

# Rapport Seine-Aval 4



## RHAPSODIS

Reconstitution de l'historique des apports  
particulaires à la Seine par l'observation  
de leur intégration sédimentaire



Boust D., Lesueur P., Berthe T.



Mai 2012

**IRSN**  
INSTITUT  
DE RADIOPROTECTION  
ET DE SÛRETÉ NUCLÉAIRE



GIP Seine-Aval  
Pôle Régional des Savoirs  
115 Bd de l'Europe  
76 100 - Rouen

tel : 02 35 08 37 64  
<http://www.seine-aval.fr>



# Projet RHAPSODIS

2008-2011

## Rapport final

Coordinateur : D. BOUST

Responsables scientifiques des équipes impliquées dans le projet :

T. BERTHE, D. BOUST et P. LESUEUR P.





## Equipes impliquées dans le projet

---

UMR CNRS 6143 M2C -Morphodynamique Continentale et Côtière

Université de Caen

24, rue des Tilleuls, 14000 CAEN

Contact : [patrick.lesueur@unicean.fr](mailto:patrick.lesueur@unicean.fr)

UMR CNRS 6143 M2C -Morphodynamique Continentale et Côtière

Université de Rouen

Contact : [thierry.berthe@univ-rouen.fr](mailto:thierry.berthe@univ-rouen.fr)

Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville, Institut de Radioprotection et de  
Sûreté Nucléaire, BP10, 50130 CHERBOURG OCTEVILLE

Contact : [dominique.boust@irsn.fr](mailto:dominique.boust@irsn.fr)

Ont participé au projet RHAPSODIS :

Alain ABARNOU	IFREMER Nantes
Florence ARPAILLANGE	M2C-Univ. Rouen
Sylvaine BERTHE	M2C-Univ. Rouen
Thierry BERTHE	M2C-Univ. Rouen
Dominique BOUST	IRSN-LRC
Carole BRUNAUD	M2C-Univ. Caen
Olivier CONNAN	IRSN-LRC
Julien DELOFFRE	M2C-Univ. Rouen
Rémi DILLIES	M2C-Univ. Caen
Albert GALLICHER	GPMR
Sylvain HAQUIN	M2C-Univ. Caen
Assia KACI	M2C-Univ. Rouen
Serge LE CAVELIER	IRSN-LRC
Franck LELONG	M2C-Univ. Caen
Patrick LESUEUR	M2C-Univ. Caen
Fabienne PETIT	M2C-Univ. Rouen
Marianne ROZET	IRSN-LRC
Michel SIMON	M2C-Univ. Caen
Luc SOLIER	IRSN-LRC
Bernadette TESSIER	M2C-Univ. Caen
Coralie THOUROUDE	M2C-Univ. Caen
Claire VOISEUX	IRSN-LRC
Anne VREL	M2C-Univ. Caen /IRSN-LRC



## SOMMAIRE

SOMMAIRE.....	5
CONTEXTE ET QUESTIONNEMENTS A L'ORIGINE DU PROJET .....	7
1 STRUCTURE DU DOCUMENT.....	9
2 L'ESTUAIRE AMONT DE LA SEINE : CONTEXTE HYDROLOGIQUE ET HYDRODYNAMIQUE. 11	
2.1 Introduction.....	11
2.2 La morphologie et les sédiments de l'estuaire amont.....	12
2.3 Les forçages .....	13
3 RESULTATS SCIENTIFIQUES .....	17
3.1 La Darse des Docks : éléments de justification du choix du site.....	17
3.2 La Darse des Docks : dynamique de remplissage et validation du site .....	19
3.3 La Darse des Docks : quantification de la contribution des forçages par traitement du signal des images SCOPIX® .....	35
3.4 Reconstitution des apports en contaminants métalliques .....	37
3.5 Reconstitution des apports en radionucléides .....	48
3.6 Reconstitution des apports en contaminants organiques .....	59
3.7 Existe-t-il une relation entre la diversité microbienne et le niveau de contamination chimique le long de la carotte ?.....	72
3.8 Impact de la contamination métallique des sédiments sur la communauté microbienne résistante aux métaux traces .....	84
3.9 Persistance des gènes de résistance aux antibiotiques et des bactéries d'origine fécale 94	
4 RETOMBÉES OPERATIONNELLES DIRECTES ET INDIRECTES .....	99
4.1 Historique de la contamination du haut estuaire de la Seine et éléments prédictifs.....	99
4.2 L'héritage des phosphogypses .....	100
4.3 La persistance des contaminants organiques .....	106
4.4 Sédiments fins accumulés dans l'estuaire amont de la Seine : épuration ou rémanence.....	107
4.5 Constitution d'une banque de sédiments datés et de données .....	108
5 CONCLUSIONS : LES ACQUIS DU PROJET RHAPSODIS .....	109
6 PERSPECTIVES ET QUESTIONNEMENTS NOUVEAUX .....	111
7 LISTE DES COMMUNICATIONS ET PUBLICATIONS REALISEES PAR LES EQUIPES DANS LE CADRE DU PROJET RHAPSODIS .....	113
8 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES CITEES .....	115
9 LISTE DES TABLEAUX .....	123
10 LISTE DES FIGURES.....	125
11 TABLE DES MATIERES .....	129
12 Annexes .....	133
Annexe 1 : Caractéristiques des radionucléides mesurés dans cette étude.....	133
Annexe 2 : Compte rendu de la campagne de carottage 2008.....	135
Annexe 3 : Compte rendu de la campagne de carottage 2010.....	151



## CONTEXTE ET QUESTIONNEMENTS A L'ORIGINE DU PROJET

Le projet RHAPSODIS (Reconstitution de l'Histoire des Apports Particulaires à la Seine par l'Observation De leur Intégration Sédimentaire) avait pour objectif de poursuivre et compléter une longue tâche dans laquelle les équipes participantes s'étaient activement investies au cours des précédentes phases du programme Seine Aval : l'identification des processus de transfert et de dépôt du matériel sédimentaire fin auquel sont associés de nombreux contaminants, à différentes échelles de temps et différentes échelles spatiales du système estuarien.

Le projet RHAPSODIS vise l'analyse rétrospective de séries pluriannuelles archivées dans le sédiment, avec pour objectif principal d'améliorer la connaissance de la dynamique passée de l'estuaire dans sa partie amont. Cette démarche n'avait pas encore été menée dans cette partie de l'estuaire, laquelle constitue pourtant une zone de stockage temporaire ou définitif de particules sédimentaires et de contaminants de toute nature, qu'ils soient d'origine continentale ou marine.

Le projet a été porté par deux laboratoires dont les savoir-faire s'inscrivent dans les disciplines suivantes : sédimentologie, géochimie et microbiologie.

Les objectifs scientifiques principaux de la proposition étaient les suivants :

- décrire et comprendre les rythmicités sédimentaires dans l'estuaire amont de la Seine (région rouennaise) en réponse aux forçages naturels et anthropiques ;
- reconstituer les apports en contaminants particuliers (métalliques, organiques, microorganismes pathogènes) à l'estuaire amont de la Seine, en provenance du bassin versant ou de la mer, en les reliant à leur enregistrement sédimentaire ;
- reconstituer l'historique de l'apparition de gènes bactériens de résistance aux contaminants métalliques, réponse des communautés microbiennes autochtones à la contamination des apports ou des milieux de dépôt ; recherche des gènes spécifiques de bactéries pathogènes et gènes de résistance aux antibiotiques en fonction du contexte épidémiologique de la période échantillonnée.





## 1 STRUCTURE DU DOCUMENT

Après quelques rappels sur le fonctionnement hydrologique et hydrodynamique de l'estuaire fluvial (ou estuaire amont) de la Seine, présentant sa morphologie, ses faciès sédimentaires et les forçages auxquels il est soumis, les résultats du projet sont longuement présentés en différentes parties.

Les deux campagnes de carottages sont brièvement décrites (les rapports de ces campagnes sont fournis en annexe). Les carottes prélevées ont fait l'objet de nombreuses analyses sédimentaires visant à comprendre la dynamique du site, et également à interpréter les données géochimiques décrites dans la suite du document. Les différents outils ayant permis la datation des carottes sont exposés ; un modèle d'âge validé est proposé. Enfin, une analyse du signal effectuée sur les radiographies X d'une des carottes fournit des éléments sur le rôle respectif des paramètres forçants sur la dynamique de remplissage de la Darse des Docks.

Les résultats des analyses des éléments stables, des radionucléides et des contaminants organiques effectuées sur les sédiments carottés sont successivement présentés. Les résultats sont exposés sous forme de profil datés. La comparaison des mesures effectuées dans le cadre de ce projet avec des mesures effectuées sur des MES dans des études plus anciennes permet de juger de la représentativité des sédiments carottés par rapport au stock particulaire mobile dans l'estuaire amont.

Les résultats des études microbiologiques sont ensuite présentés selon trois axes : (1) mise en évidence de la relation existant entre contamination des sédiments et diversité microbiologique ; (2) évaluation de l'impact de la contamination métallique sur les communautés microbiennes ; (3) étude de la persistance des gènes de résistance aux antibiotiques et des bactéries d'origine fécale.

Quelques axes de réflexion sur l'opérationnalité des résultats acquis au cours du projet sont présentés : caractérisation des sédiments de la Darse des Docks et risque écotoxicologique, réponse des niveaux de contamination à la réduction de l'usage et/ou des rejets ; résilience des communautés microbiennes ; persistance de gènes de résistance aux antibiotiques.



## 2 L'ESTUAIRE AMONT DE LA SEINE : CONTEXTE HYDROLOGIQUE ET HYDRODYNAMIQUE

### 2.1 Introduction

Dès l'initiation du programme Seine-Aval, la question de la zonation longitudinale de l'estuaire a été posée. Celle qui a été retenue s'appuie logiquement sur la nature des eaux et le comportement des matières en suspension et comme dans d'autres estuaires, on distingue trois zones (Figure 1).

L'estuaire aval (ou marin) est compris entre Honfleur (pK 355) et la Baie de Seine orientale sous l'influence du débit de la Seine. L'estuaire moyen, entre Honfleur et Vieux Port (pK 325, limite amont actuelle de l'intrusion saline), est une zone complexe où les caractéristiques des masses d'eau et les processus sont éminemment variables ; elle est caractérisée par un gradient de salinité et la présence du bouchon vaseux. L'estuaire amont (ou fluvial) est compris entre Vieux-Port et la limite amont de l'estuaire, marquée par la remontée de la marée dynamique (pK 202, barrage de Poses). Les eaux y demeurent douces et l'hydrodynamisme fluvial y domine. Seule cette partie amont de l'estuaire, très peu étudiée sur le fonctionnement à long terme du stockage des sédiments et des contaminants associés, est concernée par le projet RHAPSODIS.

