Tables S1–S2). The aim of this work was to compare the worldwide MP contaminations in lakes. Unfortunately, in view of the high heterogeneity of the sampling protocols, result reports and, definitions used, comparisons among the obtained results are laborious. Therefore, we carefully compared: (1) the methods to investigate MP in lakes and we suggested a normalised protocol, (2) all the MP contaminations in the various environmental compartments of each lake in regards with methodologies and sampling protocols and, (3) MP contaminations sources according to demographic pressures (urban vs rural lakes).

## 2. Material and methods

### 2.1. Sampling methodologies

Among all the studies investigated MPs in lakes, three sampling methods have been used: net was the most frequent (22 articles), pump (7 articles) and, sampler/jar/bucket are more occasionally employed (8 articles taken together). Few studies were using pump system because of its cost and specific purpose (net is also used in plankton studies); however, it allowed to easily filter different MP size classes compared to net system. Two major difficulties were related to pump sampling: i) to convert a precise measurement of

the filtered volume ( $m^3$ ) into a filtered surface to provide a density ( $MP/km^2$ ) for floating MP and ii) avoid clogging of a limited filtration area while filtering large volume of water to insure the sampling representativeness. The use of buckets, jars and samplers also led to volume limitation due to the necessity to take the samples back to the laboratory and consequently, one could question the sample representativeness. However, filtration conditions in the laboratory would be better controlled. Net systems were most common (22 articles) because they can also be used in plankton studies and usual mesh size ( $300 \mu m$ ) were fairly low cost (nets  $< 300 \mu m$  are more expensive). Unlike pump methods, nets have a large filtration area which limits clogging and allows larger and thus more representative samples. Nevertheless, a major bias in MP investigation using nets lied in the difficulty to properly assess the filtered volume. Indeed, authors assumed that water velocity within the net equal the boat speed or the flow velocity in the river which was incorrect and induced an overestimation of the filtered volume and a subsequent underestimation of the MP contamination. For instance (Gateuille et al., 2020), reported an averaged filtration velocity, three times lower than the boat speed using a  $50 \mu m$  net. Therefore, authors willing to use nets should be able to accurately measure the flow velocity in the net. The measurement of the instantaneous filtration velocity is also an efficient tool to monitor the net clogging and to stop the sampling as soon as the net clogging starts therefore preventing a surface water back-flow that could lead to the loss of floating MPs. Differences in results were observed when using a net or pump (Uurasjärvi et al., 2020). The MP concentrations in the surface water of Kallavesi Lake (Finland) greatly differed according to the sampling strategy, with  $0.27 \pm 0.18$  particles/ $m^3$  obtained with a  $333 \mu m$  Manta net and  $180 \pm 2.30$  particles/ $m^3$  obtained with a  $300 \mu m$  filtering pump (Uurasjärvi et al., 2020). However, the pump and net samplings were not carried out exactly at the same places during this study and the differences in MP concentrations could be due to spatial heterogeneity rather than sampling protocols. Therefore, further investigations are required to accurately compare these two sampling methods (pump and net). As most of the published results were obtained using net sampling, and because of the ease of access of this device, we suggest the use of nets for surface water sampling, with the measurement of water velocity in the net to obtain a precise value of filtered water volume. Moreover, it is essential to reach an agreement on the mesh size (Table S2). The  $300 \mu m$  net is the most commonly used (particularly 300, 333 and, 355  $\mu m$ ). Approximately 80% of 50 published aquatic surveys concerning MPs in aquatic environments only accounted for plastics  $\geq 300 \mu m$  in diameter, whereas  $>95\%$  of particles in surveyed products were smaller than the  $300 \mu m$  minimum diameter (Conkle et al., 2018). The use of  $50 \mu m$  or at least  $\leq 100 \mu m$  nets will reduce particle underestimation and fill the knowledge gap on the smallest plastic particles. Some researchers have already started working on smaller particles in lake surface waters, such as  $20 \mu m$  (Kaliszewicz et al., 2020),  $20 \mu m$  (Bharath et al., 2021),  $38 \mu m$  (Alfonso et al., 2020b),  $50 \mu m$  (Pastorino et al., 2020) and,  $60 \mu m$  (Bertoldi, 2020). In order to consider as many MPs as possible, the lowest mesh size should be used to avoid underestimation. However, using thinner nets can be difficult if there is a large number of suspended solids in the water. We suggest using nets with a mesh size between  $20 \mu m$  and  $300 \mu m$  to reach a compromise between the lowest amount of clogging and the highest quantity of sampled MPs. The sampling depths for surface waters were very heterogeneous, namely 16 cm, 20 cm, 30 cm, 50 cm and, 100 cm below the surface. The sampling depth was often not mentioned at all. The researchers working on MP in freshwaters (lakes, tributaries) should mention it to help readers to understand the results. In order to



standardise studies, we suggest to sample water between surface and ~50 cm at the most and to use another system to sample the column water independently. Further studies should focus on column water (from the bottom to surface water) sampling with a Niskin bottle or net lifting. This method would help to determine and understand the distribution of particles throughout the water column and their transfer to sediments according to lake characteristics. Finally, we advise scientific community to be rigorous in writing and explaining their sampling and laboratory techniques (e.g.: MP detection limit according to the analysis system, class size studied according to sampling methods). In order to ease the information research in a paper we suggest that authors provide with the main details of the methods (sampling, treatment, analysis) rather than only refer to scientific studies which is time consuming for the reader and sometimes refers to inaccessible publications. In addition, we suggest to sample the largest possible volume for each water sample to be more representative and ease comparison of future scientific studies. Concerning the sediment compartment, it is important to describe the type (sandy, gravelly, or muddy) and the organic carbon content because of their influence on plastic bonds and mechanical pit capacities (Zbyszewski et al., 2014). In addition, the sample depth and thickness should be mentioned each time. We also recommend that authors report contaminations either in MP/m<sup>3</sup> or MP/kg (dry weight: dw or, wet weight: ww) with the corresponding sediment density. The studied samples should be precisely named following our suggestions (lake bottom sediments (LBoS), lakeshore sediments (LShS) or lake beach sediments (LBeS)) to help in cross analysis. LBoS and LShS are both under water, whereas LBeS is mainly a temporary sink for buoyant particles and can also be contaminated by direct discharge of MPs and macroplastics. Among the studies, different terminology was used, which led to misunderstandings.

## 2.2. Quantification methods, reporting of result, and definitions

First, we suggest using a shared format to report the MP concentrations in surface water, sediment and, fauna to ease the comparison between studies. Further investigations should study the MP concentrations by volume (particles/m<sup>3</sup>), the average particle size (ideally the volume or at least the minimum and maximum dimensions of the particle already provide a good indication), mass (particles/kg), and individuals (particles/aquatic organism) for water, sediment and, fauna, respectively. Moreover, it is essential to report at least the mean concentration and standard deviation. In addition, the minimal and maximal values could be provided. Further studies should always include the total and blank concentrations in parallel and not subtract the blank concentration to avoid the use of different subtraction methods. Second, it is important to precisely quantify the types and forms of polymers (percentage of the concentration) and avoid quantification ranking to better compare all the studies. Concerning the polymer types, several acronyms have been used among studies, thereby making the parallel comparison more complex. For example, polyacrylate can be named PAK or PAC. We suggest naming polymers PE, PP, copolymer (CP), PS, nitrocellulose (NCE), PA, PET, PVC, EPS, PES, PAC (polyacrylate), polyurethane (PU), polycarbonate (PC), polymethyl methacrylate (PMMA), polybutyl methacrylate (PBMA), acrylonitrile butadiene styrene (ABS), styrene butadiene rubber (SBR), and others/unknowns (O/U). Copolymers can include PU-PET, PVC-PSS (polystyrene sulfonate), PE-PP, PE-PET, PAC-PET, VC-VAC (vinyl chloride/vinyl acetate), and ethylene-vinyl acetate (EVA). We suggest including natural and synthetic sources in cellulose given the complexity of discriminating between parental and regenerated compounds through spectroscopic analyses (Binelli et al., 2020; Hartmann et al., 2019; Stark, 2019). The main components of the

tire particles (copolymers ABS and SBR) are not included given the complexity of identifying these particles by FT-IR spectroscopy. However, they could be a major source of MPs in the lacustrine environment. It is necessary to develop an efficient analytical methodology to precisely quantify these copolymers. Concerning the MP shapes, we suggest reporting them as follows to avoid ambiguous communication and generation of incomparable data: fibres (which includes fibres, filaments and lines), fragments, films/sheets, pellets (which includes granules, flakes, microbeads and, spheres) and, foams (which includes Styrofoam). Some studies differentiate fibres from filaments, pellets from granules but as it is difficult to visually differentiate them, combining them will avoid incorrect identification. Further studies should quantify the particle shapes by percentage (as polymer types) to expose differences among lakes worldwide and precise percentage estimates (by mass and/or number). Ideally, the current technological tools allow us to have the average size distribution of the particles which must be informed. If it is not possible, to easily compare the report of precedent and future results, we suggest using the same four size classes in further studies as follows: < 50 µm, 50 µm–300 µm, 300 µm–1 mm, 1 mm–5 mm. Moreover, the detection limit of FTIR is approximately 6.25 µm, we suggest to set the limit at 8 times the measurement limit. We suggest a limit of 50 µm because studies that worked on small plastic particles were at or below this size (Section 5.1), including 38 µm (Alfonso et al., 2020b), 45 µm (Jiang et al., 2018), 47 µm (Alfonso et al., 2020a), and 50 µm (Wang et al., 2017; Xia et al., 2020; Yuan et al., 2019), for surface water. Several studies worked at or above the 100 µm limit for surface water, namely 100 µm (Bordós et al., 2019), 106 µm (Cable et al., 2017), 112 µm (Xiong et al., 2018), 125 µm (Grbić et al., 2020), and 150 µm (Migwi et al., 2020). The 300 µm frontier corresponds to the size of a plankton net, and so far, most studies have worked with 300 µm or 333 µm nets. Among studies concerning MPs in lakes, several quantified particles up to 999 µm (Eriksen et al., 2013; Free et al., 2014; Mason et al., 2016, 2020) or 1 mm (Alfonso et al., 2020a, 2020b; Di and Wang, 2018; Oni et al., 2020). We suggest a consensus of 1 mm because most of the studies were interested in particles smaller than 1 mm and some define MP as particles below or equal to 1 mm. Finally, we suggest a limit of 5 mm according to the initial MP definition (Arthur and Bamford, 2009).

## 2.3. Study sites

To our knowledge, MP contamination has been studied in 98 lakes to quantify the concentration or identify the shape and polymeric composition of microplastic debris. However, to better understand the fate of MPs in lakes, researchers should consider and highlight numerous physical and environmental characteristics of freshwater ecosystems, especially the length of the main tributary (km) and its flow (m<sup>3</sup>/s), the water retention time (year), the surface area (km<sup>2</sup>), volume (km<sup>3</sup>), mean and maximum depth (m), watershed area (km<sup>2</sup>), lake altitude (m), land uses (percentage of urban, agricultural and road areas), the waste and wastewater treatment policy, population density (inhabitants/km<sup>2</sup>) and, distance of inhabited areas to the lake (km), as shown in a recent study in Table S1 (Alfonso et al., 2020b). These environmental parameters will allow readers to understand the place of the lake, its environment, its watershed and, the potential MPs sources that may be linked to it. Moreover, these provided characteristics will ease the comparisons between studies and the interpretation of the differences among results. Currently, there is almost no available data for remote lakes (Tables S1–S2), which is defined as an ecosystem far from any city, town, village or, hamlet that is only reachable through hiking and does not contain anthropogenic settlements



(except for mountain huts) in the catchment basin. Remote lakes could also be affected by MPs via atmospheric fallout on the water surface or on the soils in the watershed. Investigation of these remote sites can help to quantify the flux of atmospheric deposition after mid-range or long-range atmospheric transport of MPs. It will also help to identify the impacts on aquatic life because of the high sensitivity of these ecosystems to xenobiotic pressure.