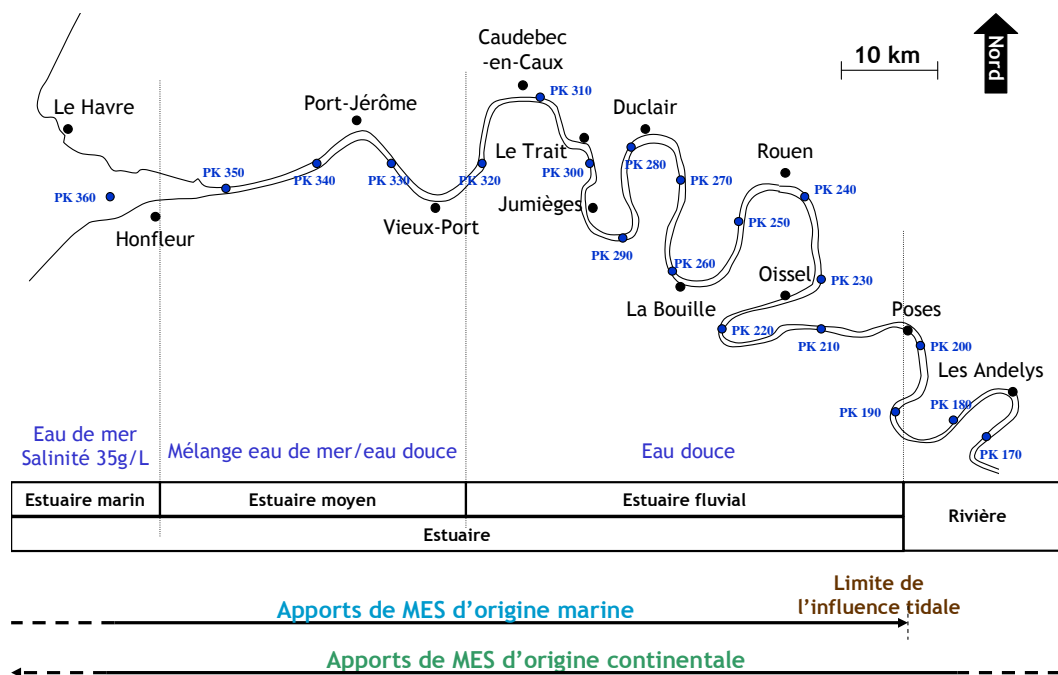


Figure 1. L'estuaire de la Seine (PK = Point Kilométrique)

## ***2.2 La morphologie et les sédiments de l'estuaire amont***

Dans sa quête d'améliorer la navigation et l'exploitation des terres, l'Homme a modifié/accélééré l'évolution naturelle de l'estuaire au sein duquel, on distingue, de nos jours, une section aval de Rouen, complètement cernée par des digues hautes et insubmersibles bordant polders et zones industrielles, et une section amont où certains espaces naturels écologiquement précieux demeurent préservés de l'anthropisation.

Ainsi, à l'amont de Rouen, le chenal de navigation est à gabarit fluvial (barges et péniches) ; y subsistent des îles, des bras secondaires et des zones marginales, espaces potentiels de décantation des particules fines apportées par les eaux fluviales. Dans ce secteur amont de Rouen, les investigations menées au cours du programme (Lesueur et al., 1999) ont montré que les fonds sont composés d'une mosaïque sédimentaire très complexe, héritée de dépôts fossiles (holocènes) à caractère fluvial (graviers, argiles et silts compacts, tufs carbonatés, débris de coquilles d'organismes d'eau douce, ...). Cette couverture sédimentaire n'a pas évolué au cours des dernières décennies. Dans cette section, quelques vasières s'étendent, dont celle d'Oissel, qui a fait l'objet d'études de dynamique sédimentaire, géochimiques et microbiologiques dans le cadre du programme (Bally et al., 2002).

A l'aval de Rouen, l'estuaire amont est le lieu du chenal de navigation à gabarit maritime du port de commerce de Rouen. Le tirant d'eau maximum admissible des navires est de 10,70 m à la montée et de 10,30 m à la descente (amélioration en cours pour un gain d'un mètre). La dynamique de la masse d'eau est telle que les sédiments mobiles sont très peu épais ou absents dans ce secteur où les fonds sont issus de la mise à nu et de l'affouillement de matériaux fossiles, soit grossiers (des graviers et galets), soit compacts (des argiles compactes, des tourbes, des tufs carbonatés, voire de la craie...). Cette couverture remaniée est souvent modelée en rubans sableux et mégarides de courants de polarité le plus souvent orientée vers l'aval (Lesueur et al., 1999). De rares vasières isolées s'étendent sur les berges dans ce secteur, soit du fait de particularités morphologiques (rives convexes de méandres où les courants sont plus faibles), soit du fait de digues hautes incomplètes ("trous" comme à Jumièges). La vasière du Malaquis au Trait a fait l'objet d'observations hydrosédimentaires montrant les importantes fluctuations pluriannuelles de l'envasement (Vernhet, 2000).

A la limite de ces deux parties, la zone portuaire de Rouen avec ses bassins, est un lieu privilégié du piégeage des particules fines (Dupont et al., 1997) qui peuvent décanter à l'abri de l'axe du chenal, du fait de la chute des vitesses de courants.

## 2.3 Les forçages

### 2.3.1 Le forçage amont : le débit fluvial

Malgré les barrages régulant les écoulements sur un bassin versant de 79 000 km<sup>2</sup>, le régime hydrologique annuel de la Seine déterminé au barrage de Poses est caractérisé par une période de basses eaux saisonnières (l'étiage) entre août et octobre et une période de hautes eaux saisonnières (la crue) entre novembre et avril. En étiage, les débits sont assez constants autour de 200 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> (valeur moyenne en août). En crue, les débits sont très variables d'une année à l'autre avec des maxima entre 1200 et 2500 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> (en février la moyenne est de l'ordre de 700 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>, GIPSA). Depuis 1941, date des premières évaluations, les moyennes annuelles des débits sont d'environ 440 m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup> (Seine-Aval, 2008). A noter que les apports d'eau douce intra-estuariens, comprenant les apports latéraux des affluents (dont le principal à l'amont de Rouen est l'Eure) et les apports par l'aquifère de la craie, ne sont pas pris en compte dans les valeurs indiquées, mais peuvent se révéler très significatifs notamment en étiage, période durant laquelle on estime la part des affluents à 30 % des apports en eau amont et celle de la nappe souterraine à 25 % (Deloffre et al., 2005).

Au cycle hydrologique annuel s'ajoutent plusieurs cycles de plus basse fréquence, reconnus d'origine climatique. Le principal est mis en relation avec l'oscillation nord-atlantique (NAO) : il est bien marqué dans les précipitations (Massei et al., 2007) et dans les débits de la Seine (Massei et al., 2011), d'une durée comprise entre 5 et 9 ans ; un cycle plus long, de l'ordre de 17 ans peut aussi être mis en évidence.

La quantité de matières solides en suspension apportée par le bassin versant amont de la Seine est évaluée entre 600 000 et 700 000 tonnes par an en moyenne. Il a, en outre, été montré depuis les travaux du SAUM (e.g. Avoine, 1985) que ces apports sont très liés aux débits du fleuve : les précieuses chroniques au barrage de Poses enregistrées par le Service de Navigation de la Seine montrent des relations entre débits journaliers et concentrations pondérales de matières en suspension (MES). Les travaux de Guezennec (1999) sont fondateurs pour la connaissance du comportement des MES dans l'estuaire amont : 75% des apports annuels de MES pénètrent dans l'estuaire en périodes de crue, dont 50% durant les phases ascendantes. Toutefois, les concentrations suivent des comportements complexes en fonction du régime hydrologique (débits et situation particulière au cours du cycle annuel), avec des hystérésis charge solide/débit liquide de type rétrograde (premières crues hivernales) ou orthograde (crues suivantes). Une part significative (20-30%) des apports de MES en crue à Poses est piégée dans l'estuaire amont (vasières de la zone des

îles, infrastructures du port de Rouen), dont une part est restituée au système estuarien après le pic de la crue, mais une grande part est extraite par dragage (bassins) ou préservée (bras morts). Après le pic de crue et que le passage du débit sous la valeur seuil de  $400 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$  (proposée par Guézennec), les cycles de marée l'emportent dans le transfert des particules vers l'aval surtout lors des vives eaux. Les études réalisées au cours du programme Seine-Aval (Bally et al., 2002 ; Deloffre et al., 2005) sur la vasière d'Oissel confirment ce rôle tampon.

### 2.3.2 Le forçage aval : le rôle de la marée

Le contexte de l'estuaire de la Seine est fortement macrotidal, avec un marnage de l'ordre de 8 m à l'embouchure lors des plus forts coefficients (très grandes vives eaux).

La courbe de marée est déjà asymétrique au Port du Havre, port de référence pour les cotes bathymétriques (0 CMH = zéro des cartes marines au Havre) dans l'estuaire. A mesure que l'onde de marée se propage vers l'amont, son asymétrie s'accroît (le montant raccourcit et le baissant s'allonge), alors que le marnage diminue. Du fait du grand nombre de marégraphes implantés tout au long de l'estuaire, la marée y est bien connue. Ainsi, la référence la plus proche de la Darse des Docks est celle de Petit-Couronne (pK 252) : le marnage maximum y est de 3,5 m environ ; à partir de la zone portuaire de Rouen, le marnage diminue fortement vers l'amont.

A l'intérieur de l'estuaire, l'asymétrie de marée est exacerbée par une brusque montée du plan d'eau à partir de la basse mer locale : c'est le "coup de flot", réminiscence du mascaret qui a, quant à lui, disparu depuis les endiguements de l'estuaire aval. Lors des périodes de vives eaux, cette montée est de l'ordre du mètre en environ 30 mn. La pleine mer locale n'est ensuite que progressivement atteinte, 4 heures après la basse mer. Il en résulte un montant de 4h30 et un long baissant de 8 heures.

Le stockage d'eau sous l'influence de la marée dans le profil longitudinal de l'estuaire est sous l'influence des différents cycles, avec une oscillation complexe des volumes fonction du type de cycle (semi-diurne, semi-lunaire, lunaire) et du site de référence. On se rapportera aux travaux de référence de Guézennec (1999) : forte diminution des volumes oscillants dans l'estuaire amont, plus faibles volumes oscillants en mortes eaux, mais le volume stocké à l'amont d'Oissel (pK 230) entre mortes eaux et vives eaux représente une part importante du volume initial.

Dans les parties amont des estuaires, la basse mer est plus haute au cours des périodes de vives eaux qu'en mortes eaux (Figure 2). Cette singularité s'explique par un surplus d'eau apportée par le montant par rapport au volume d'eau évacuée lors du baissant. Ainsi, le

long d'un profil longitudinal, dans l'estuaire fluvial le lieu géométrique des basses mers de mortes eaux est plus bas que celui des basses mers de vives eaux : c'est donc le contraire du littoral et de l'estuaire aval. Le point d'intersection des deux lignes représentant ces lieux géométriques se nomme "point caractéristique". Après avoir été situé autour de Caudebec vers la fin du XIX<sup>e</sup> siècle (Guézennec, 1999), il se situe actuellement vers Heurteauville ( $\approx$  pk 300) avec les aménagements du bas estuaire.

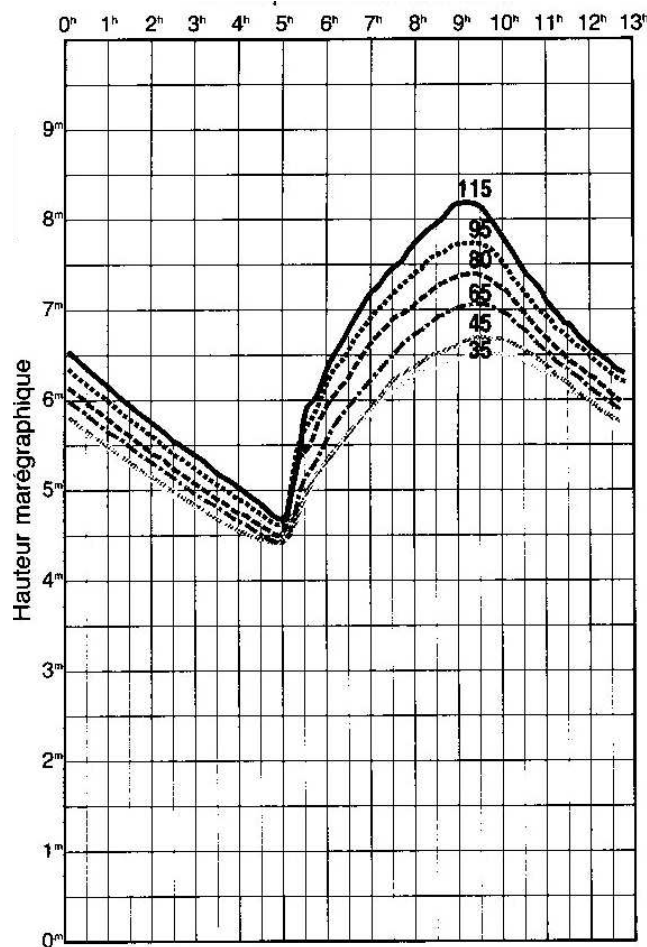


Figure 2. Courbes de marée à Petit Couronne par différents coefficients. Heures et hauteurs référencées par rapport à la basse mer au Havre et au 0 des cartes marines du Havre (données Grand Port Maritime de Rouen, annuaire des marées 2010).

Les vitesses de courant dans le chenal de navigation (mesurées à 2,50 m sous la surface) sont liées au marnage au point considéré. A Rouen (Figure 3), les vitesses maximales sont enregistrées lors du "coup de flot" peu après la basse mer, alors que les vitesses s'inversent et atteignent  $50-60 \text{ cm.s}^{-1}$  en quelques minutes ; au maximum de flot, elles atteignent  $1 \text{ m.s}^{-1}$  en vives eaux pendant 3 à 4 heures environ ; en mortes eaux, elles sont de l'ordre de la moitié durant le même temps. Les vitesses maximales du courant de jusant sont légèrement moindres :  $0,50$  à  $0,70 \text{ m.s}^{-1}$ . Aucune mesure spécifique de vitesses de courant



n'a été réalisée dans le cadre de la problématique de la présente étude, ni dans le chenal, ni dans la Darse des Docks.

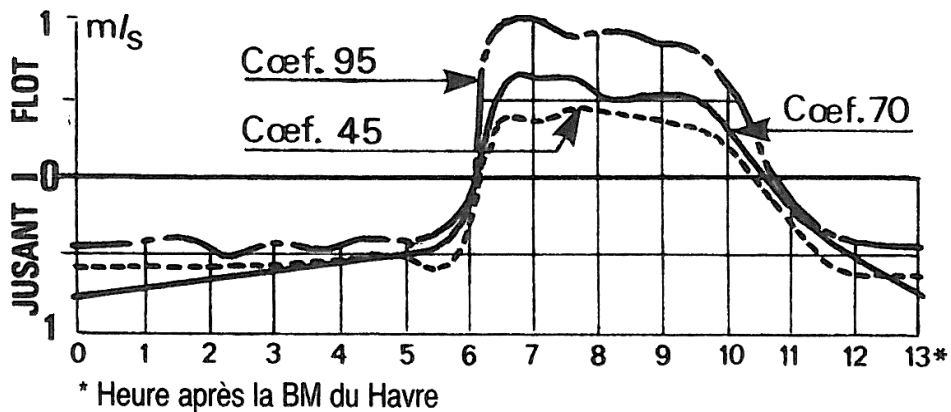


Figure 3. Vitesses de courant dans le chenal de la Seine à Rouen par différents coefficients (données Grand Port Maritime de Rouen, annuaire des marées 2010).

Le débit du fleuve influence le niveau d'eau lié à la marée, de façon variable selon le lieu et le débit considéré (évalué à Poses deux jours avant). Des corrections significatives doivent être apportées sur les niveaux de basse et pleine mer. Ainsi à Rouen (données GPMR), la surélévation du niveau d'eau à basse mer est comprise entre 22 cm par débit moyen et mortes eaux (débit de référence :  $500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , coefficient de marée : 30) et 279 cm par débit de crue et grandes vives eaux (débit de référence :  $2000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ , coefficient de marée : 120). A pleine mer, le niveau d'eau est plus haut de 7 cm par débit moyen et mortes eaux et de 168 cm, en débit de crue et grandes vives eaux. Ces variations d'altitude ont leur influence dans les conditions de remplissage en eau et en MES de la Darse des Docks.

L'influence de la marée dans la remontée d'apports particuliers depuis l'estuaire aval a été montrée grâce au marquage par les radionucléides originaires de l'usine de retraitement des déchets irradiés de La Hague par les travaux de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire d'Orville (Boust et al., 2002 ; Dubrulle-Brunaud, 2007 ; Guézennec, 1999). Sans que l'on puisse quantifier les flux ascendants, la démonstration a été faite qu'un stock de particules d'origine marine se déplace en moyenne d'une vitesse apparente de 10 km par an dans l'estuaire et que ces particules ont été décelées jusque La Bouille (Boust et al., 2002).

### 3 RESULTATS SCIENTIFIQUES

#### 3.1 La Darse des Docks : éléments de justification du choix du site

Pour mener à bien les objectifs rappelés ci-dessus, il fallait avoir sélectionné au préalable un site potentiel ayant pu stocker les sédiments fins durant la durée la plus longue possible, avec le minimum de remaniement depuis leur phase de dépôt. Il fallait aussi savoir collecter avec le minimum de perturbation ces sédiments meubles. Depuis la seconde phase du programme Seine-Aval (Lesueur et al., 1999), on connaît parfaitement les zones de décantation des particules fines dans l'estuaire. Elles forment des vasières souvent étroites aux surfaces et aux épaisseurs fluctuantes selon la saison et les années (e.g. vasière d'Oissel, vasière du Malaquis au Trait) et forment le remplissage des souilles et des bassins portuaires connectés au chenal de l'estuaire amont à Rouen. Néanmoins, ces lieux de décantation ont leurs profondeurs régulièrement entretenues par dragages, sauf l'un d'entre eux dont l'exploitation a été abandonnée : la Darse des Docks, à Petit Couronne, à 11 km à l'aval du centre de Rouen (Figure 4).

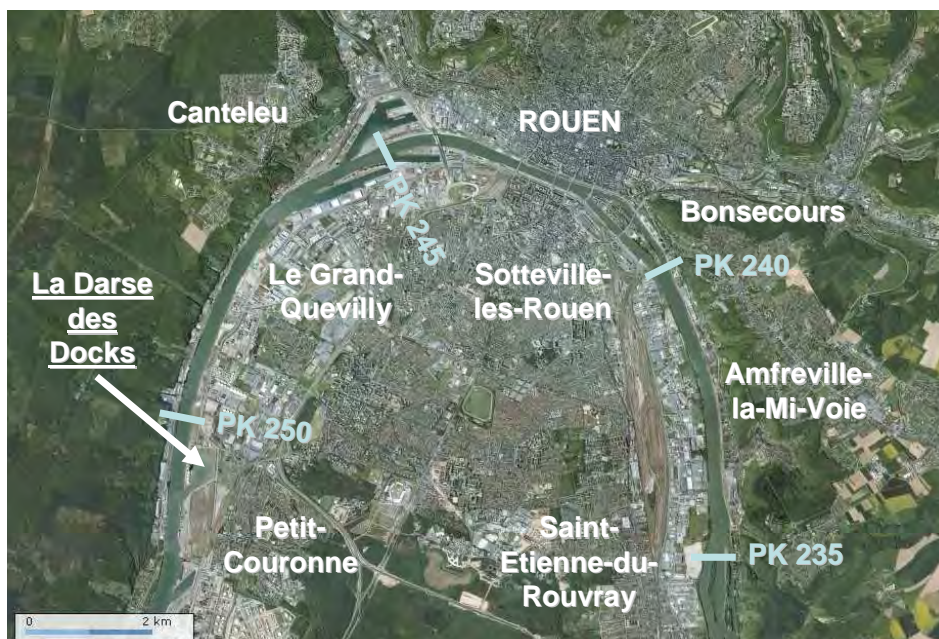


Figure 4. Carte de localisation de la Darse des Docks (Photo : Géoportail)

Ce bassin avait déjà, dans le passé du programme Seine-Aval, été envisagé comme lieu d'études, mais son investigation avait été différée, probablement du fait de la difficulté d'échantillonner les sédiments (par carottage) avec de très faibles profondeurs d'eau. Le projet du Port de Rouen (Grand Port Maritime de Rouen, GPMR) de modifier cette darse (soit par dragages, soit par comblement) a rendu l'investigation urgente de ce qui nous

semblait -et s'est avéré être- le plus complet piège à sédiments et contaminants associés des dernières décennies dans l'estuaire amont de la Seine.

### 3.1.1 Eléments contextuels : histoire de l'exploitation du site

La Darse des Docks a été creusée et aménagée entre 1929 et 1931 selon les plans de l'ingénieur Paul Barillon pour accueillir des docks de réparation des navires. Quatre docks flottants ont été ainsi construits (Figure 5) avec une cote de fond de souille à -6,50 m CMH (cote marine du Havre, référence bathymétrique de l'estuaire). Leur exploitation s'est achevée différemment au cours du temps : dock 3 en 1967, dock 4 en 1975, dock 1 en 1988 (fin de l'exploitation de la darse). Il est mentionné (note ex-PAR : GPMR) que "la darse a toujours été faiblement entretenue" durant son exploitation, puis que "l'entretien s'est fait a minima sur les souilles et accès aux docks en service", alors que depuis 1988 "on ne retrouve pas dans les archives du PAR trace de dragage effectué". Le GPMR a fourni un tableau de chronologie des dragages et des zones concernées (souilles, chenal d'accès), soit des dragages d'ensemble des souilles en 1949, puis plus localisés à une souille et à l'accès aux années suivantes : 1953, 1955, 1957, 1958, 1961, 1962, 1965, 1966, 1967, 1968, 1973, 1977, 1979.