### 3. Estimation of microplastic pollution in worldwide lakes

The concentrations of MPs and other anthropogenic particles in Lake Ontario streams were correlated with urbanisation in the region (Grbić et al., 2020). In order to better compare the MP contamination between lakes subjected to various pollution pressures, we differentiated the lakes according to the proximity of urbanised areas and the number of inhabitants. We presumed that lakes distant to urbanised areas were more affected by atmospheric fallout and agricultural runoff than those close to densely inhabited areas, which were more affected by macroplastic pollution, impermeable surface runoff and, high-volume wastewater discharge. We distinguish "rural" and "urban" lakes as defined in Sections 3.1 and 3.2, respectively. MPs contamination on surface waters and sediments of rural and urban lakes were compared (Figs. 1 and 2) according to size range studied, units ( $\text{MP}/\text{m}^3$ ,  $\text{MP}/\text{km}^2$ ,  $\text{MP}/\text{kg}$  and  $\text{MP}/\text{m}^2$ ) and available data. Concerning surface waters (Fig. 1), values were comprised between  $0.27 \text{ MP}/\text{m}^3$  and  $34,000 \text{ MP}/\text{m}^3$  with a median value around  $1,442 \text{ MP}/\text{m}^3$  and, between  $10,900 \text{ MP}/\text{km}^2$  and, about  $2,090,000 \text{ MP}/\text{km}^2$  with a median

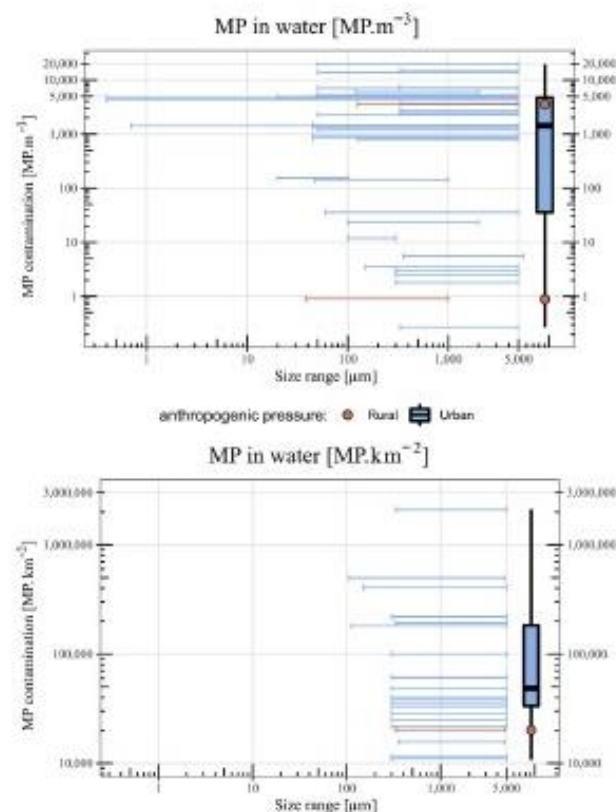


Fig. 1. Microplastic concentrations on surface waters of worldwide lakes ( $\text{MP}/\text{m}^3$  or  $\text{MP}/\text{km}^2$ ) according to size range studied and anthropogenic pressure (rural, urban).

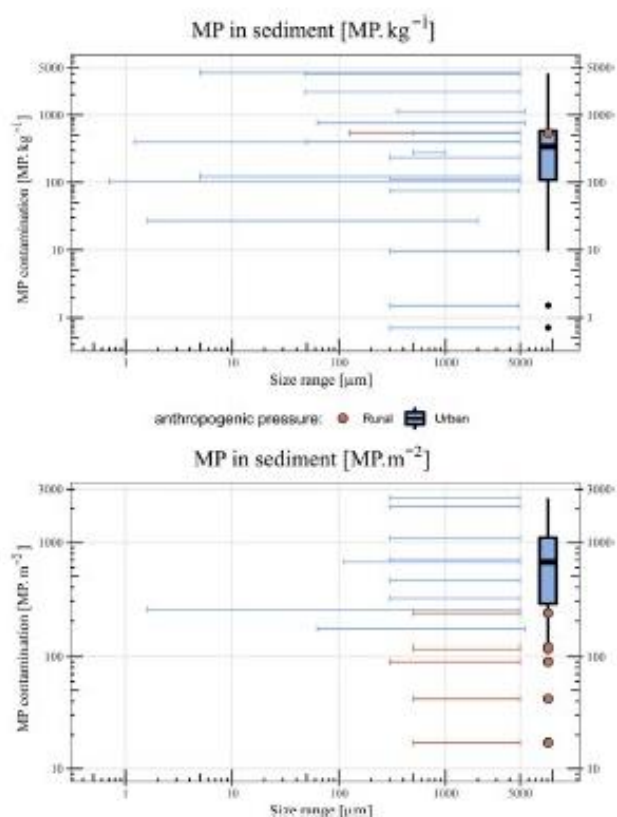


Fig. 2. Microplastic concentrations in overall sediments (lBoS, lBeS, lShS) of worldwide lakes ( $\text{MP}/\text{kg}$  or  $\text{MP}/\text{m}^2$ ) according to size range studied and anthropogenic pressure (rural, urban).

value of  $48,200 \text{ MP}/\text{km}^2$ . We noticed the lack of available data on MP pollution of rural lakes. Indeed, only four values were available for rural lakes approximately  $0.9 \text{ MP}/\text{m}^3$ ,  $0,294 \text{ MP}/\text{m}^3$ ,  $2,600 \text{ MP}/\text{m}^3$  and  $4,400 \text{ fibers}/\text{m}^3$  confirming the importance of investigating more rural and remote lakes. MPs in water showed larger size ranges for  $\text{MP}/\text{m}^3$  than  $\text{MP}/\text{km}^2$ , these differences in size ranges were linked to the sampling (e.g.: net, pump) and, laboratory techniques (e.g.: filtration mesh). In some cases, large size ranges seemed to be in correlation with higher MP pollution. However, differences in MP contaminations between lakes cannot be explained by methodologies variability only. Identifying the MP sources and the watershed characteristics could explain these differences as suggested in Section 2.3. Concerning sediments (Fig. 2), values were comprised between  $0.7 \text{ MP}/\text{kg}$  to  $7,707 \text{ MP}/\text{kg}$  with a median value around  $385 \text{ MP}/\text{kg}$  and, between  $0.8 \text{ MP}/\text{m}^2$  and  $2,500 \text{ MP}/\text{m}^2$  with a median value around  $290 \text{ MP}/\text{m}^2$ . Sediments in rural lakes could be less contaminated than urban ones. However, the variability of size ranges studied avoid an accurate comparison of the results. Most of MP contaminations in urban lakes were higher in surface waters and sediments than rural lakes. However, the lack of available data on MP pollution of rural lakes, the differences in methodologies and, the lack of watershed data prevented us suggesting conclusions.

#### 3.1. Rural lakes

We define a rural lake as a lake close to a hamlet(s), village(s) or, town(s) (total  $\leq 100,000$  inhabitants) ( $\leq 10 \text{ km}$ ). In the current



scientific literature, plastic contamination in different compartments has been studied for 20 rural lakes out of 98 lakes. For surface water, a mean concentration of 20,264 MP/km<sup>2</sup> with a size class of 333 µm - 4.75 mm was observed in Khövsgöl Lake (Mongolia) (Free et al., 2014). Another study on Khövsgöl Lake showed 0.3 MP/m<sup>3</sup> (Karnaukhov et al., 2020). Nine lakes in the Pampean Region (Argentina) contained 0.3 MP/m<sup>3</sup> to 1.9 MP/m<sup>3</sup> with a mean of 0.9 ± 0.6 MP/m<sup>3</sup> and a size class between of 38 µm to 1 mm (Alfonso et al., 2020b). Finally, Lake Sassolo (Switzerland) contained mean concentrations of 2.6 × 10<sup>3</sup> MP/m<sup>3</sup> and 4.4 × 10<sup>3</sup> fibres/m<sup>3</sup> (natural and synthetic fibres were excluded from MPs) (Negrete Velasco et al., 2020), 4.1 µg of MP fibres/m<sup>2</sup> was reported for Majcz Lake (Poland) (Kaliszewicz et al., 2020) and, no MP were observed in the surface water for Dimon Lake (Italy) (Table S2). The disparities in the MP concentration between these lakes could be linked to their characteristics (e.g. volume, surface and, depth). Khövsgöl Lake (0.3 MP/m<sup>3</sup>) is almost 8 times deeper and 55,200 times larger (on the surface) than Sassolo Lake (2.6 × 10<sup>3</sup> MP/m<sup>3</sup>). A voluminous lake exposed to the same MP flux as a smaller lake will have a lower concentration of MPs. The different sampling methodology (e.g. net, pump and, mesh size and, surface water or epilimnion) could also explain the disparities in the MP concentration between lakes. Bottom lake sediments were studied only in the shallow lake Knudsenheia (Svalbard, Norway) with 400 microparticles of anthropogenic litter per square meter including 93 MP < 5 mm and 19 MP > 5 mm in each of the six sediments sampled at the rock surface, thereby leading to an average estimation of 90 × 10<sup>6</sup> MP/kg<sup>2</sup> (González-Pleiter et al., 2020). In Lake Sassolo (Switzerland), 514 fibres/kg (dw) and 33 MP/kg (dw) were quantified in the bottom sediment. The MP concentration in the lakeshore sediments was also variable from 8 ± 14 × 10<sup>6</sup> to 563 ± 1,220 × 10<sup>6</sup> particles/km<sup>2</sup> for Siling Co, 42 ± 47 × 10<sup>6</sup> particles/km<sup>2</sup> for Geren Co, 117 ± 126 × 10<sup>6</sup> particles/km<sup>2</sup> for Wuru Co, and 17 ± 20 × 10<sup>6</sup> particles/km<sup>2</sup> for Mujiu Co (all Chinese lakes) (Zhang et al., 2016). In addition, in Ziway Lake (Ethiopia), the 0–2 cm sediment layer of this lake contained 33,282 particles/m<sup>3</sup> (from 5,333 particles/m<sup>3</sup> to 97,333 particles/m<sup>3</sup> in the 13 investigated shoreline sites). The MP contamination induced a concentration of a 4 MP/fish. Benthic and benthopelagic fish species were found to contain a significantly higher number of plastic particles than planktivorous fish species (Merga et al., 2020). The disparities could be linked to the fish diet and MP concentrations in the lake water and sediment. Depending on the study, different unit systems, sampling methods, and lake compartments were used, thereby leading to difficulties in comparing the results. However, all 20 lakes are contaminated with MPs, and there is a serious need to clearly identify the sources of this pollution in rural areas.