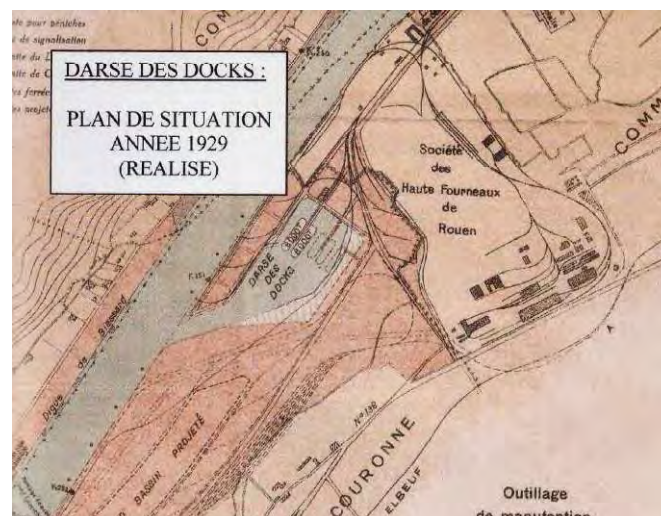


Figure 5. Carte de la Darse des Docks de 1929 (Source : GPMR)

### 3.1.2 Eléments disponibles avant le projet RHAPSODIS et études préliminaires

Le GPMR nous a fourni les cartes bathymétriques disponibles de la Darse des Docks afin d'optimiser de calculer les évolutions de la sédimentation dans l'ensemble du bassin. Nous avons localisé un secteur sud-est de la darse a priori à l'écart des dragages d'entretien, lequel a été envisagé comme site préférentiel de carottages (Figure 6). Huit cartes bathymétriques ont été fournies, datées de 1931, 1975, 1986, 1988, 1994, 1997, 2000 et

2008. Il a alors été décidé une première reconnaissance du site à bord d'un Zodiac, en examinant les accès possibles pour une mission d'échantillonnage et la logistique associée.

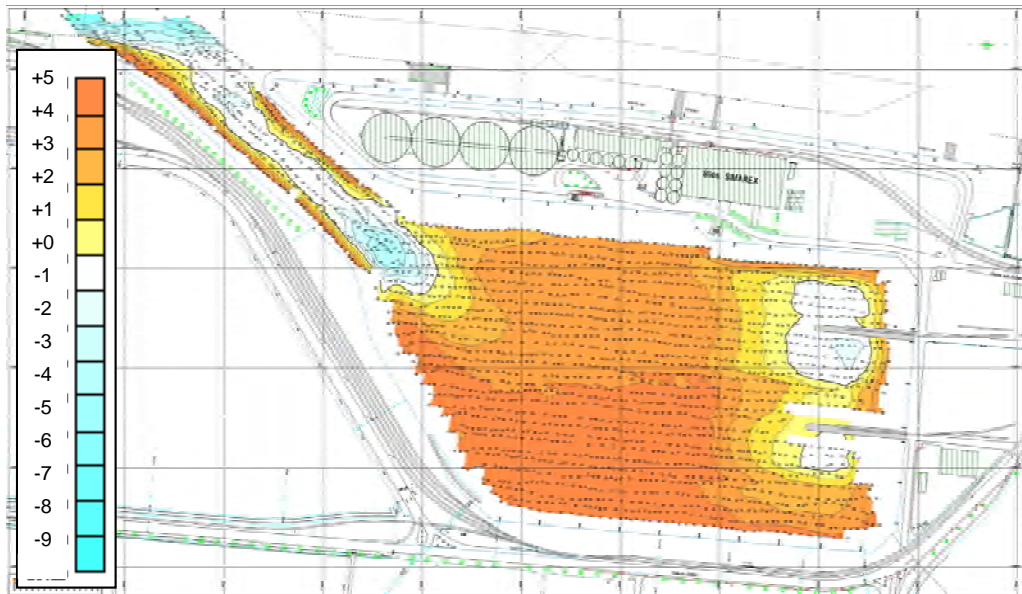


Figure 6. Carte bathymétrique de la Darse des Docks d'après des relevés effectués en 2008 (la légende en couleur est exprimée en m CMH)

### ***3.2 La Darse des Docks : dynamique de remplissage et validation du site***

#### **3.2.1 Campagnes de carottages : brève description des opérations**

La réalisation de carottages longs et non perturbés dans le bassin des Docks était une étape préalable clé du projet RHAPSODIS. La stratégie générale a consisté à prélever plusieurs carottes, les plus longues possibles, en un site du bassin le mieux protégé des perturbations physiques. Pour cela, deux sites ont été d'abord soigneusement sélectionnés en bordure est de la darse grâce aux documents d'archives fournis par le GPMR et après une mission de reconnaissance en zodiac confirmant l'existence d'une vase molle, mais d'épaisseur réduite en surface.

Deux types de carottiers ont été employés :

- l'un gravitaire (tube de section rectangulaire 10x7 cm et de longueur 2,5 m) doté d'une gaine PVC amovible pour préserver les vases molles superficielles et la partie supérieure de la vase consolidée ;

- l'autre à percussion (tube alu de 8 cm de diamètre et de longueur 6 m, puis 9 m) adapté pour traverser la vase molle de surface et prélever avec soin la colonne sédimentaire de vase consolidée.

Le premier défi important à relever a été d'ordre technologique : construire une plateforme capable de recevoir les deux carottiers et adaptable en débord sur une barge de lamanage. Au plan logistique, il a fallu assurer le positionnement et la stabilité de l'embarcation sur le site pendant la durée d'un carottage, en prenant en compte les courants de marée, et opérer avec des hauteurs d'eau optimales pour les deux types de carottiers (Figure 7)



Figure 7. Photo de la barge Lamatrans I utilisée pour la campagne de carottage en 2008 (C. Dubrulle-Brunaud)

Deux campagnes ont été organisées.

La première et principale mission de prélèvement (du 7 au 9 avril 2008) a conduit à carotter deux sites distincts (sites 1 et 2). Les longueurs et qualité des carottes du site 2 y étant meilleures, il fut sélectionné (Figure 8). Malgré tout, après analyses, le temps préservé de sédimentation ayant été montré insuffisant par rapport à la durée escomptée ( $\approx 50$  ans), il a été décidé de la compléter (contrat RHAPSODIS prolongé en 2010-2011) par une nouvelle campagne. Avant celle-ci, une reconnaissance géophysique (sismique de type Boomer de marque Seistec-IKB) de l'ensemble de la darse a eu lieu à bord d'un Zodiac par pleine mer de vives-eaux (équipement UMR M2C Caen, maîtrise d'œuvre : B. Tessier) avec pour objectif d'investiguer une zone où le remplissage sédimentaire serait éventuellement plus épais. Elle s'est révélée infructueuse, car le gaz piégé dans la vase organique fait écran à la propagation des ondes acoustiques et le plancher du remplissage sédimentaire

n'a pu être identifié. Le site de carottage de la campagne de 2008 a donc été confirmé, avec un tube plus long de 3 m.



Figure 8. Localisation des sites de carottages des campagnes de 2008 (site 2 retenu) et de 2010 (site3)

La seconde campagne a donc eu lieu le 14 juin 2010 avec le seul carottier à percussion et un tube plus long (9 m) sur le site 1. De nouvelles contraintes fortes sont apparues du fait d'une nouvelle embarcation (Lamatrans II) avec, de plus, un fort tirant d'eau (accès plus délicat) et surtout de plus grand tirant d'air (forte prise au vent), qui ont obligé son amarrage à des coffres (Figure 9) ; ceci nous a contraint à un décalage du carottage de 50 m environ vers le nord (Figure 8).



Figure 9. Photo de la barge Lamatrans II utilisée pour la campagne de carottage en 2010 (C. Dubrulle-Brunaud)

Pour la campagne de 2008, une tente en vinyle a été construite dans un hangar mis à disposition par le GPMR à proximité immédiate du site pour garantir la non-contamination des échantillons au cours des différentes manipulations réalisées immédiatement après le carottage. Dès la fin de la campagne de 2010 en soirée, les carottes ont été ouvertes et sous-échantillonnées au laboratoire M2C de Mont-Saint-Aignan et ce, durant toute la nuit.

Du fait des contraintes résumées ci-dessus, les campagnes ont nécessité 23 opérateurs sur le terrain ; 6 opérateurs en laboratoire pour le conditionnement des sous-échantillons les plus exigeants en termes d'archivage se sont relayés pour produire une collection d'échantillons de qualité optimale au regard des analyses auxquelles ils sont destinés : analyses sédimentologiques, analyses de contaminants métalliques, organiques, de radionucléides et analyses microbiologiques.

Au total, douze carottes ont été prélevées dans la Darse des Docks, parmi lesquelles figurent des prélèvements (carottes et/ou échantillons) pour d'autres programmes que le seul projet RHAPSODIS : projets ISOMET et TOXSEINE.

Les détails du déroulement des deux campagnes de 2008 et 2010, et surtout des opérations d'ouverture et d'échantillonnages des carottes ont fait l'objet de deux comptes-rendus communiqués aux partenaires et diffusés auprès du GIP Seine-Aval (ils sont joints en annexe).

### 3.2.2 Description du matériel de remplissage

Parmi les carottes prélevées en 2008, celles du site 2 ont été sélectionnées pour des raisons techniques (plus grande longueur, absence de déformation du tube) pour poursuivre le projet. Deux carottes jumelles (c'est-à-dire au même point) ont été échantillonnées pour l'ensemble des analyses ; elles sont nommées 2VC1/2VC2 (1<sup>ère</sup> et 2<sup>ème</sup> carottes de vase consolidée du site 2) et 2VM1/2VM2 (1<sup>ère</sup> et 2<sup>ème</sup> carottes de vase molle du site 2).

La description macroscopique des carottes à l'ouverture (log lithologique) montre un sédiment fin tout au long de l'enregistrement sédimentaire correspondant à une vase et à des sables très fins. La texture est globalement homogène mais grumeleuse et ponctuée de nombreux macro-vides probablement imputables à des dégazages ; elle est comparable au faciès sédimentaire du sédiment carotté sur la vasière d'Oissel (Deloffre, 2005 ; Deloffre *et al.*, 2005). Dans le détail, de fines et subtiles lamines sont visibles à l'ouverture des carottes, notamment à la faveur de contrastes de couleurs (+ ou - sombres) qui tendent à s'estomper par oxydation à l'air après quelques heures. Le montage photographique tronçon par tronçon et le log lithologique établi à l'ouverture des carottes de référence

montrent les fines laminations de passées sablo-silteuses (Figure 10). A noter une forte odeur d'hydrocarbures se dégageant à l'ouverture des carottes, comme observé dans le cas des sédiments de la vasière d'Oissel (Bally et al., 2002). Les caractéristiques macroscopiques étaient les mêmes pour la carotte longue ouverte le jour de la campagne de 2010 (3VC2), sans variation générale de la nature du sédiment.

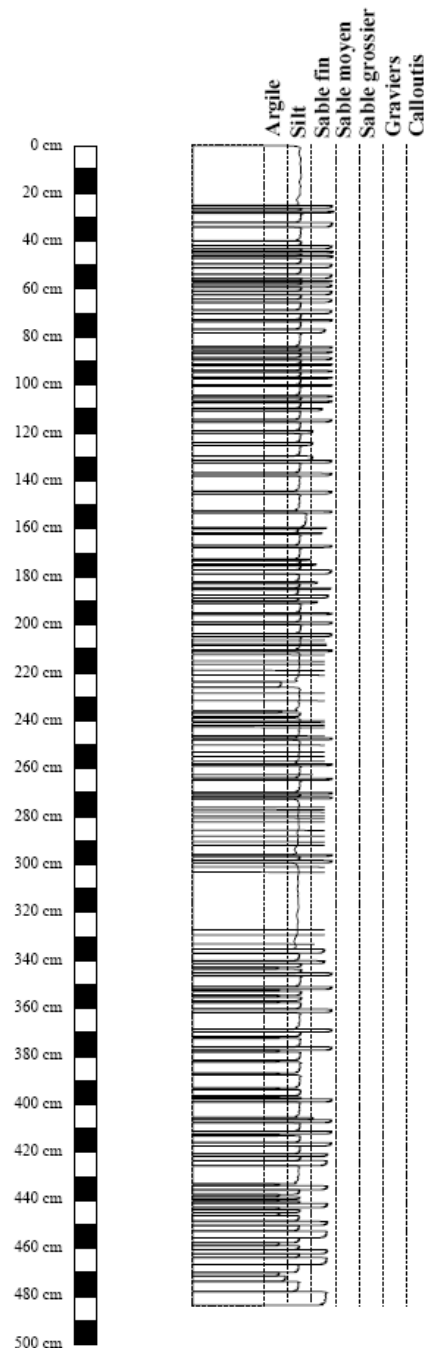


Figure 10. Log descriptif de la carotte 2VC2 effectué lors de l'ouverture de la carotte

Les analyses sédimentologiques (teneur en eau, calcimétrie, granulométrie et identification des cortèges de minéraux argileux) ont été effectuées au Laboratoire Morphodynamique Continentale et Côtière (UMR CNRS 6143). Elles portent sur des



échantillons moyens de tronçons de 5 cm d'épaisseur prélevés après l'ouverture des carottes.

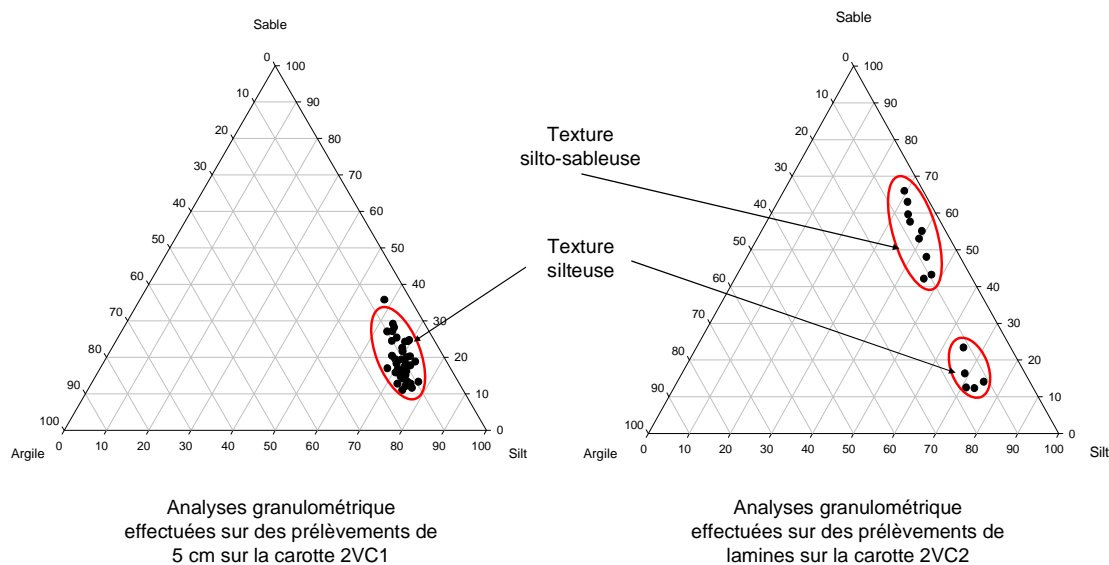
La teneur en eau (exprimée comme le rapport de la masse de l'eau contenue à la masse de sédiment brut) a été mesurée sur les carottes 2VM1, 2VC1 et sur 5 échantillons de la base de la carotte 3VC2. Les valeurs sont plus élevées dans la vase molle de surface (60 à 75 % sur 40 cm environ) pour se stabiliser autour de 55 % jusqu'à 450 cm, diminuant à 45% au-delà de 500 cm (Figure 13). Ceci est révélateur d'une vase silteuse, consolidée dans son ensemble et dont l'état de consolidation croît avec la contrainte effective verticale liée au poids du squelette solide du sédiment sus-jacent. Les analyses de teneurs en eau ayant été effectuées de façon systématique sur tous les échantillons des carottes 2VM1 et 2VC1, elles ont contribué à corréliser les deux carottes l'une par rapport à l'autre. Les échantillons prélevés sur le tronçon de chevauchement de la partie inférieure des carottes 2VC1 et 3VC2 a également permis de les relier.

Des mesures de teneurs en carbonates ont été effectuées sur 12 échantillons répartis sur la longueur de la carotte 2VC2 par la méthode du calcimètre de Bernard. Elles varient entre 25 et 37 % ; la plupart des échantillons ayant des teneurs autour de 30 %, caractéristique des sédiments de la Seine estuarienne (Lesueur et al., 1999).

Les analyses granulométriques ont été effectuées (6 échantillons de la carotte 2VM1, 39 de la carotte 2VC1 et 24 de la base de la carotte 3VC2) par diffraction laser avec un granulomètre de type Coulter LS 230 (appareil donnant un spectre granulométrique pour des tailles comprises entre 0,4 et 2000  $\mu\text{m}$ ). Les données ont été ensuite traitées par le logiciel LS32, puis exportées sous Excel où elles ont été converties en unité Phi, pour le calcul des différents paramètres granulométriques : grain moyen, médiane, tri,... selon les formules de Folk et Ward de 1957 (Chamley, 2004). La granulométrie des échantillons des carottes 2VM1 et 2VC1 se révèle relativement constante sur toute la longueur de carotte avec une médiane et un grain moyen autour de 20  $\mu\text{m}$ , qui diminue légèrement à la base de la carotte (17 $\mu\text{m}$ ). Quelques niveaux sont légèrement plus grossiers autour de 100 et 260 cm de profondeur. Le classement des particules est mauvais pour l'ensemble des échantillons voire très mauvais pour quelques-uns d'entre eux. Les échantillons comportent entre 5 et 15 % de particules de la taille des argiles et 10 à 35 % de sables, le reste étant composé de particules de la taille des silts, ce qui est cohérent avec la nature très silteuse des sédiments de la Seine estuarienne (Deloffre et al., 2005 ; Dubrulle-Brunaud, 2007 ; Lesourd, 2000). La granulométrie révèle donc un sédiment aux éléments de taille variée (argile, silt, sable) mais en proportions peu changeantes tout au long de la colonne sédimentaire.

Sur la carotte 3VC2, la médiane est plus faible, autour de 12  $\mu\text{m}$ , ce qui s'explique par des teneurs plus faibles de sables (2 à 16 %) et de plus fortes teneurs de particules de la taille des argiles (17 à 23 %).

Quelques lamines de la carotte 2VC2, choisies parmi les plus contrastées, ont fait l'objet d'un prélèvement à l'aide d'une spatule fine pour être analysées en granulométrie et déceler des variations fines de la texture sédimentaire (Figure 11).



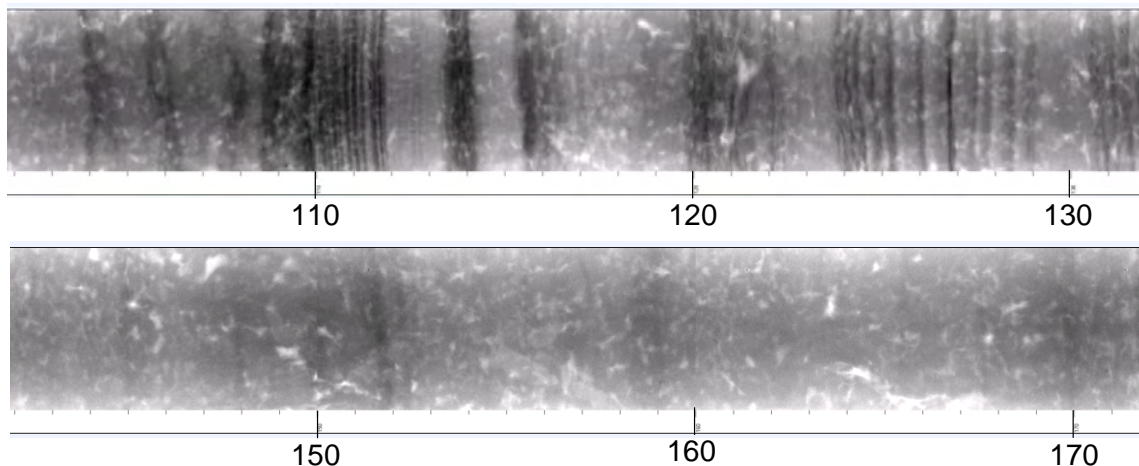
**Figure 11. Diagramme ternaire des textures pour deux types d'échantillonnage réalisé sur les carottes 2VC1 et 2VC2**

Les échantillons prélevés sur les tranches de 5 cm sont tous de texture silteuse, alors que certaines lamines présentent des différences : si certains sont silteux, d'autres ont une texture plus grossière, silto-sableuse. Alors que les échantillons des tranches de 5 cm présentent peu de variations des paramètres granulométriques courants, les échantillons des lamines ont un grain moyen et une médiane plus variables, entre 15 et 90  $\mu\text{m}$ , permettant de distinguer une texture silto-sableuse et une texture silteuse.

Les carottes 2VC2, 2VM2 et 3VC2 ont subi une analyse radiographique (SCOPIX®) effectuée à l'université de Bordeaux I (UMR CNRS 5805 EPOC), technique d'analyse non destructive qui fournit une image de la carotte (Migeon et al., 1999) sur 256 niveaux de gris en fonction de la densité du sédiment. L'analyse s'effectue sur une plaquette d'un demi-centimètre d'épaisseur découpée sur la surface d'une demi-carotte (cas de 2VM2). Toutefois, vu la texture particulière du sédiment étudié (vase très collante, grumeleuse et contenant de nombreux macro-vides), la radiographie a été réalisée sur une demi-carotte complète de 2VC2. L'image SCOPIX® permet la mise en évidence des variations de faciès sédimentaires, des structures sédimentaires, de l'activité biologique... Les images présentées sont des positifs de RX ; les niveaux les plus sombres correspondent aux niveaux

les plus grossiers (les plus denses) et les plus clairs correspondent aux niveaux les plus fins (les plus poreux).