### 3.2. Urban lakes

An urban lake is defined as a lake close to at least one town (> 100,000 inhabitants) or one city (> 1 million inhabitants) (< 50 km). In the scientific literature, MP contamination has been studied in various compartments of 78 urban lakes out of 98 lakes. Similar to those of rural lakes, the surface waters of urban lakes are contaminated to various degrees from 10,900 MP/km<sup>2</sup> to 2,090,000 MP/km<sup>2</sup> or from 0.27 MP/m<sup>3</sup> to 34,000 MP/m<sup>3</sup> (Table S2). For instance, concentrations of 180,900 ± 229,533 MP/km<sup>2</sup> with a size class ranging from 112 µm to 5 mm were reported in Qinghai Lake (China), which was mainly due to plastic waste from tourism (Xiong et al., 2018). Contamination of 3.1 × 10<sup>3</sup> MP/m<sup>3</sup> and 11.3 × 10<sup>3</sup> MP/m<sup>3</sup> with a size class from 330 µm to 5 mm was reported for Ulansuhai Nur Lake (China) (Wang et al., 2019). In Lake Dziekanowskie and Kalwa Lake (Poland), 4.7 µg of MP fibres/m<sup>3</sup> and

4.4 µg of MP fibres/m<sup>3</sup> were reported, respectively (Kaliszewicz et al., 2020). MP pollution in the surface water of urban lakes showed the lowest concentrations in Zürich (Switzerland) with 10,900 MP/km<sup>2</sup> (Faure et al., 2015), Iseo (Italy) with 11,479 MP/km<sup>2</sup> (Binelli et al., 2020), Michigan (USA) with 15,698 MP/km<sup>2</sup> (Mason et al., 2016), and Kallavesi (Finland) with 0.27 ± 0.18 MP/m<sup>3</sup> (Uurasjärvi et al., 2020), Bolsena (Italy) with 2.51 MP/m<sup>3</sup>, Chiusi (Italy) with 3.02 MP/m<sup>3</sup> (Fischer et al., 2016) and, Simcoe (Canada) with 0.4–1.3 MP/m<sup>3</sup> (Felismino et al., 2020 In Press, Corrected Proof). Therefore, some rural lakes (such as Khövsgöl with 20,264 MP/km<sup>2</sup> or Sassolo with 2.6 × 10<sup>3</sup> MP/m<sup>3</sup>) seem more contaminated than some urban lakes. The urban Kallavesi Lake (Finland) contains 0.27 ± 0.18 MP/m<sup>3</sup> (Uurasjärvi et al., 2020), whereas nine rural lakes in Argentina contain 0.90 ± 0.60 MP/m<sup>3</sup> (Alfonso et al., 2020b). This could be explained by the lake characteristics (depth, surface area, etc.) that influence the MP concentration. The larger surface area of Kallavesi Lake (473 km<sup>2</sup>), compared with that of Argentinean lakes (mean of 88 km<sup>2</sup>) could be a plausible explanation for the MP concentration. The different sampling methodologies, with a mesh size of 333 µm in Finland and 38 µm in Argentina could also lead to inaccurate result comparisons. Logically, some urban lakes are more contaminated than rural lakes. For example, Qinghai Lake (China) showed 9 times more MPs in the surface water than Khövsgöl Lake (Mongolia) with 180,900 particles/km<sup>2</sup> and 20,264 particles/km<sup>2</sup>, respectively. However, these disparities could also be linked to the sampling methodology because 112 µm and 333 µm meshes were used for Qinghai Lake and Khövsgöl Lake, respectively. It is of fundamental interest to ease the parallel comparison of results by using a consistent methodology to sample the same size classes of MPs. In addition, quantification by particles/km<sup>2</sup> or particles/m<sup>3</sup> or use both is of importance. In lake bottom sediments, MP contamination also has different magnitudes from 0.7 MP/kg to 7,593 MP/kg and from 0.8 MP/m<sup>2</sup> to 339 MP/m<sup>2</sup>. The concentrations of lakeshore sediments vary less, from 104 MP/kg to 760 MP/kg. Dongting Lake (Yueyang, China) contained 389 ± 66 particles/m<sup>3</sup> to 501 ± 331 particles/m<sup>3</sup> in the lakeshore sediments (Jiang et al., 2018). The MP concentrations in sediments of Lake Yenagoa (Nigeria) ranged from 1,000 particles/m<sup>3</sup> to 8,330 particles/m<sup>3</sup> during the dry season and 201 particles/m<sup>3</sup> to 8,370 particles/m<sup>3</sup> during the raining season (Oni et al., 2020). Finally, the lakeshore sediments of lakes Albano, Bracciano, and Vico (Italy) contained 3.4 g/m<sup>2</sup> of MPs (Iannilli et al., 2020). The disparities in the MP concentration in sediments could be linked to the lake depth and polymer density, which modify the fate of these particles in the water column. For example, Qinghai Lake (China) contained 180,900 particles/km<sup>2</sup> in the surface water and 50 particles/km<sup>2</sup> to 1,290 × 10<sup>6</sup> particles/km<sup>2</sup> in lakeshore sediments, thereby underlying the role of the sediment (at least temporarily) as a sink. Future studies should measure the MP sedimentation flux in the water column to better understand the factors influencing MP accumulation in sediment. MP pollution of beach sediments was studied for some urban lakes (but not for rural lakes). Various methodologies have also been used with different unit systems (particles/m<sup>3</sup>, particles/m<sup>2</sup>, particles/g and, g/m<sup>2</sup>). Several authors have also worked on the MP contamination in fauna. Three fishes out of forty and eight birds out of nine contained plastic particles in their gut contents in several European and Swiss lakes (Faure et al., 2015; Faure and De Alencastro, 2016). Amphipods (*Cryptorchestia garbini*) contained a mean of 2.0 particles/individual and 4.8 particles/individual in the Italian Lake Albano and Lake Bracciano, respectively (Iannilli et al., 2020). Yuan et al. (2019) measured 0 particles/fish to 18 particles/fish in Poyang Lake (China). Twenty percent of the collected fish in Lake Victoria (Uganda) contained MPs (Biginagwa et al., 2016). In the Lake Mead



National Recreation Area (USA), the MP concentration in shellfish ranged from 2.7 particles/organism to 105 particles/organism, and the MP concentration in fish ranged from 0 particles/organism to 19 particles/organism (Baldwin et al., 2020). Xiong et al. (2018) detected  $5.4 \pm 3.6$  particles/fish in Qinghai Lake (China). Aquatic fauna is affected by MP pollution of lakes. However more studies are urgently needed in rural lakes to determine the order of magnitude related to the different sources. Further studies should focus on MP contamination in pelagic and benthic fauna to better understand the transfer pathways and potential impacts on the ecosystems. Finally, snow and ice samples near the shore of a lacustrine environment have been studied in Finland at Vesijärvi Lake (Scopetani et al., 2019). The MP concentrations were  $117 \pm 18 \times 10^3$  particles/m<sup>3</sup> melted snow and  $8 \pm 1 \times 10^3$  particles/m<sup>3</sup> melted ice. The high porosity of the snow matrix could play an important role in trapping airborne synthetic fibres (Scopetani et al., 2019). Microplastics contamination in lakes depends on many sources and the functioning of the hydrosystem. It is essential to conduct studies to inventory all the MP sources and methods of transfer in a specific lake ecosystem, including its watershed, to understand the mechanisms of MP contamination and to deduce actions to preserve and/or, restore the lacustrine environment. The impact and transfer of MPs in lake ecosystems are also dependent on the particle size and, polymer composition. Therefore, it is important to identify the main types of MPs in lakes.

### 3.3. Predominant types of particles in lakes

#### 3.3.1. Microplastic size classes

Most of the plastic particles were < 2 mm in all the studied lakes, except for lakes within the Siling Co basin (northern Tibet), where most particles were between 1 mm and 5 mm (Zhang et al., 2016). In most cases, the particles were < 1 mm in size (Alfonso et al., 2020a, 2020b; Boucher et al., 2019; Cable et al., 2017; Di and Wang, 2018; Egessa et al., 2020; Eriksen et al., 2013; Fischer et al., 2016; Free et al., 2014; González-Pleiter et al., 2020; Irfan et al., 2020; Mason et al., 2016, 2020; Su et al., 2016; Uurasjärvi et al., 2020), and even < 500 µm (Boucher et al., 2019; Fischer et al., 2016; González-Pleiter et al., 2020; Jiang et al., 2018; Uurasjärvi et al., 2020; Xiong et al., 2018; Yin et al., 2020; Yuan et al., 2019) (Table 1). In the Great Lakes (Canada, and USA), the number of small plastic particles (106 µm–1.00 mm) was 130 times higher than that of large particles (1.00–4.75 mm) (Cable et al., 2017). In Kallavesi Lake (Finland), the particles were 20 µm–300 µm in size (Uurasjärvi et al., 2020). Plastic particles on the rock surfaces from the bottom (0.75 m) of a shallow lake in Svalbard (Norway) were divided as follows: 25% < 350 µm,

50% < 670 µm, and 75% < 1400 µm (González-Pleiter et al., 2020). Many parameters could affect the size distribution of MPs in lakes. In Poyang Lake (China), plastic particles in fish are larger (82.1% > 500 µm) than those in surface water and sediments (73.1% and 57.1% < 500 µm, respectively), thereby suggesting a selective effect during the intake (Yuan et al., 2019). Shoreline sediments in Lake Victoria (Uganda) contained more MPs of all sizes than in the lake sediments (at a distance of 250 m and 500 m from the shoreline). This could be due to the proximity of the shoreline sediments to land-based sources (Egessa et al., 2020). In Lake Yenagoa (Nigeria), 74.9% of the particles in water and sediment are 1.00–3.00 mm in the dry season and 89.1% of the particles are 0.51–1.00 mm in the rainy season (smaller MPs may originate from deep fragmentation of large plastic debris) (Oni et al., 2020). Various sizes of MP particles could also be caused by the significant variation in the sampling methodology. For instance, surface waters are sampled with nets of different mesh sizes, namely 38, 47, 112, 300, 330, 333, and 355 µm or pumped through different filters: 20, 48, 50, 100, 300 µm. Further studies must be conducted using a unique sampling methodology, unit system (particles/km<sup>2</sup> or particles/m<sup>3</sup>), and quantification of the different size classes (percentage of the total). Recommendations for scientific community are provided in Section 1.

#### 3.3.2. Polymer types

The most common types of polymers in lakes (surface water and sediment) were PE and PP (Fig. 3). These results can be linked to the 2018 global demand for polymer, with 17.5% LDPE, 12.2% HDPE and, 19.3% PP (PlasticsEurope, 2019). The other polymeric materials produced industrially at the international scale are polyvinyl chloride (PVC) (10%), polyurethane (PUR) (7.9%), polyethylene terephthalate (PET) (7.7%), polystyrene (PS) and expanded polystyrene (EPS) (6.4%) and others (19%). The variation of MP composition (polymer types) between lacustrine compartments (surface water, sediment, snow/ice) could be due to differences in the polymer densities, MP forms, potential MP sources, watershed characteristics. Overall, PE and, PP were predominant, other polymers (e.g.: PVC, PA, PET, etc.) were found in several lakes but to a lesser extent. The MP composition in the surface water was similar in most lakes however in some areas, more specific signatures were reported. Those particular signature were observed for one specific scientific paper or one specific country suggesting a site-specific contamination. Despite the studies number, few data were available in all lakes, even less for snow and ice. In this last compartments, the main polymer types were CE and, PA that were mostly found in the form of fibres which was consistent with an atmospheric origin. As for the particle size, the chemical compositions of

**Table 1**

Distribution of the plastic particle sizes in worldwide lakes with their concentration on the surface water according to sampling methodology used. (N) means researches used net and (P) means researches used pump.

Country	Mesh (µm)	Size (µm)	Concentration on surface water	References
Argentina	38 (N)	70.7% < 1000	$9.0 \times 10^{-1} \pm 6.0 \times 10^{-1}$ mp/m <sup>3</sup>	Alfonso et al. (2020)
	47 (N)	62.8% < 1000	$1.4 \times 10^2 \pm 4.0 \times 10^1$ mp/m <sup>3</sup>	Alfonso et al. (2020)
China	48 (P)	79.8% < 1000	$4.7 \times 10^3 \pm 2.8 \times 10^3$ mp/m <sup>3</sup>	Di et Wang (2018)
	50 (P)	80% < 2000	$1.7 \times 10^3 \pm 6.4 \times 10^2$ mp/m <sup>3</sup>	Wang et al. (2017)
	50 (P)	65% < 2000	$1.2 \times 10^2 \pm 2.3 \times 10^3$ mp/m <sup>3</sup>	Wang et al. (2018)
Italy	112 (N)	73.1% < 500	$5.0-3.4 \times 10^3$ mp/m <sup>3</sup>	Yuan et al. (2019)
	300 (N)	< 500	2.5 and 3.0 mp/m <sup>3</sup> (two lakes)	Fischer et al. (2016)
China	330 (N)	98.2% < 2000	$3.1-1.1 \times 10^3$ mp/m <sup>3</sup>	Mao et al. (2020)
Finland	333 (N) and 20; 100; 300 (P)	20–300	$0.27 \pm 0.18$ and $1.6 \times 10^2 \pm 73$ ; $12 \pm 17$ ; $1.8 \pm 2.3$ mp/m <sup>3</sup> respectively	Uurasjärvi et al. (2020)
Canada, USA	355 (N)	81% < 999	$4.3 \times 10^4 \pm 1.2 \times 10^5$ mp/km <sup>2</sup>	Eriksen et al. (2013)
	355 (N)	59% < 999	$1.7 \times 10^4$ mp/km <sup>2</sup>	Mason et al. (2016)
Mongolia	355 (N)	73% < 999	$2.3 \times 10^5$ and $4.5 \times 10^4$ mp/km <sup>2</sup> (two lakes)	Mason et al. (2020)
	355 (N)	41% < 999	$1.3 \times 10^4$ mp/km <sup>2</sup>	Free et al. (2014)



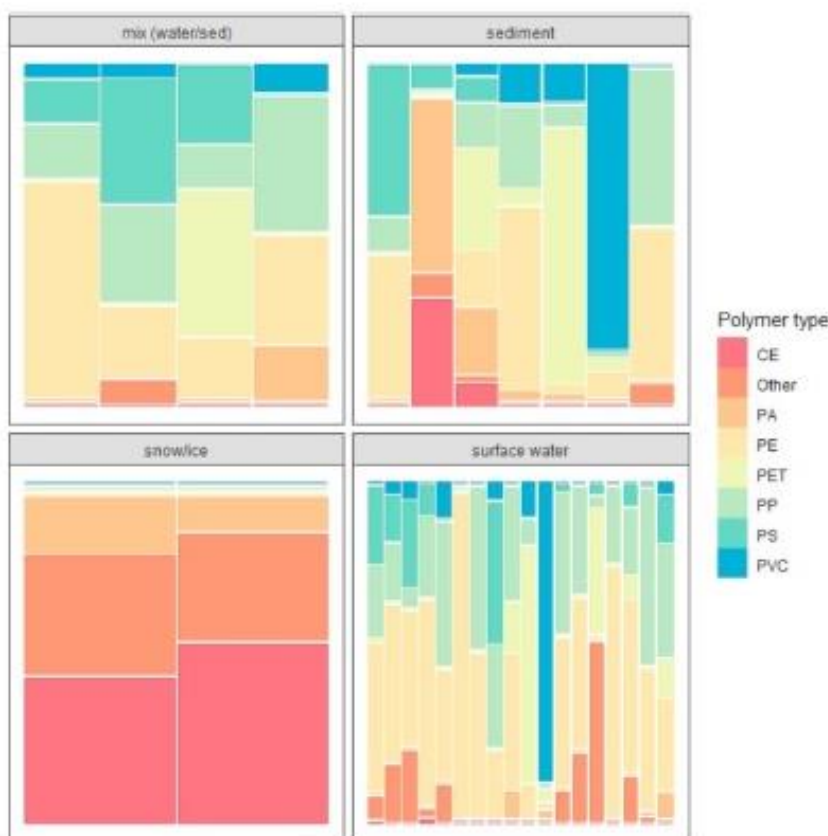


Fig. 3. Distribution of the polymer types in all the compartments of the lacustrine environments across the globe.

the MPs varied greatly among the lakes. In Lake Yenagoa (Nigeria), the polymer types of the sampled MPs were related to the season. In surface water and sediment, 72.63% PET and 10.90% PVC were observed during the dry season compared with 81.50% PVC and 4.20% LDPE during the rainy season. The high presence of PVC during the rainy season was thought to originate from the erosion of water pipes of neighbouring communities. The significant presence of PET during the dry season could be attributed to the importation of raw material from other regions by three plastic companies producing PET bottles for soft drinks and water, which was located a few kilometres from the lake shore (Oni et al., 2020). The release of plastic in Lake Geneva (Switzerland) was estimated to have four main contributors, namely tire abrasion, the construction sector, the textile industry and, the packaging industry (Boucher et al., 2019). Tire wear particles (TWPs) are a recent research topic that requires further investigation to determine its importance in the MP contamination of lakes. All MPs are first composed of polymers, but they also contain two components, namely chemical additives (plasticiser, UV blocker, antioxidative compound, flame retardant, etc.) and, chemicals (polycyclic aromatic compounds, trace metallic elements, etc.) absorbed from the surrounding environment. The leaching of these additives and pollutants from the plastic surface to the surrounding waters can affect the ecosystem (Wong et al., 2020). In addition to their chemical composition, the shape of MPs can also greatly determine their fate and impacts.

### 3.3.3. Particle shapes

The most commonly identified polymer forms in lakes (surface water and sediment) were fibres, and, fragments (Fig. 4). The MP fibres contamination in lakes could be linked to urban sources (wastewaters, washing machines). Indeed, urban network was supposed to be a major MP source in lakes. Investigating MP fibres proportions in relation to watershed inhabitants could be of high interest, confirming the necessity of watershed characteristics reporting in future studies (Section 1). Pellets and films were also frequently found compared to foams. Given the results, no link could be established between the polymer forms and lacustrine compartments (surface water and sediment). Concerning fishes, only two polymer forms were observed namely, fibres and fragments. However, very few studies investigated MP pollution in lake fishes. Moreover, the probability of finding fibre and/or fragment in fish was highest than other polymer forms given the distribution of the particle forms in lake sediments and surface waters. Even if the results in this figure were not conclusive, it allowed to present an overview of polymer forms in all the investigated compartments of the lacustrine environments across the globe. This lack of data highlighted the importance of increase studies on freshwater fishes. In Switzerland and Italy, the most represented forms are fragments and films. However worldwide, fragments and fibres are strongly represented. In nine lakes in the Pampean Region (Argentina), MP fibres ranged from 66.70% to 96.40% (Alfonso et al., 2020b). Determining the particle shapes is essential to understanding the fate of MPs in lake ecosystems (e.g. fibres and foams

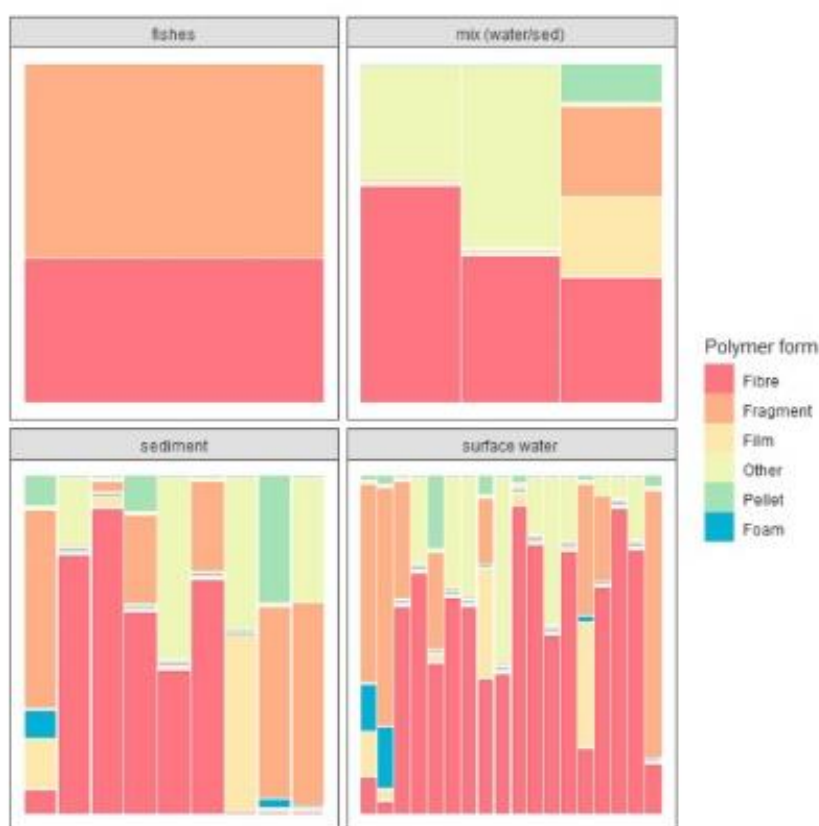


Fig. 4. Distribution of the particle forms in all the compartments of the lacustrine environments across the globe.

will probably float) and, the impacts on biota (e.g. coarse fragments may injure the digestive system in fish while nanoparticles may translocate into organs).

#### 4. Sources of microplastics in lakes

##### 4.1. Introduction

The sources of MPs in lakes are numerous, and MPs can be transferred from various origins. Plastic pollution has three origins, namely macroplastic fragmentation in the environment, wear and tear of products that contain plastic polymers (e.g. fragmentation of textile fibres during washing, paints, and tires), and intentional origin (e.g. exfoliants, industrial abrasions, and drug vectorisation) (INERS, 2018). The principal top-down MP sources are tires, paint markings, plastic resins, and clothing made of synthetic fibres (Hann et al., 2018). Moreover, MP pollution is intensified by climatic conditions. According to previous research, there are several climate change impacts concerning MPs in aquatic ecosystems (Welden and Lusher, 2017; Zhang et al., 2020b). MP emissions to the environment and, transport increase through precipitation, flooding, glacier melting, and runoff; plastic in the atmosphere intensifies with the increase in strong wind events; MP suspension from sediments increases through wind and water currents as well as temperature changes in water; and plastic retention increases through higher evaporation in lakes (Boucher et al., 2019b). assumed "the potential role of big lakes as a barrier preventing more plastic from reaching the oceans". The previous works point

out the lack of integrated studies considering the whole ecosystem, which is crucial for future investigations of MP pollution in lakes integrated at the catchment scale. This should help to understand the involvement of each potential MP contamination source in lakes, namely soil leaching and road runoff, wastewater treatment plant (WWTP) discharge, atmospheric fallout, and in-situ macroplastic fragmentation. Indeed, these sources are influenced by the population density (e.g. increase in single-use plastics), road density, impermeable watershed area, industrial activity of plastic production/transformation, climatic conditions and, lake characteristics. Public authorities require these elements to act on major sources and implement new policies to reduce the plastic contamination in lakes.

##### 4.2. Macroplastic fragmentation

Fragmentation of macroplastic waste could be one of the main sources of MPs in lakes. Most of the knowledge on plastic fragmentation is based on in vitro experiments with ultraviolet (UV), thermal, or bio-degradation. Limited knowledge was acquired under real environmental conditions in which degradation mechanisms occur simultaneously or successively. Environmental conditions (UV irradiation intensity, pH, and temperature), chemical and, physical properties of plastic polymers (density, crystallinity, and the presence of additives) play crucial roles in plastic fragmentation. Plastic polymers from oligotrophic lakes can break up more easily with high UV penetration and weak biofouling, which reinforce the polymer durability (Andrady, 2003,