Si les carottes prélevées dans la Darse des Docks présentent toutes des profils relativement homogènes, les analyses radiographiques mettent en évidence une lamination fine et subtile qui correspond aux très fines structures visibles peu après l'ouverture des carottes (Figure 12).



**Figure 12. Extraits représentatifs du profil SCOPIX® de la carotte 2VC2 (les profondeurs sont indiquées en cm)**

Pour l'identification et la semi-quantification des minéraux argileux contenus dans les sédiments, 12 niveaux répartis sur la carotte 2VC2 et 3 échantillons de la base de la carotte 3VC2 ont été analysés. On note une variation des cortèges argileux le long du profil : à la base de la colonne sédimentaire, la kaolinite est le minéral principal (50 %) la proportion de smectites étant faible (25 %) alors qu'en surface les smectites prédominent (70%) largement le spectre complété par la kaolinite (20 %). L'illite est en faible proportion, mais diminue de la base (15 %) vers la surface (6 %).

### 3.2.3 Assemblage des tronçons carottés

Les différentes carottes prélevées dans la Darse des Docks doivent aboutir à un seul et même profil, résultant de leur assemblage. Le carottage court de vase molle a préservé la vase de surface, au contraire du carottage long ; il est donc nécessaire de faire le lien entre ces deux carottes pour obtenir un profil unique et complet de l'enregistrement sédimentaire.

De plus, le carottage effectué en juin 2010 avec un tube plus long a permis d'obtenir un enregistrement sédimentaire plus complet. De nombreuses analyses ayant déjà été

effectuées sur les carottes de 2008 ; seule la base de la carotte 3VC2 de 2010 a fait l'objet d'analyses, avec recouvrement significatif entre les deux carottes.

### 3.2.3.1 Calage des carottes 2VM1 et 2VC1

La corrélation entre les carottes 2VM1 et 2VC1 s'est effectuée grâce aux mesures de teneurs en eau. Les teneurs en eau sont les seules analyses réalisées sur tous les tronçons consécutifs de 5 cm, la comparaison entre VM et VC est donc facilitée.

Deux paramètres sont à prendre en compte afin de faire correspondre les carottes 2VM1 et 2VC1 :

- la perte de sédiment de surface engendrée par le carottage à percussion.
- le tassement du sédiment engendré également par le carottage à percussion.

Nous émettons l'hypothèse très vraisemblable que le prélèvement de la carotte 2VM1 n'a engendré aucune perturbation (pas de perte, ni tassement). Le zéro, délimitant l'interface eau/sédiment, est donc placé au sommet de la carotte 2VM1. La modification des profondeurs sera donc appliquée à la carotte 2VC1.

Après différents essais, il apparaît :

- une perte de 40 cm de sédiment en surface de la carotte 2VC1.
- un tassement de 32 % de la carotte 2VC1 par rapport à la carotte 2VM1.

La solution la plus adaptée pour faire correspondre les carottes 2VM1 et 2VC1 est donc l'application de la formule suivante aux profondeurs (en cm) de la carotte 2VC1 :

$$(\text{Profondeur } 2VC1)_{\text{réelle}} = (\text{Profondeur } 2VC1)_{\text{initiale}} + ((\text{Profondeur } 2VC1)_{\text{initiale}} \times 0,32) + 40$$

Il en résulte l'ajustement des profondeurs pour le profil des teneurs en eau présenté sur la Figure 13. Le tassement de 32 % est appliqué seulement à la partie commune des carottes 2VC1 et 2VM1 ; il est ensuite amorti progressivement sur les échantillons suivants à raison de -2 % tous les 5 cm. Le décalage de 40 cm est appliqué à l'ensemble de la carotte 2VC1.

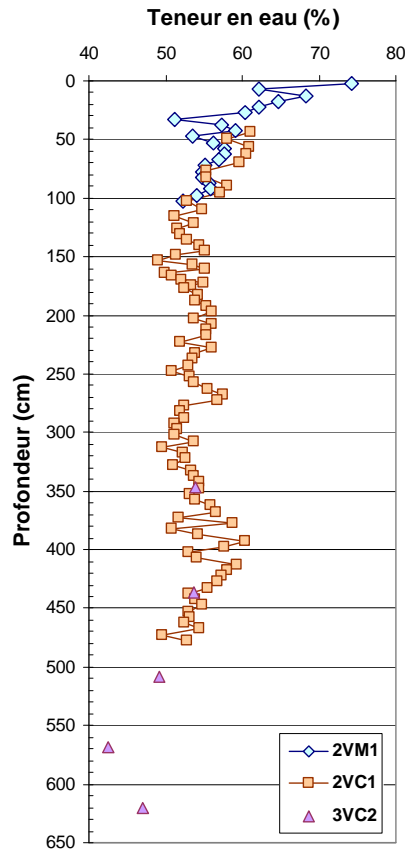


Figure 13. Teneur en eau des carottes 2VM1, 2VC1 et 3VC2 après corrections de la profondeur sur la carotte 2VC1 et 3VC2

L'ajustement des carottes VC et VM semble optimal, en ce qui concerne les teneurs en eau, pour un tassement de 32 % de la VC par rapport à la VM, et une perte de 40 cm sur la VC. En revanche, si on applique cette correction à l'ensemble des analyses (éléments stables et radionucléides), on s'aperçoit que le calage est tout à fait correct sur certains éléments stables mais moins bon sur d'autres. Cela peut s'expliquer par différentes raisons :

- du fait du tassement des sédiments sur la carotte 2VC1, un prélèvement de 5 cm sur 2VC1 correspond à un prélèvement de 6,5 cm sur 2VM1, ce qui lisse le signal sur 2VC1.
- les échantillons de 2VC1 et 2VM1 ne sont certainement pas en phase (Figure 14), ce qui peut engendrer un léger décalage des maxima et minima.
- les analyses chimiques n'ont pas forcément été faites sur des niveaux similaires (environ un échantillon de 5 cm de hauteur a été analysé tous les 15 cm sur chacune des carottes).

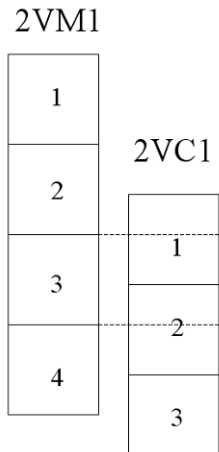


Figure 14. Biais lié à la résolution verticale de sous échantillonnage pour la mise en correspondance des carottes 2VM1 et 2VC1.

Pour ces différentes raisons, l'ajustement mis en place grâce aux mesures de teneurs en eau est conservé.

Notons par ailleurs, que l'analyse des images SCOPIX® par des techniques de traitement de signal effectuée sur deux carottes jumelles aux carottes 2VM1 et 2VC1, indique également un tassement d'environ 30 % (Vrel, 2009).

### 3.2.3.2 Calage des carottes 2VC1 et 3VC2

La corrélation entre les carottes 2VC1 et 3VC2 est effectuée essentiellement par les analyses des éléments stables avec une longueur de recouvrement de 170 cm. La mise en correspondance des analyses effectuées sur les carottes 2VC1 et 3VC2 permet d'évaluer la correction à imposer aux profondeurs de la carotte 3VC2. Tout comme sur la carotte 2VC1, la carotte 3VC2 a subi une perte de 40 cm de sédiment de surface, on ajoute donc 40 cm aux profondeurs relevées sur la carotte. Les carottes 2VC1 et 3VC2 ont été prélevées avec le même carottier, il n'y a donc pas de différence de tassement de sédiment entre ces deux carottes. La correction de 40 cm est donc la seule imposée à la carotte 3VC2.

Une fois ces corrélations effectuées, les profondeurs sont corrigées pour obtenir un profil unique de chaque élément analysé valable pour le site de la Darse des Docks.

### 3.2.4 Construction d'un modèle d'âge

Les carottes prélevées dans la Darse des Docks ont fait l'objet de nombreuses analyses sédimentaires et géochimiques réunies sur un profil unique. Ce dernier a fait l'objet d'une datation présentée ci-dessous. Plusieurs moyens ont permis cette datation : du calage par chronologie absolue aux proxies permettant d'établir une chronologie relative. Les repères chronologiques ont été fournis en majorité par les analyses de radionucléides, complétées

par l'étude de cartes bathymétriques historiques, l'analyse des images SCOPIX® par traitement du signal appliquée à la sédimentation, ainsi que la comparaison avec les données d'une carotte prélevée en amont du barrage de Poses, elle-même datée (Vrel, données non publiées).

### 3.2.4.1 Evolution de la bathymétrie au point de carottage par l'étude de cartes bathymétriques

Huit cartes bathymétriques du Port de Rouen (GPMR) ont permis de calculer des taux de sédimentation au point de carottage au cours de différentes périodes de temps (Tableau 1).

**Tableau 1. Données bathymétriques relevées sur les cartes au site 2 et taux de sédimentation associés**

Intervalle de temps	Evolution de la bathymétrie (m CMH)	Taux de sédimentation (m.an <sup>-1</sup> )
1931-1975	0,1 -0,6	1
1975-1985	0,6 -2,7	21
1985-1986	2,7 -2,9	20
1986-1987	2,9 -3,3	40
1987-1988	3,3 -3,3	0
1988-1989	3,3 -3	-30
1989-1992	3 -4,2	40
1992-1994	4,2 -4,6	20
1994-1997	4,6 -4,3	-10
1997-2000	4,3 -4,1	-7
2000-2008	4,1 -4,8	9

Les taux de sédimentation établis grâce à ces cartes sont approximatifs, car :

- les relevés les plus anciens ont été acquis au plomb suiffé, technique moins précise que le sondeur actuellement utilisé.
- les taux de sédimentation ne prennent pas en compte le tassement naturel du sédiment. Ainsi, dans le tableau 1, les taux de sédimentation négatifs pour la période récente peuvent correspondre à une érosion et/ou à un tassement du sédiment. D'après les connaissances acquises sur le site, l'absence de sédimentation dans la Darse des Docks est peu probable.

Ces cartes ont permis de repérer des périodes d'émersion à partir de 1992 (Vrel, 2009).

Etant donnée l'imprécision des mesures pour les données les plus anciennes, seules les valeurs suivantes sont utilisées pour la suite de ce travail de datation :

- le taux de sédimentation est de l'ordre de  $12,5 \text{ cm.an}^{-1}$  entre 1975 et 2008.
- le tassement sous poids propre du sédiment est amplifié par le phénomène d'émerision à partir de 1992 qui augmente la contrainte effective verticale au sein du sédiment.