2011; Free et al., 2014). In lakes at high altitudes, low temperatures and snow cover can better maintain the plastic particle integrity (Andrady, 2003; Free et al., 2014). However, macroplastic degradation is weaker in freshwater than in marine ecosystems owing to weaker current and limited wave action (Vaughan et al., 2017). However, littoral waves, especially in vast lakes, can cause higher fragmentation rates (Imhof et al., 2013). Low turbulence and wave action in some freshwater ecosystems lead to longer pollution persistence. The estimations of plastic longevity range from hundreds to thousands of years (Barnes et al., 2009). In 2016, plastic particles were found in each sediment sample from Lake Geneva (Switzerland), which mainly originated from macroplastic fragmentation (Faure and De Alencastro, 2016). Plastic pollution in Lake Michigan (USA) also revealed a high concentration of secondary MPs (from the breakdown of larger plastics), especially fragments (Mason et al., 2016). Near Dongting Lake (Yueyang, China) and Lake Victoria (Uganda), synthetic fishing nets have a strong impact on plastic contamination and constitute a major source of secondary MPs (Egessa et al., 2020; Yin et al., 2020). The predominance of coloured MP particles could reflect macroplastic fragmentation (Migwi et al., 2020). Finally, a large amount of cellulose acetate, which is one of the main cigarette filter components, was reported in Lake Ontario (Canada/USA) (Grbić et al., 2020). The prevalence of small plastic particles from fragmentation was also reported in Khövsgöl Lake (Mongolia) (Free et al., 2014) and Taigu and Poyang lakes (China) (Su et al., 2016; Yuan et al., 2019). Plastic degradation processes, namely cracking, splitting and, biofilm formation, seem globally similar in freshwater and marine ecosystems (Imhof et al., 2013; Li et al., 2020; Zbyszewski and Corcoran, 2011). However, little is known about the kinetics of fragmentation in lakes. After 25 weeks of accelerated weathering in water under xenon lamp irradiation, low-density polyethylene (LDPE) films split into smaller fragments (62% on average) corresponding to the definition of MPs (<5 mm), thereby suggesting that long residence times in water lead to MP fragmentation and contamination of the aquatic environment (Julienne et al., 2019). Mechanical properties at the polymer surface play a major role in the fragmentation pathway whereas the fabrication process may influence the propagation direction of the cracks. The size distribution of plastic fragments may be linked not only to the nature of the polymer, but also to its manufacturing process (Julienne et al., 2019). The number of polymer particles fragmented by UV exposure and mechanical abrasion increased with decreasing size in all polymer types. According to Song et al. (2017), mechanical abrasion by sand minimally fragmented polyethylene (PE) and polypropylene (PP) without UV photo-oxidation. Moreover, the rate of fragmentation increased with UV exposure depending on the polymer type. Twelve months of UV exposure and two months of mechanical abrasion of PP and PE produced  $6,084 \pm 1061$  particles/pellet and  $20.0 \pm 8.3$  particles/pellet (mean  $\pm$  SD), respectively. To roughly quantify the fragmentation flux in the lake, we considered a mean fragmentation rate of 3,052 MP/pellet (independent of the polymeric composition) and the average weight of one pellet (Song et al., 2017) to 20 mg. As the concentration of macroplastics in the surface water of Lake Geneva was measured as 44,000 mg/km<sup>2</sup> (Grand Lac) and 27,000 mg/km<sup>2</sup> (Petit Lac) (Faure et al., 2015) we estimated a fragmentation flux from the surface as high as  $1.1 \times 10^8$  MP/y (SI Calculations). We also estimated the macroplastics concentration of surface waters in worldwide lakes with available data in literature by calculating the mean MP concentration (mp/km<sup>2</sup>) in surface waters of lakes, namely 2,808.98 macroplastics/km<sup>2</sup> (based on Cable et al., 2017; Faure et al., 2015; Faure et al., 2012; Mason et al., 2016). We linked this macroplastics concentration estimate to MP concentration in the corresponding

lakes surface waters (based on Cable et al., 2017; Faure et al., 2015; Faure et al., 2012; Mason et al., 2016), namely 133,741 mp/km<sup>2</sup>. Additional studies are however required to clearly comprehend the mechanisms, quantify the kinetics of fragmentation within the environment, and determine the precise origins of macroplastics waste from industrial, agricultural and, domestic use, among others.

#### 4.3. Wastewater

WWTPs might be an important source of MPs in lacustrine environments depending on the WWTP setup, population density, or discharge of wastewater into lakes (Bretas Alvim et al., 2020). Wastewater contains both types of MPs, namely primary (tiny particles designed for commercial use, e.g. personal care products) and secondary (from the breakdown of larger plastics, e.g. textile fibres in domestic wastewater or tire particles in stormwater). For instance, the influent of a Hong Kong WWTP contained  $7.1 \pm 6.0$  particles/L to  $12.8 \pm 5.8$  particles/L with intra-day variations of  $6.6 \times 10^8$  particles/d and  $1.2 \times 10^9$  particles/d (Cao et al., 2020). Several experiments confirmed that textile fibres are an important component of MPs in wastewater. One item of clothing produces more than 1,900 fibres per wash (Browne et al., 2011); one fleece produces approximately 110,000 fibres (Carney Almoth et al., 2018), and 5 kg of polyester (PES) cloth can release approximately 6,000,000 microfibrils (De Falco et al., 2019). Fibres represent 70% of MPs in tributaries from WWTPs (Talvitie et al., 2016). The efficiency of MP removal in WWTPs varies between 88.0 and 99.9% (Uddin et al., 2020). The average concentration of MPs and other anthropogenic particles (with a Fourier-Transform Infrared spectroscopy or Raman spectroscopy signal of an anthropogenic dye) found in wastewater effluent was  $13.3 \pm 15.5$  particles/L near Lake Ontario (USA and Canada). Fibres were also the dominant category in WWTP effluent with 90% relative abundance (Grbić et al., 2020). The disposal of treated effluents can add approximately  $1.5 \times 10^{15}$  MP/y to the aquatic environment, whereas the discharge of untreated effluent is likely to add  $3.9 \times 10^{16}$  MP/y at the global scale (Uddin et al., 2020).

#### 4.4. Stormwater, agricultural runoff, and tributaries

Surface runoff and lake tributaries could also be significant sources of MPs according to the lake catchment basin characteristics and climatic conditions. Rivers represent an important source of MPs because they can collect WWTP effluents, untreated stormwater, road runoff, and agricultural runoff. As an example, the MP abundance increased in the Cooks River estuary (Sydney, Australia) from 400 particles/m<sup>3</sup> to 17,383 particles/m<sup>3</sup> before 2 days of heavy rain events (Hitchcock, 2020). Rain and storm events may be key moments of MP contamination in lake ecosystems. In Lake Ontario (USA and Canada), MPs in sediment samples were mostly carried by nearby tributaries (Ballent et al., 2016). The average concentrations of anthropogenic particles were  $15.4 \pm 7.9$  particles/L in stormwater runoff (sampling in urban rivers during wet weather) and  $0.9 \pm 1.3$  particles/L in agricultural runoff near Lake Ontario (USA and Canada) (Grbić et al., 2020). The most abundant particles in stormwater samples were microfibrils (41%) and tire and road wear particles (TRWPs) (22%) (Grbić et al., 2020). Sewer overflow systems and urban runoff are also major sources of MPs in different subalpine lakes (Faure and De Alencastro, 2016). For example, the plastic inflow in Lake Geneva (Switzerland) was estimated to be between 34 t/y and 83 t/y (average 59 t/y) with strong inputs from road and urban runoff after precipitation (Boucher et al., 2019). The mass of TWPs ultimately entering the



aquatic environment strongly depends on the extent of collection and treatment of road runoff, which is highly variable (Wagner et al., 2018). Up to 11,000 t/y of TWPs from German highways can enter surface waters (Wagner et al., 2018). Agricultural runoff can also contaminate tributaries and the lacustrine environment because of plastic mulching, WWTP sludge spreading or even irrigation with recycled wastewater (an approach used in a few countries). Plastic mulching is an agricultural technique used to reduce evaporation, suppress weeds, conserve moisture and increase soil temperature. In China, MP concentrations in agricultural soil increased over time with 5, 15, and 24 y of continuous mulching with  $80.3 \pm 49.3$ ,  $308.0 \pm 138.1$ , and  $1,075.6 \pm 346.8$  particles/kg soil, respectively (Huang et al., 2020). The spreading of liquid or dewatered WWTP sludge may also be a source of MP to lakes through agricultural soil leaching. There is still uncertainty about how the plastic debris interacts with the microorganisms constituting the sludge during biological wastewater treatment processes. However, the MP concentrations varied between 8.2 particles/g (dw) and 301.4 particles/g (dw) in sludge samples collected from a municipal WWTP based on the conventional activated sludge process in Finland (Lares et al., 2018). In addition, play areas and sports fields can also generate large quantities of MPs in stormwater systems; they are considered the fifth major source of MPs in Germany (Bertling et al., 2018).

#### 4.5. Atmospheric fallout

Atmospheric fallout enriched in MPs has been observed in urban, industrial, and remote areas (Zhang et al., 2016, 2019; Zhang et al., 2020a). Atmospheric transport constitutes a large flux of plastic particles in the environment, but it has been poorly studied (Horton and Dixon, 2018). In the Paris Metropolitan Area,  $3.5 \times 10^{10}$  and  $7.6 \times 10^{10}$  synthetic fibres could originate from the atmosphere per year, thereby leading to an atmospheric flux of  $18 \times 10^6$  synthetic fibres/(km<sup>2</sup>·d) to  $37 \times 10^6$  synthetic fibres/(km<sup>2</sup>·d) (Dris, 2016). Intense precipitation (rain, storm and snow) probably increases MP atmospheric fallout via washout of MPs (Allen et al., 2019; Dris et al., 2016a, 2016b). In the absence of wastewater discharge to the Hampstead No. 1 Lake near London, atmospheric fallout was considered the main source of MPs as fibres were mostly observed in sediment samples (Tumer et al., 2019). Synthetic textiles and TRWPs are considered the major sources of MPs in the atmosphere with a majority of fibres and fragments (Yulan Zhang et al., 2020). To the best of our knowledge, the mean fluxes of MPs in atmospheric fallout vary from  $36 \times 10^6$  particles/(km<sup>2</sup>·d) to  $770 \times 10^6$  particles/(km<sup>2</sup>·d) (Allen et al., 2019; Cai et al., 2017; Dris et al., 2015, 2016a; Klein and Fischer, 2019; Wright et al., 2020; Zhou et al., 2020) (Fig. 5). Therefore, the mean flux of MPs in atmospheric fallout can be estimated as  $287 \times 10^6$  particles/(km<sup>2</sup>·d). Even if data from atmospheric fallout are more detailed than data from other MP sources to lakes worldwide, further studies should imperatively determine both the atmospheric MP flux and MP concentration in surface water for one specific lake area to understand the real impact of atmospheric fallout. Future work is urgently needed to clearly quantify the MP flux to lake water at the catchment basin scale, namely in-situ macroplastics fragmentation, wastewater or stormwater discharge, agricultural soil runoff, and atmospheric fallout.

#### 4.6. Estimates of source contributions to lake contamination by microplastics

Depending on the catchment features, the relative contribution of each source of MPs to a lake may considerably differ both in nature and intensity. As a recent example, Lake Ontario (USA and



Fig. 5. Atmospheric fallout (wet and dry) of microplastics between different geographical localization (particle/km<sup>2</sup>/day × 10<sup>6</sup>). For each localization, mean concentration is written and also the size class studied (µm). Numbers are rounded to the nearest unit.

Canada) is exposed to various sources of MPs. Some of them have been quantified with MP (> 125 µm) concentrations (Grbić et al., 2020), namely WWTP discharge, impermeable urban surface runoff, and agricultural runoff. The concentrations are highly variable with  $15,400 \pm 7,900$  particles/m<sup>3</sup> in stormwater runoff (relative abundances of fibres of 41%, and TRWPs of 22%),  $13,300 \pm 15,500$  particles/m<sup>3</sup> in wastewater effluent (90% fibres), and  $900 \pm 1,300$  particles/m<sup>3</sup> in agricultural runoff (no dominant category). Unfortunately, the intensity of these sources (as a flux of MPs to the lake) cannot be estimated as the flow rates have not been measured. Boucher et al. (2019) estimated, for the first time to our best knowledge, the contributions of the different MP sources to a lake contamination. The approach based on field measurement showed the following MP (> 300 µm to 5 mm) contributions: 41.3 t/y river discharge (wet period), 8.9 t/y urban runoff, 5.6 t/y river discharge (dry period), 2.6 t/y storm overflow, 0.05 t/y waste water effluent and, 0.03 t/y atmospheric fallout. In Western Europe waste management systems are efficient (in Germany MP retention of 97% (Mintemig et al., 2017)), these estimated fluxes could be higher in countries with less efficient waste management systems. However, the watershed characteristics are essential to understand the MP contamination in a specific lake. In our review, we estimated the MP contribution of macroplastics fragmentation to reach  $1.1 \times 10^8$  MP/y corresponding to approximately 0.03 t/y which is similar the atmospheric fallouts estimated by Boucher et al. (2019b) (0.03 t/y > 300 µm). Our own estimations on fallout flux was 0.2 t/y (MPs > 300 µm) (SI Calculations) which was of the same order of magnitude. However, these calculations were strongly dependent on size particle, volume particle and, density. Therefore, reporting MP size distributions, watershed characteristics, polymer types and forms are essential in future studies and to improve estimations (Section 1). Macroplastics fragmentation and atmospheric fallouts could be weak MP sources in lakes. The main limitation on atmospheric deposition fluxes is the lack of data on rural areas. Consequently, the main sources of MP to lacustrine environment would be the leaching of MP from rural areas or other sources such as road runoff which are not treated by WWTP. Given these results it would be important for future studies to study the MP flux from urban and impermeabilized watershed which are a significant source of MPs in the environment and, on atmospheric fallout which could be the main source of MP in more remote lakes. We also suggest to investigate tributaries, from now on it is absolutely necessary to work on potential MP sources linked to the investigated lake as Hu et al. (2020) wrote "rivers became an important source of MPs in lakes and studying surrounding rivers while working on a lake is essential". The scientific community is aware of MP in freshwaters,



now it is time to understand where they come from and the MP quantities of each potential sources. Future studies should focus on the different point sources and diffuse sources in contrasting watersheds (urbanised or rural) to precisely quantify the intensity and composition of each source. This will help public authorities, local policies, or companies to guide best management practices and future mitigation strategies for the reduction in MP pollution, which is highly variable from one lake to another.