#### 3.2.4.2 *Mise en évidence de repères chronologiques*

Des repères de datation, essentiellement fournis par les analyses d'activité de radionucléides artificiels, ont été décelés. Ces repères sont présentés dans le tableau 2.

Le sommet de la carotte de vase molle correspond à la date de son prélèvement (2008,3), le carottier d'interface n'engendrant pas de perte de sédiment en surface.

Un pic de  $^{137}\text{Cs}$  engendré par les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl est visible à 202,5 cm de profondeur. Le passage entre les dépôts de particules sur le bassin versant et leur transfert dans les sédiments de la Seine est considéré comme "instantané", ce pic date donc du maximum de concentration du  $^{137}\text{Cs}$  dans l'air en France suite à l'accident, soit au 1<sup>er</sup> mai 1986,3 (Irsn, 2006).

Entre 1954 et 1990, le CEA de Fontenay-aux-Roses (Commissariat à L'Energie Atomique) a rejeté du plutonium radioactif dans la Seine ; ces rejets sont en forte diminution à partir de 1980. Le maximum des rejets a eu lieu au cours de l'année 1975 ; c'est à cette période également que le ratio  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  est le plus fort, proche de 4. A 382,5 cm, on observe dans le profil, un maximum de  $^{238}\text{Pu}$  à  $1440 \text{ mBq.kg}^{-1}$ , avec un ratio  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  de 3,6. On date donc ce pic à 1975,5.

Dans le bas du profil, on observe de fortes valeurs de  $^{137}\text{Cs}$  correspondant aux retombées des essais nucléaires s'étalant de 1954 à 1980 avec des maxima au début des années 1960 (Renaud and Roussel-Debet, 2008). Ce profil ne retranscrit pas la totalité des retombées des essais nucléaires : ils augmentent habituellement de façon progressive dans le temps ; or ici, l'activité de  $^{137}\text{Cs}$  passe de  $0 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à 593,5 cm de profondeur, à  $23 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à 588,5 cm de profondeur. Une partie de l'enregistrement sédimentaire apparaît tronqué, soit artificiellement (par dragage), soit par érosion naturelle, provoquant ainsi une perte d'information.



Tableau 2. Repères chronologiques sur le profil reconstitué de la Darse des Docks.

Années	Profondeur du profil (cm)	Evènements
2008,3	0	Date de prélèvement de la carotte
1986,3	202,5	Retombée atmosphérique de l'accident de Tchernobyl (max $^{137}\text{Cs}$ )
1975,5	382,5	Rejets dus aux activités du CEA/Fontenay-aux-Roses (max $^{238}\text{Pu}$ )
1963	≈ 590	Retombées atmosphériques des essais nucléaires (max de $^{137}\text{Cs}$ ) - Signal tronqué par une érosion naturelle ou artificielle

Une étude menée sur les phosphogypses (Dillies, 2010) a mis en évidence des valeurs maximales de rejets en 1974. La composition en éléments traces des phosphogypses étant variable, tous les contaminants liés à ces rejets ne montrent pas systématiquement des valeurs maximales à la même année. Cependant, les valeurs des éléments stables mesurés et présents dans les phosphogypses montrent toutes des maxima autour de 400 cm de profondeur, ce qui est cohérent avec les valeurs indiquées dans le tableau ci-dessus.

#### 3.2.4.3 Etude des cyclicités présentes dans la sédimentation par l'analyse du signal

Les carottes prélevées dans la Darse des Docks ont fait l'objet de radiographies aux rayons X (voir partie 3.3). Les niveaux de gris des images SCOPIX® ont été extraits afin de servir de support à une analyse en ondelettes mettant en relief les différentes cyclicités présentes dans le signal (Vrel, 2009). De cette étude, ressortent les points suivants :

- Une cyclicité a été repérée tous les 12,5 cm. Elle correspond au cycle hydrologique annuel : le taux de sédimentation est donc d'environ  $12,5 \text{ cm.an}^{-1}$ .
- Le taux de sédimentation moyen est moins important au cours de la période la plus récente. L'analyse en ondelettes met en évidence un cycle hydrologique dont la période varie entre 7 et 17 cm, voire ponctuellement de 6 cm pour la période 1990-2008.

L'analyse du signal montre donc des résultats en accord avec les repères chronologiques identifiés. Cette analyse permet d'affirmer qu'il existe une cyclicité dans la sédimentation marquant le cycle hydrologique, et par conséquent, que les taux de sédimentation varient peu d'une année sur l'autre. Il semble donc justifié de choisir un taux de sédimentation constant entre les différents repères chronologiques fixés.

### 3.2.4.4 Datation de la partie inférieure de la carotte de la Darse des Docks en utilisant le rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ enregistré dans la carotte de Bouafles

La datation de la partie inférieure du profil de la Darse des Docks a été réalisée en comparant le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  des échantillons de la Darse des Docks avec d'autres échantillons datés sur une autre carotte prélevée en amont de Poses (Vrel, données non publiées). Ce rapport permet de s'affranchir des variations granulométriques d'un site à l'autre, mais également entre deux échantillons d'un même site.

Les dates établies par cette méthode ne sont pas directement compatibles avec les activités de  $^{137}\text{Cs}$  mesurées en bas du profil. Effectivement, les activités de  $^{137}\text{Cs}$  indiquent que le maximum des retombées des essais nucléaires, daté de 1963, n'a pas été enregistré ; or d'après la comparaison faite des rapports  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ , l'année 1967 et l'année 1960 (dates encadrant le maximum des essais nucléaires) sont toutes deux enregistrées. On en conclut la présence de deux hiatus sédimentaires dans le profil de la Darse des Docks.

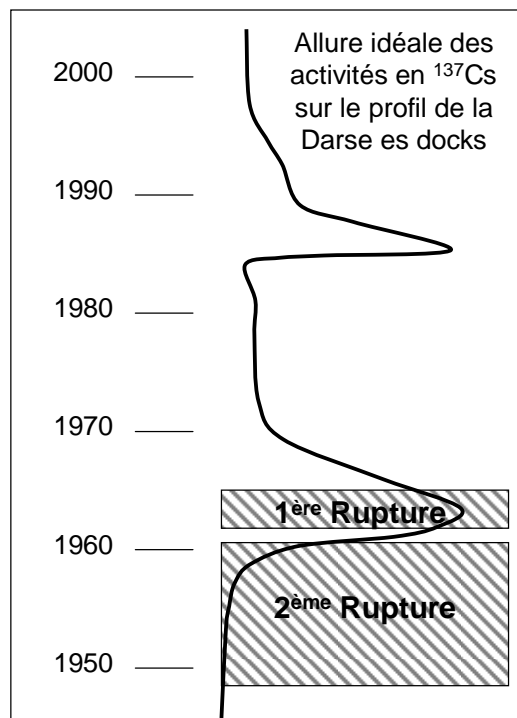


Figure 15. Schéma illustrant les ruptures (hiatus) dans la sédimentation sur le site de la Darse des Docks.

La limite supérieure du premier hiatus est placée au cours de l'année 1965. L'historique des dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  en France permet de mettre en évidence un pic de  $^{137}\text{Cs}$  durant l'année 1962 (Figure 15). Ce pic est moins important que celui de l'année 1963 mais il est tout de

même net. Entre le premier et le deuxième hiatus, les valeurs de  $^{137}\text{Cs}$  sont assez élevées (autour de  $30 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ); il peut s'agir du césium déposé au cours de cette année 1962, en tout ou partie. La limite inférieure du 1<sup>er</sup> hiatus est donc fixée au cours de l'année 1962, soit 1962,5.

Le deuxième hiatus est visible entre 1960 et 1954 : pendant cette période, le césium disparaît brutalement du profil, l'année 1954 correspondant à l'apparition du  $^{137}\text{Cs}$  dans l'environnement n'est pas identifiable. De même que pour le premier, ce deuxième hiatus ne comprend pas obligatoirement la totalité de la période 1949-1960.

La deuxième rupture doit être proche de l'année 1962 puisque les valeurs relativement élevées de  $^{137}\text{Cs}$  passent à une activité nulle. La limite supérieure de la rupture est placée à 1961. Il est impossible de connaître la limite inférieure de cette rupture, la seule indication étant son antériorité à l'année 1954, cette dernière date lui est donc arbitrairement attribuée.

#### 3.2.4.5 *Modèle d'âge du profil de la Darse des Docks*

Deux grandes périodes de sédimentation ont été établies sur le site d'étude de la Darse des Docks : de 1960 à 1990, la sédimentation est soutenue ( $\approx 18 \text{ cm.an}^{-1}$ ) ; de 1990 à 2008, elle ralentit du fait du comblement progressif du bassin (Figure 16).

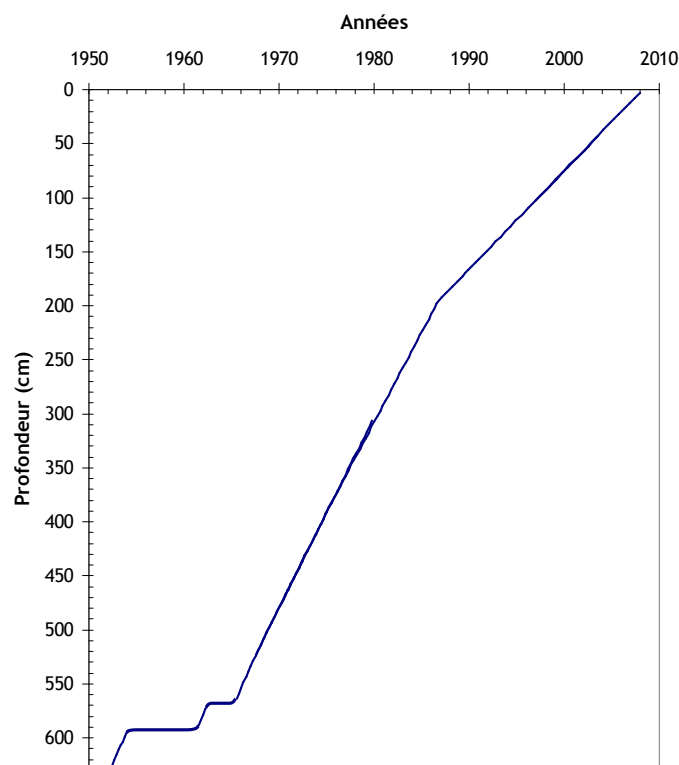


Figure 16. Evolution de la sédimentation au cours du temps sur le site de la Darse des Docks

En conclusion, l'enregistrement sédimentaire de la Darse des Docks semble très bien conservé de 1965 à 2008 mais est perturbé avant 1965 par la présence de hiatus. Les analyses radiologiques couplées aux données historiques ont permis d'identifier ces périodes manquantes dans l'enregistrement sédimentaire.

### 3.2.5 Conclusion : validation du modèle d'âge

Une fois la carotte datée, l'échelle des profondeurs est transposée en échelle de temps. Ce modèle d'âge obtenu et validé, nous travaillerons essentiellement avec l'échelle de temps dans la suite de ce rapport.