## 5. Conclusion

MP pollution was reviewed in 98 lakes worldwide with a distinction between rural (20) and urban (78) lakes, according to the supposed main influence of the nearby population density. Remote lakes should be also studied to clearly quantify the fluxes of various MP sources. In this review, we noticed MP pollution in each of the 98 investigated lakes. Some lakes showed MP contamination in the surface water, sediments (lake, shoreline, and beach), tributaries, aquatic fauna, ice and/or snow. The common MP size class studied was 300  $\mu\text{m}$  to 1 mm. The MP concentrations were sometimes higher in rural lakes than in urban lakes. We insist on the importance of identifying MPs sources (macroplastics fragmentation, wastewater or stormwater discharge, agricultural and road runoff, tributaries, and atmospheric fallout) and quantifying their respective flux to the lake to inform public authorities in order to take accurate actions for plastic pollution reduction. For example, input plastic flows in Lake Geneva from land were estimated to be 55 t/y; the plastic stocks were 0.10 t on the surface, 10 t on the banks, and 580 t in the sediments, and the plastic out flows were 5 t/y in the outflow of the Rhone river, 10 t/y in coastal clean-ups, and 40 t/y in sediments (Boucher et al., 2019). This study will allow public authorities to act on precise areas and set effective systems, such as stormwater retention tanks to avoid WWTP bypass in tributaries, tertiary treatment in WWTPs to selectively remove plastic fibres, stormwater retention ponds to intercept tire particles from road runoff, mainstream awareness campaigns, intensification of the number of recycling and garbage bins (in urban but also rural areas), campaigns to raise public awareness concerning remote pollution, bans on single-use plastic, use of reusable packing and dishes in every sector, construction of new recycling centres and penalties for non-reusable packaging.

## Author statement

Julia Dusaucy: Conceptualization, Formal analysis, Investigation, Writing Original Draft, Writing Review & Editing, Visualization. David Gateuille: Validation, Writing Review & Editing. Emmanuel Naffrechoux: Validation, Writing Review & Editing. Yves Perrette: Validation, Writing Review & Editing.

## Dclaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

## Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2021.117075>.

## References

Barnes, D.K.A., Galgani, F., Thompson, R.C., Barlaz, M., 2009. Accumulation and fragmentation of plastic debris in global environments. *Phil. Trans. R Soc B*

- 364, 1985–1998. <https://doi.org/10.1098/rstb.2008.0205>.
- Alfonso, M.B., Arias, A.H., Piccolo, M.C., 2020. Microplastics integrating the zooplanktonic fraction in a saline lake of Argentina: influence of water management. *Environ. Monit. Assess.* 192, 117. <https://doi.org/10.1007/s10661-020-8080-1>.
- Alfonso, M.B., Scordo, F., Seitz, C., Manstretta, G.M.M., Ronda, A.C., Arias, A.H., Tomba, J.P., Silva, L.L., Perillo, G.M.E., Piccolo, M.C., 2020. First evidence of microplastics in nine lakes across Patagonia (South America). *Sci. Total Environ.* 733, 139385. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139385>.
- Allen, S., Allen, D., Phoenix, V.R., Le Roux, G., Durántez Jiménez, P., Simonneau, A., Binet, S., Galop, D., 2019. Atmospheric transport and deposition of microplastics in a remote mountain catchment. *Nat. Geosci.* 12, 339–344. <https://doi.org/10.1038/s41561-019-0335-5>.
- A.L. Andraday Plastics and the Environment John Wiley & Sons publishing, pp. 1–742.
- Andraday, A.L., 2011. Microplastics in the marine environment. *Mar. Pollut. Bull.* 62, 1596–1605. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2011.05.030>.
- Arias-Andres, M., Klümper, U., Rojas-Jimenez, K., Grossart, H.-P., 2018. Microplastic pollution increases gene exchange in aquatic ecosystems. *Environ. Pollut.* 237, 253–261. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2018.02.058>.
- C. Arthur, J. Baker, H. Bamford Proceedings of the international research workshop on the occurrence, effects, and fate of microplastic marine debris NOAA, Technical Memorandum.
- Baldwin, A.K., Spanjer, A.R., Rosen, M.R., Thom, T., 2020. Microplastics in lake Mead National recreation area, USA: occurrence and biological uptake. *PLoS One* 15, e0228896. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0228896>.
- Balient, A., Corcoran, P.L., Madden, O., Helm, P.A., 2016. E.J. Longstaffe Sources and sinks of microplastics in Canadian Lake Ontario nearshore tributary and beach sediments. *Mar. Pollut. Bull.* 110, 383–395. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.06.032>.
- Bellasi, A., Binda, G., Pozzi, A., Galafassi, S., Volta, P., Bettinetti, R., 2020. Microplastic contamination in freshwater environments: a review, focusing on interactions with sediments and benthic organisms. *Environments* 7, 30. <https://doi.org/10.3390/environments704030>.
- J. Berding, R. Berding, L. Hamman Kunststoffe in der Umwelt: Mikro- und Makroplastik Ursachen, Mengen, Umweltschicksale, Wirkungen, Lösungsansätze, Empfehlungen. Fraunhofer-Institut für Umwelt-, Sicherheits- und Energietechnik UMSICHT. 10.24406/umsicht-n-497117.
- Bertoldi, C., Lara, L.Z., Mizushima, F.A. de L., Martins, E.C.G., Battisti, M.A., Hinrichs, R., Fernandes, A.N., 2020. First evidence of microplastic contamination in the freshwater of lake Guaíba, Porto Alegre, Brazil. *Sci. Total Environ.* 759, 143503.
- Bharath, K.M., Srinivasulu, S., Natesan, U., Ayyamperumal, R., Kalam, S.N., Anbalagan, S., Sujatha, K., Alagarasan, C., 2021. Microplastics as an emerging threat to the freshwater ecosystems of Veeranam lake in south India: a multidimensional approach. *Chemosphere* 264, 128502. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.128502>.
- Biginagwa, F.J., Mayoma, B.S., Shashoua, Y., Syberg, K., 2016. ER. First evidence of microplastics in the African great lakes: recovery from lake Victoria Nile perch and Nile tilapia. *J. Great Lake Res.* 42, 146–149. <https://doi.org/10.1016/j.jglr.2015.10.012>.
- Binelli, A., Pietrelli, L., Di Vito, S., Coscia, L., Sighicelli, M., Torre, C.D., Parenti, C.C., Magni, S., Hazard, S., 2020. Evaluation of plastic mixtures from four Italian subalpine great lakes on the basis of laboratory exposures of zebra mussels. *Sci. Total Environ.* 699, 134366. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.134366>.
- Bordós, G., Urbányi, B., Micsinai, A., Kriszt, B., Palotai, Z., Szabó, I., Hantos, Z., Szoboszlai, S., 2019. Identification of microplastics in fish ponds and natural freshwater environments of the Carpathian basin, Europe. *Chemosphere* 216, 110–116. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.10.110>.
- Boucher, J., Baure, F., Pompini, O., Plummet, Z., Wieser, O., Felipe de Alencastro, L., 2019. Microplastic fluxes and stocks in Lake Geneva basin. *Trends Anal. Chem.* 112, 66–74. <https://doi.org/10.1016/j.trac.2018.11.037>.
- Bretas Alvim, C., Mendoza-Roca, J.A., Bes-Pia, A., 2020. Wastewater treatment plant as microplastics release source – quantification and identification techniques. *J. Environ. Manag.* 255, 109739. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.109739>.
- Brown, M.A., Crump, P., Niven, S.J., Teuten, E., Tonkin, A., Galloway, T., Thompson, R., 2011. Accumulation of microplastic on shorelines worldwide: sources and sinks. *Environ. Sci. Technol.* 45, 9175–9179. <https://doi.org/10.1021/es201811s>.
- Cable, R.N., Beletsky, D., Beletsky, R., Wigginton, K., Locke, B.W., Duhaime, M.B., 2017. Distribution and modeled transport of plastic pollution in the Great Lakes, the world's largest freshwater resource. *Front. Environ. Sci.* 5, 45. <https://doi.org/10.3389/fenvs.2017.00045>.
- Cai, L., Wang, J., Peng, J., Tan, Z., Zhan, Z., Tan, X., Chen, Q., 2017. Characteristic of microplastics in the atmospheric fallout from Dongguan city, China: preliminary research and first evidence. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 24, 24928–24935. <https://doi.org/10.1007/s11356-017-0116-x>.
- Cao, Y., Wang, Q., Ruan, Y., Wu, R., Chen, L., Zhang, K., Lam, P.K.S., 2020. Intra-day microplastic variations in wastewater: a case study of a sewage treatment plant in Hong Kong. *Mar. Pollut. Bull.* 160, 111535. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111535>.
- Carney Almqvist, B.M., Åström, L., Roslund, S., Petersson, H., Johansson, M., Persson, N.-K., 2018. Quantifying shedding of synthetic fibers from textiles; a source of microplastics released into the environment. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 25, 1191–1199. <https://doi.org/10.1007/s11356-017-0528-2>.
- Carpenter, E.J., Smith, K.L., 1972. Plastics on the Sargasso Sea surface. *Science* 175,



- 1240–1241.
- Conkle, J.L., Báez Del Valle, C.D., Turner, J.W., 2018. Are we underestimating microplastic contamination in aquatic environments? *Environ. Manag.* 61, 1–8. <https://doi.org/10.1007/s00267-017-0947-8>.
- Cox, K.D., Covernton, G.A., Davies, H.L., Dower, J.F., Juanes, F., Dudas, S.E., 2019. Human consumption of microplastics. *Environ. Sci. Technol.* 53, 7068–7074. <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b01517>.
- De Falco, F., Di Pace, E., Cocco, M., Avella, M., 2019. The contribution of washing processes of synthetic clothes to microplastic pollution. *Sci. Rep.* 9, 6633. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-43023-x>.
- Di, M., Wang, J., 2018. Microplastics in surface waters and sediments of the three Gorges Reservoir, China. *Sci. Total Environ.* 616–617, 1620–1627. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.10.150>.
- R. Dris, First assessment of sources and fate of macro and micro plastics in urban hydro systems: case of Paris megacity. Hydrology, Université Paris-Est.
- Dris, R., Lahens, L., Rocher, V., Gasperi, J., Tassin, B., 2016b. Premières investigations sur les microplastiques en Seine. PIREN-Seine, phase VII.
- Dris, R., Imhof, H., Sanchez, W., Gasperi, J., Galgani, E., Tassin, B., Laforsch, C., 2015. Beyond the ocean: contamination of freshwater ecosystems with (micro-) plastic particles. *Environ. Chem. Lett.* 12, 539–550. <https://doi.org/10.1016/j.encl.2014.11.007>.
- Dris, R., Gasperi, J., Saad, M., Mirande, C., Tassin, B., 2016a. Synthetic fibers in atmospheric fallout: a source of microplastics in the environment? *Mar. Pollut. Bull.* 104, 290–293. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2016.01.006>.
- Egessa, R., Nankabirwa, A., Basooma, R., Nabwire, R., 2020. Occurrence, distribution and size relationships of plastic debris along shores and sediment of northern lake Victoria. *Environ. Pollut.* 257, 113442. <https://doi.org/10.1016/j.jempol.2019.11.3442>.
- Eriksen, M., Mason, S., Wilson, S., Box, C., Zellers, A., Edwards, W., Farley, H., Amato, S., 2013. Microplastic pollution in the surface waters of the Laurentian great lakes. *Mar. Pollut. Bull.* 77, 177–182. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2013.10.007>.
- Baure, F., De Alencastro, F., 2016. Microplastiques : situation dans les eaux de surface en Suisse. Fachartikel Aqua Gas 4, 72–77.
- Baure, F., Corbaz, M., Baecher, H., Felipe, L., 2012. Pollution due to plastics and microplastics in lake Geneva and in the Mediterranean sea. *Arch. Sci.* 65, 157–164.
- Baure, F., Demars, C., Wieser, O., Kunz, M., de Alencastro, L.F., 2015. Plastic pollution in Swiss surface waters: nature and concentrations, interaction with pollutants. *Environ. Chem.* 12, 582–591. <https://doi.org/10.1016/j.encl.2014.12.008>.
- M.E.L. Felismino, P.A. Helm, C.M. Rochman. Microplastic and other anthropogenic microparticles in water and sediments of Lake Simcoe. *J. Great Lake Res.* 10.1016/j.jglr.2020.10.007.
- Fischer, E.K., Paglialonga, L., Czech, E., Tamminga, M., 2016. Microplastic pollution in lakes and lake shoreline sediments – a case study on Lake Bolsena and Lake Chiusi (central Italy). *Environ. Pollut.* 213, 648–657. <https://doi.org/10.1016/j.jempol.2016.03.012>.
- Free, C.M., Jensen, O.P., Mason, S.A., Eriksen, M., Williamson, N.J., Boldgiv, B., 2014. High-levels of microplastic pollution in a large, remote, mountain lake. *Mar. Pollut. Bull.* 85, 156–163. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2014.06.001>.
- Gasperi, J., Wright, S.L., Dris, R., Collard, F., Mandin, C., Guerrouache, M., Langlois, V., Kelly, F.J., Tassin, B., 2018. Microplastics in air: are we breathing it in? *Curr. Opin. Environ. Sci. Health* 1, 1–5. <https://doi.org/10.1016/j.coes.2017.10.002>.
- D. Gateuille, J. Dusaucy, F. Gillet, J. Gasperi, R. Dris, G. Tourreau, E. Naffrechoux. Microplastic Contamination in Remote Alpine Lakes. EGU General Assembly, Vienna, Austria, 10.5194/egusphere-egu2020-1292.
- González-Pleiter, M., Velázquez, D., Edo, C., Carretero, O., Gago, J., Barón-Sola, A., Hernández-L.E., Yousef, I., Quesada, A., Leganés, F., Rosal, R., Fernández-Piñas, F., 2020. Fibers spreading worldwide: microplastics and other anthropogenic litter in an Arctic freshwater lake. *Sci. Total Environ.* 722, 137904. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137904>.
- Grbić, J., Helm, P., Athey, S., Rochman, C., 2020. Microplastics entering northwestern Lake Ontario are diverse and linked to urban sources. *Water Res.* 174, 115623. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.115623>.
- S. Hann, C. Sherrington, O. Jamieson, M. Hickman, P. Kershaw, A. Bapasola, G. Cole. Investigating options for reducing releases in the aquatic environment of microplastics emitted by (but not intentionally added in) products. *Banomia ICJ*, Final Report 335.
- Hartmann, N.B., Hüffer, T., Thompson, R.C., Hassellöv, M., Verschoor, A., Daugaard, A.E., Rist, S., Karlsson, T., Brennholt, N., Cole, M., Herring, M.P., Hess, M.C., Ivleva, N.P., Iusher, A.L., Wagner, M., 2019. Are we speaking the same language? Recommendations for a definition and categorization framework for plastic debris. *Environ. Sci. Technol.* 53, 1039–1042. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b05297>.
- Hitchcock, J.N., 2020. Storm events as key moments of microplastic contamination in aquatic ecosystems. *Sci. Total Environ.* 734, 139436. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139436>.
- Horton, A.A., Dixon, S.J., 2018. Microplastics: an introduction to environmental transport processes. *WIREs WATER* 5, e1268. <https://doi.org/10.1002/wat2.1268>.
- Horton, A.A., Walton, A., Spurgeon, D.J., Lahive, E., Svendsen, C., 2017. Microplastics in freshwater and terrestrial environments: evaluating the current understanding to identify the knowledge gaps and future research priorities. *Sci. Total Environ.* 586, 127–141. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.01.194>.
- Hu, D., Zhang, Y., Shen, M., 2020. Investigation on microplastic pollution of Dongting Lake and its affiliated rivers. *Mar. Pollut. Bull.* 160, 111555. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111555>.
- Huang, Y., Liu, Q., Jia, W., Yan, C., Wang, J., 2020. Agricultural plastic mulching as a source of microplastics in the terrestrial environment. *Environ. Pollut.* 260, 114096. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2020.114096>.
- Iannilli, V., Corami, F., Grasso, P., Lecce, F., Buttini, M., Setini, A., 2020. Plastic abundance and seasonal variation on the shorelines of three volcanic lakes in Central Italy: can amphipods help detect contamination? *Environ. Sci. Pollut. Res.* 27, 14711–14722. <https://doi.org/10.1007/s11356-020-07954-7>.
- Imhof, H.K., Ivleva, N.P., Schmid, J., Niessner, R., Laforsch, C., 2013. Contamination of beach sediments of a subalpine lake with microplastic particles. *Curr. Biol.* 23. <https://doi.org/10.1016/j.cub.2013.09.001>. P8867–R8868.
- INERIS, 2018. Données technico-économiques sur les substances chimiques en France. microplastiques last accessed: 01.13.2021. <http://www.ineris.fr/substances/fr/>.
- Irfan, T., Khalid, S., Taneez, M., Hashmi, M.Z., 2020. Plastic driven pollution in Pakistan: the first evidence of environmental exposure to microplastic in sediments and water of Rawal Lake. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 27, 15083–15092. <https://doi.org/10.1007/s11356-020-07833-1>.
- Jiang, C., Yin, L., Wen, X., Du, C., Wu, L., Long, Y., Liu, Y., Ma, Y., Yin, Q., Zhou, Z., Pan, H., 2018. Microplastics in sediment and surface water of west Dongting Lake and south Dongting Lake: abundance, source and composition. *Int. J. Environ. Res. Publ. Health* 15, 2164. <https://doi.org/10.3390/ijerph15102164>.
- Julienne, F., Delorme, N., Lagarde, E., 2019. From macroplastics to microplastics: role of water in the fragmentation of polyethylene. *Chemosphere* 236, 124409. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.124409>.
- Kaliszewicz, A., Winczek, M., Karaban, K., Kurzydowski, D., Gorska, M., Koselak, W., Romanowski, J., 2020. The contamination of inland waters by microplastic fibres under different anthropogenic pressure: preliminary study in Central Europe (Poland). *Waste Manag. Res.* 38, 1231–1238. <https://doi.org/10.1177/0734242220938448>.
- Karnaukhov, D., Biritskaya, S., Dolinskaya, E., Teplykh, M., Silenko, N., Ermolaeva, Y., Silov, E., 2020. Pollution by macro- and microplastic of large lacustrine ecosystems in Eastern Asia. *Polut. Res.* 39, 353–355.
- Kirstein, I.V., Kirmizi, S., Wichels, A., Garin-Fernandez, A., Erler, R., Löder, M., Gerdtz, G., 2016. Dangerous hitchhikers? Evidence for potentially pathogenic *Vibrio* spp. on microplastic particles. *Mar. Environ. Res.* 120, 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.marenvres.2016.07.004>.
- Klein, M., Fischer, E.K., 2019. Microplastic abundance in atmospheric deposition within the Metropolitan area of Hamburg, Germany. *Sci. Total Environ.* 685, 96–103. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.05.405>.
- Koelmans, A.A., Mohamed Nor, N.H., Hermsen, E., Kooij, M., Mintenig, S.M., De France, J., 2019. Microplastics in freshwaters and drinking water: critical review and assessment of data quality. *Water Res.* 155, 410–422. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2019.02.054>.
- Lares, M., Chaker Ncibi, M., Sillanpää, M., 2018. Occurrence, Mi. Sillanpää, 2018. Identification and removal of microplastic particles and fibers in conventional activated sludge process and advanced MBR technology. *Water Res.* 133, 236–246. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.01.049>.
- L. Lebreton, A. Andrady. Future scenarios of global plastic waste generation and disposal. *Palgrave Communications*, 5, 6, 10.1057/s41598-018-0212-7.
- Li, C., Buquets, R., Campos, L.C., 2020. Assessment of microplastics in freshwater systems: a review. *Sci. Total Environ.* 707, 135578. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.135578>.
- Mason, S.A., Kammin, L., Eriksen, M., Aleid, G., Wilson, S., Box, C., Williamson, N., Riley, A., 2016. Pelagic plastic pollution within the surface waters of Lake Michigan, USA. *J. Great Lake Res.* 42, 753–759. <https://doi.org/10.1016/j.jglr.2016.05.009>.
- Mao, R., Hu, Y., Zhang, S., Wu, R., Guo, X., 2020. Microplastics in the surface water of Wuliangshui lake, northern China. *Sci. Total Environ.* <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137820>.
- Mason, S.A., Daily, J., Aleid, G., Ricotta, R., Smith, M., Donnelly, K., Knauff, R., Edwards, W., Hoffman, M.J., 2020. High levels of pelagic plastic pollution within the surface waters of Lakes Erie and Ontario. *J. Great Lake Res.* 46, 277–288. <https://doi.org/10.1016/j.jglr.2019.12.012>.
- Meng, Y., Kelly, F.J., Wright, S.L., 2020. Advances and challenges of microplastic pollution in freshwater ecosystems: a UK perspective. *Environ. Pollut.* 256, 113445. <https://doi.org/10.1016/j.jempol.2019.11.3445>.
- Merga, L.B., Redondo-Hasselerharm, P.E., Van den Brink, P.J., Koelmans, A.A., 2020. Distribution of microplastic and small macroplastic particles across four fish species and sediment in an African lake. *Sci. Total Environ.* 741, 140522. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140522>.
- Migwi, E.K., Ogunah, J.A., Kiratu, J.M., 2020. Occurrence and spatial distribution of microplastics in the surface waters of lake Naivasha Kenya. *Environ. Chem.* 39, 765–774. <https://doi.org/10.1002/etc.4677>.
- Mintenig, S.M., Int-Veen, L., Löder, M.G.J., Primpke, S., Gerdtz, G., 2017. G. Identification of microplastic in effluents of waste water treatment plants using focal plane array-based micro-Fourier-transform infrared imaging. *Water Res.* 108, 365–372. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2016.11.015>.
- B. Montuelle, A. Clémens. Le tour des grands lacs alpins en 80 questions. Graie publishing, pp. 4-205.
- Negrete Velasco, A. de J., Rard, L., Blois, W., Lebrun, D., Lebrun, E., Pothe, P., Stoll, S., 2020. Microplastic and fibre contamination in a remote mountain lake in Switzerland. *Water* 12, 2410. <https://doi.org/10.3390/w12092410>.
- Oni, B.A., Ayeni, A.O., Agboola, O., Oguntade, T., Olanla, O., 2020. Comparing microplastics contaminants in (dry and raining) seasons for Oso-Bow Lake in



- Yenagoa Nigeria. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 198, 110656. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2020.110656>.
- Pastorino, P., Pizzul, E., Bertoli, M., Anselmi, S., Kuske, M., Menconi, V., Prearo, M., Renzi, M., 2020. First insights into plastic and microplastic occurrence in biotic and abiotic compartments, and snow from a high-mountain lake (Garnic Alps). *Chemosphere* 265, 129121. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.129121>.
- PlasticsEurope, 2011. *Plastics - the Facts 2011: an Analysis of European Plastics Production, Demand and Recovery for 2010* (last accessed: 01.13.2021). <https://www.plastics-europe.org/fr/resources/market-data>.
- PlasticsEurope, 2019. *Plastics - the Facts 2019: an Analysis of European Plastics Production, Demand and Waste Data* (last accessed: 01.13.2021). <https://www.plastics-europe.org/fr/resources/market-data>.
- Scopetani, C., Chelazzi, D., Cincielli, A., Esterhuizen-Londt, M., 2019. Assessment of microplastic pollution: occurrence and characterisation in Vesijärvi lake and Pikku Vesijärvi pond, Finland. *Environ. Monit. Assess.* 191, 652. <https://doi.org/10.1007/s10661-019-7843-z>.
- Song, Y.K., Hong, S.H., Jang, M., Han, G.M., Jung, S.W., 2017. WJ. Shim Combined effects of UV exposure duration and mechanical abrasion on microplastic fragmentation by polymer type. *Environ. Sci. Technol.* 51, 4368–4376. <https://doi.org/10.1021/acs.est.6b06155>.
- Stark, M., 2019. Letter to the editor regarding "are we speaking the same language? Recommendations for a definition and categorization framework for plastic debris". *Environ. Sci. Technol.* 53. <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b01360>, 4677–4677.
- Su, L., Xue, Y., Li, L., Yang, D., Kolandhasamy, P., Li, D., Shi, H., 2016. Microplastics in Taihu lake, China. *Environ. Pollut.* 216, 711–719. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.06.036>.
- Talvitie, J., Mikola, A., Setälä, O., Heinonen, M., Koistinen, A., 2012. How well is microlitter purified from wastewater? – a detailed study on the stepwise removal of microlitter in a tertiary level wastewater treatment plant. *Water Res.* 108, 164–172. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2016.11.046>.
- Turner, S., Horton, A.A., Rose, N.L., Hall, C., 2019. A temporal sediment record of microplastics in an urban lake, London, UK. *J. Paleolimnol.* 61, 449–462. <https://doi.org/10.1007/s10933-019-00071-z>.
- Uddin, S., Fowler, S., Behbehani, M., 2020. An assessment of microplastic inputs into the aquatic environment from wastewater streams. *Mar. Pollut. Bull.* 160, 111538. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2020.111538>.
- United Nations, 2020. Sustainable development goals knowledge platform. last accessed 4.29.20. <https://sustainabledevelopment.un.org/>.
- Uurasjärvi, E., Hartikainen, S., Setälä, O., Lehtiniemi, M., Koistinen, A., 2020. Microplastic concentrations, size distribution, and polymer types in the surface waters of a northern European lake. *Water Environ. Res.* 92, 149–156. <https://doi.org/10.1002/wer.1229>.
- Vaughan, R., Turner, S.D., Rose, N.L., 2017. Microplastics in the sediments of a UK urban lake. *Environ. Pollut.* 229, 10–18. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.05.057>.
- Wagner, S., Hüffer, T., Klöckner, P., Wehrhahn, M., Hofmann, T., Reemtsma, T., 2018. Tire wear particles in the aquatic environment – a review on generation, analysis, occurrence, fate and effects. *Water Res.* 139, 83–100. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2018.03.051>.
- Wang, W., Ndungu, A.W., Li, Z., Wang, J., 2017. Microplastics pollution in inland freshwaters of China: a case study in urban surface waters of Wuhan, China. *Sci. Total Environ.* 575, 1369–1374. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.09.213>.
- Wang, Z., Qin, Y., Li, W., Yang, W., Meng, Q., Yang, J., 2019. Microplastic contamination in freshwater: first observation in lake Ulansuhai, yellow river basin, China. *Environ. Chem. Lett.* 17, 1821–1830. <https://doi.org/10.1007/s10311-019-00888-8>.
- Welden, N.A., Lusher, A.L., 2017. Impacts of changing ocean circulation on the distribution of marine microplastic litter: changing ocean circulation and marine microplastic litter. *Integrated Environ. Assess. Manag.* 13, 483–487. <https://doi.org/10.1002/ieam.1911>.
- Wong, J.K.H., Lee, K.K., Tang, K.H.D., Yap, P.-S., 2020. Microplastics in the freshwater and terrestrial environments: prevalence, fates, impacts and sustainable solutions. *Sci. Total Environ.* 719, 137512. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137512>.
- Wright, S.L., Ulke, J., Font, A., Chan, K.L.A., Kelly, E.J., 2020. Atmospheric microplastic deposition in an urban environment and an evaluation of transport. *Environ. Int.* 136, 105411. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2019.105411>.
- Wu, X., Pan, J., Li, M., Li, Y., Bartlam, M., Wang, Y., 2019. Selective enrichment of bacterial pathogens by microplastic biofilm. *Water Res.* 165, 114979. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2019.114979>.
- Xia, W., Rao, Q., Deng, X., Chen, J., Xie, P., 2020. Rainfall is a significant environmental factor of microplastic pollution in inland waters. *Sci. Total Environ.* 732, 139065. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.139065>.
- Xiong, X., Zhang, K., Chen, X., Shi, H., Luo, Z., Wu, C., 2018. Sources and distribution of microplastics in China's largest inland lake – Qinghai Lake. *Environ. Pollut.* 235, 899–906. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.12.081>.
- Yin, L., Wen, X., Du, C., Jiang, J., Wu, L., Zhang, Y., Hu, Z., Hu, S., Feng, Z., Zhou, Z., Long, Y., Gu, Q., 2020. Comparison of the abundance of microplastics between rural and urban areas: a case study from East Dongting Lake. *Chemosphere* 244, 125486. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125486>.
- Yuan, W., Liu, X., Wang, W., Di, M., Wang, J., 2019. Microplastic abundance, distribution and composition in water, sediments, and wild fish from Poyang lake, China. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 170, 180–187. <https://doi.org/10.1016/j.ecoenv.2018.11.126>.
- Zbyszewski, M., Gorzoran, P.L., 2011. Distribution and degradation of fresh water plastic particles along the beaches of lake Huron, Canada. *Water Air Soil Pollut.* 220, 365–372. <https://doi.org/10.1007/s11270-011-0760-6>.
- Zbyszewski, M., Gorzoran, P.L., Hodón, A., 2014. Comparison of the distribution and degradation of plastic debris along shorelines of the Great Lakes. *North Am. J. Great Lakes Res.* 40, 288–299. <https://doi.org/10.1016/j.jglr.2014.02.012>.
- Zhang, K., Su, J., Xiong, X., Wu, X., Wu, C., Liu, J., 2016. Microplastic pollution of lakeshore sediments from remote lakes in Tibet plateau, China. *Environ. Pollut.* 219, 450–455. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2016.05.048>.
- Zhang, Y., Gao, T., Kang, S., Sillanpää, M., 2019. Importance of atmospheric transport for microplastics deposited in remote areas. *Environ. Pollut.* 254, 112953. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2019.07.121>.
- Zhang, S., Yuan, S., Kang, S., Allen, S., Allen, D., Gao, T., Sillanpää, M., 2020. Atmospheric microplastics: a review on current status and perspectives. *Earth Sci. Rev.* 203, 103118. <https://doi.org/10.1016/j.earscirev.2020.103118>.
- Zhang, Y., Liang, J., Zeng, G., Tang, W., Lu, Y., Luo, Y., Xing, W., Tang, N., Ye, S., Li, X., Huang, W., 2020. How climate change and eutrophication interact with microplastic pollution and sediment resuspension in shallow lakes: a review. *Sci. Total Environ.* 705, 135979. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2019.135979>.
- Zhang, Q., Xu, E.G., Li, J., Chen, Q., Ma, L., Zeng, E.Y., Shi, H., 2020c. A review of microplastics in table salt, drinking water, and air: direct human exposure. *Environ. Sci. Technol.* 54, 3740–3751. <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b04535>.
- Zhou, Q., Tian, C., Luo, Y., 2020. Various forms and deposition fluxes of microplastics identified in the coastal urban atmosphere. *Chin. Sci. Bull.* 62, 3902–3909. <https://doi.org/10.1360/NS72017-00956>.

Annexe 2 Informations sur le dispositif expérimental :  $\mu$ -FTIR (basé sur les recommandations de (Andrade et al., 2020))

Paramètres	Informations
Marque de l'équipement	PerkinElmer®
Modèle	Spotlight 400, Spectrum 3
Source	MIR 8 000 $\text{cm}^{-1}$ - 30 $\text{cm}^{-1}$
Séparateur de faisceau	OptKBr 7 800 $\text{cm}^{-1}$ - 400 $\text{cm}^{-1}$
Détecteur	MCT 10 000 $\text{cm}^{-1}$ - 450 $\text{cm}^{-1}$
Fenêtre	KBr
Plage de balayage optimale	7 800 $\text{cm}^{-1}$ - 450 $\text{cm}^{-1}$
Paramètres avancés	CO <sub>2</sub> /H <sub>2</sub> O corrections
Logiciel	Spectrum IR 10
Technique	Réflectance
Résolution spectrale nominale	16 $\text{cm}^{-1}$
Nombre de scans par pixel	2
Scan de ... à ...	De 4 000 $\text{cm}^{-1}$ à 650 $\text{cm}^{-1}$
Taille du pixel	25 $\mu\text{m}$
Vitesse de l'interféromètre	1,0 $\text{cm/s}$
Background	Gold
Surface du filtre analysé	100 %

## Abstract

Since their first discovery in the ocean in the 1970s, microplastics have been a growing concern for public opinion. Studies on microplastic contamination in lakes are a recent enterprise, with the first study dating back to 2012 on Lake Geneva. Although most plastic debris in the oceans comes from terrestrial environments and inland waters, attention has long been focused mainly on the contamination of the marine environment. However, the contamination of freshwater ecosystems is an emerging and crucial field.

This thesis aims to globally evaluate the state of contamination of lake environments in the French Alps by microplastics, by finding the respective contribution of each contamination vector and source. To do so, three study sites were selected in the Auvergne-Rhône-Alpes region, namely the subalpine lakes of Bourget and Annecy, as well as a high-altitude lake, the upper Merlet, located in the Vanoise National Park.

During this work, various systems were developed and implemented at each of the three sites to acquire data on several environmental matrices. The matrices examined to assess microplastic pollution in lakes are surface water, the water column and sediments. Furthermore, the study investigates the origin of microplastics by determining the contributions of various potential vectors and sources of contamination, namely atmospheric deposition, tributaries, urban wastewater and stormwater. Additionally, the fate of microplastics is investigated through the study of lake outlets.

In conclusion, mass and flux balances were conducted to highlight the major sources and vectors of microplastic pollution in lacustrine environments.

**Keywords :** microplastic, lake, pollution, source, vector

## Résumé

Depuis leur découverte initiale au cours des années 1970 dans les masses océaniques, les microplastiques suscitent une inquiétude grandissante au sein de l'opinion publique. Les études sur la contamination des lacs par les microplastiques sont une entreprise récente, avec la première étude datant de 2012 sur le lac Léman. Bien que la majorité des débris plastiques dans les océans soient issus de l'environnement terrestre et des eaux intérieures, l'attention s'est longtemps concentrée essentiellement sur la contamination du milieu marin. Toutefois, la contamination des écosystèmes d'eau douce est un domaine émergent et crucial.

Cette thèse vise à évaluer de manière globale l'état de contamination des environnements lacustres des Alpes françaises par les microplastiques, en déterminant la contribution respective de chacun des vecteurs et sources de contamination. Pour ce faire, trois sites d'étude ont été sélectionnés dans la région Auvergne-Rhône-Alpes, à savoir les lacs subalpins du Bourget et d'Annecy, ainsi qu'un lac d'altitude, le Merlet supérieur, situé dans la Parc national de la Vanoise. Au cours de ces travaux, divers systèmes ont été élaborés et mis en place sur chacun des trois sites afin d'acquérir des données sur plusieurs matrices environnementales. Les matrices scrutées pour évaluer la pollution microplastique des lacs sont l'eau de surface, la colonne d'eau et les sédiments. En outre, l'étude s'intéresse à l'origine des microplastiques, en déterminant les contributions des différents vecteurs et sources potentiels de contamination, à savoir les retombées atmosphériques, affluents, ERU épurées et brutes et eaux pluviales. Par ailleurs, le devenir des microplastiques est investigué par l'étude des exutoires des lacs. Pour conclure ces travaux de thèse, des estimations de bilan de stock et de flux ont été réalisés dans le but de mettre en évidence les sources et vecteurs majeurs de la pollution aux MP dans les milieux lacustres.

**Mots clés :** microplastique, lac, pollution, source, vecteur