## ***3.3 La Darse des Docks : quantification de la contribution des forçages par traitement du signal des images SCOPIX®***

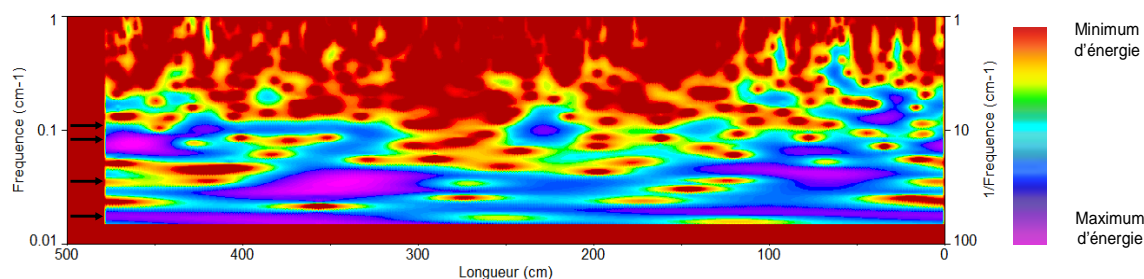
Massei et al. (2011) ont montré que les variations des débits de la Seine sont régies par des cyclicités : une cyclicité annuelle (cycle hydrologique de la Seine), des cyclicités à plus basse fréquence fonction de l'indice climatique NAO (North Atlantic Oscillation). Ces cyclicités se retrouvent-elles également enregistrées dans la sédimentation de l'estuaire de la Seine au travers des débits ? La sédimentation est-elle exclusivement sous l'influence des variations de débits de la Seine ?

### 3.3.1 Rappels méthodologiques

A partir des niveaux de gris de l'image SCOPIX® fournissant une mesure tous les 0,13 mm (signal haute fréquence), il a été possible d'effectuer une analyse du signal permettant de mettre en évidence les différentes cyclicités qui régissent ce signal. Une analyse en ondelettes a été appliquée au signal acquis sur la carotte 2VC2. La transformée en ondelettes permet de décomposer un signal en une somme d'ondes de longueur finie localisées dans le temps. Le spectre en ondelettes montre visuellement la puissance d'une fréquence à un instant donné et, par conséquent, permet d'analyser ses variations dans le temps (instationnarités). A partir de ce type d'analyse, il est possible d'extraire le signal de chaque bande de fréquence voulue. L'importance relative de chaque bande de fréquence extraite du signal a été calculée. Pour cela, la variance de la bande de fréquence sélectionnée a été rapportée à la variance totale du signal.

### 3.3.2 Forçages naturels

Différentes cyclicités sont mises en évidence sur cette analyse (Figure 17) :  $0,11 \text{ cm}^{-1}$ ,  $0,07 \text{ cm}^{-1}$ ,  $0,03 \text{ cm}^{-1}$ ,  $0,02 \text{ cm}^{-1}$ .



**Figure 17.** Analyse en ondelettes effectuée sur les niveaux de gris de la carotte 2VC2 après traitement des données par un filtre de Savitzky-Golay

Le cycle hydrologique correspond aux cyclicités  $0,11 \text{ cm}^{-1}$  et  $0,07 \text{ cm}^{-1}$ . Effectivement, le taux de sédimentation diminuant sur la période la plus récente (1992-2008), la fréquence augmente.

Les deux autres cycles correspondent à des cycles climatiques identifiés par une comparaison aux travaux de Massei et al. (2011) effectuée sur les débits de la Seine. Il s'agit des cycles de la NAO (North Atlantic Oscillation) dont les périodes sont de 2-3 ans et 5-7 ans. On admet donc ici que les grandes tendances climatiques visibles dans les débits de la Seine se retrouvent dans la sédimentation associée avec des représentativités importantes. A cet endroit abrité de l'estuaire fluvial, le débit a donc une influence majeure sur la sédimentation, et les cycles climatiques influençant le débit sont donc enregistrés et préservés dans la sédimentation.

Cette analyse en ondelettes ne permet pas, a priori, de détecter une cyclicité de marée. En extrayant les hautes fréquences, il a tout de même été possible de détecter des cyclicités à 14 et 28 jours de très faible représentativité, ainsi qu'un cycle à 6 mois fonction des équinoxes. Un cycle de 2 mois de période a également été mis en évidence : aucune explication n'en a été apportée pour le moment.

En conclusion, le débit de la Seine, par l'apport des MES, est le premier facteur dominant la sédimentation. Effectivement, différentes cyclicités présentes dans les débits de la Seine se retrouvent dans la sédimentation : le cycle hydrologique à 21 %, les cycles climatiques à 17 % (dont un lié à la NAO à 4%). La marée ne représente que 1 % de la variance du signal ; celle-ci influe donc certainement sur le remaniement des sédiments mais peu sur les apports. La zone de carottage a été soumise à deux régimes différents au cours du temps : un régime subtidal entre 1931 et 1992 et un régime intertidal en étiage

entre 1992 et 2008. Il semble cependant que, dans les 2 cas, le débit de la Seine soit resté le paramètre majeur dominant la sédimentation.

### 3.3.3 Forçages anthropiques

Les forçages anthropiques n'étant pas réguliers dans le temps, l'analyse du signal ne permet pas de les détecter. Seules des données historiques (plan de dragages, affluence des bateaux, transport des docks...) pourraient donner à cette évaluation.

## 3.4 Reconstitution des apports en contaminants métalliques

Les variations de concentrations en éléments stables, contaminants ou non, que l'on peut observer dans les différents profils présentés ci-après peuvent être d'origine naturelle ou anthropique. La teneur des éléments présents est souvent fonction de la granulométrie de l'échantillon, elle-même en relation avec la teneur en aluminium. Pour s'affranchir de ces variations, toutes les valeurs mesurées sont normalisées à l'aluminium de la façon suivante :

$$E / Al = \frac{E_{\text{échantillon}}}{Al_{\text{échantillon}}}$$

E/Al : concentration de l'élément E normalisée à l'aluminium pour un échantillon donné.

$E_{\text{échantillon}}$  : concentration de l'élément dans l'échantillon.

$Al_{\text{échantillon}}$  : concentration en aluminium dans l'échantillon.

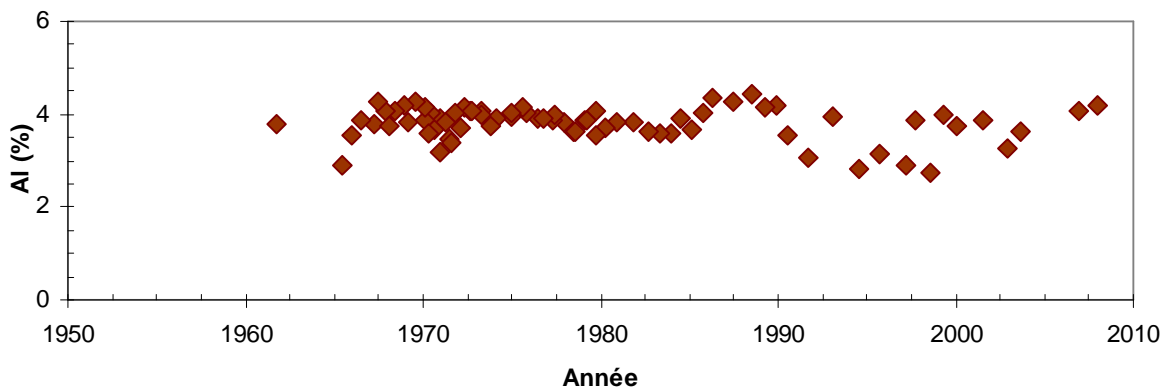


Figure 18. Teneur en aluminium des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps

La Figure 18 montre l'évolution de la teneur en aluminium au cours du temps. La teneur en aluminium des sédiments de la Darse varie entre 2,7 et 4,4%, alors que la teneur en aluminium des shales est de 8,8%. Les sédiments de la Darse sont donc globalement plus grossiers que la référence shale, d'où l'importance de la normalisation à l'aluminium pour effectuer une comparaison à cette référence.

Afin d'évaluer l'ampleur de la contamination des sédiments par certains éléments, on utilise des valeurs de référence : celles correspondant à la composition des shales. La notion de "shales" est un concept permettant d'accéder à la composition chimique moyenne d'un matériel fin susceptible d'être expulsé en domaine marin. Nous avons choisi celles de Turekian et Wedepohl (1961). Le bien fondé de ce choix est discuté ailleurs (Vrel, à paraître).

A partir de cette référence, il est possible de déterminer un Facteur d'Enrichissement (FE) par le calcul suivant :

$$FE = \frac{(E/Al)_{\text{échantillon}}}{(E/Al)_{\text{référence}}}$$

FE : Facteur d'enrichissement de l'élément E pour un échantillon donné.

$(E/Al)_{\text{échantillon}}$  : concentration de l'élément E normalisée à l'aluminium pour un échantillon donné.

$(E/Al)_{\text{référence}}$  : concentration de l'élément E normalisée à l'aluminium pour la référence choisie.

Un élément non enrichi dans l'échantillon par rapport à la référence présentera un FE proche de 1 ; plus le FE d'un élément sera élevé, plus cet élément sera en excès par rapport à la référence choisie.

### 3.4.1 Evolution temporelle des concentrations enregistrées dans les sédiments

#### 3.4.1.1 *Eléments majeurs*

Les éléments majeurs sont les éléments les plus abondants sur Terre ; ils sont souvent exprimés en pourcentage d'oxyde, 5 d'entre eux, SiO<sub>2</sub>, MgO, FeO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CaO représentent à eux seuls 98,6% du manteau terrestre. Les éléments suivants représentent 1,36 % du manteau : Na<sub>2</sub>O, K<sub>2</sub>O, TiO<sub>2</sub>, Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MnO, NiO (Jambon and Thomas, 2009). La composition de la matière particulaire transportée par les fleuves donne une composition de la croûte continentale du bassin-versant. Il a été mis en évidence que des fleuves situés dans des bassins versants aux caractéristiques et aux climats très différents comportent des sédiments aux compositions assez voisines en ce qui concerne les éléments majeurs (Jambon and Thomas, 2009). La composition des éléments majeurs peut légèrement varier au cours du temps, surtout si le bassin versant est vaste ; ces variations sont fonction des sources d'apports des sédiments.

Les résultats d'analyse des éléments majeurs mesurés dans les échantillons de la Darse des Docks sont présentés sur la

Figure 19 sous forme de Facteur d'Enrichissement (FE), pour mieux rendre compte de leur proportion par rapport à un élément naturel. Le bassin versant de la Seine étant très étendu, les petites variations dans la composition des sédiments au cours du temps s'expliquent, comme vu précédemment, par des apports ayant d'origines diverses. Globalement, la majorité des éléments majeurs présentent des teneurs constantes au cours du temps dans les sédiments de la Darse des Docks.

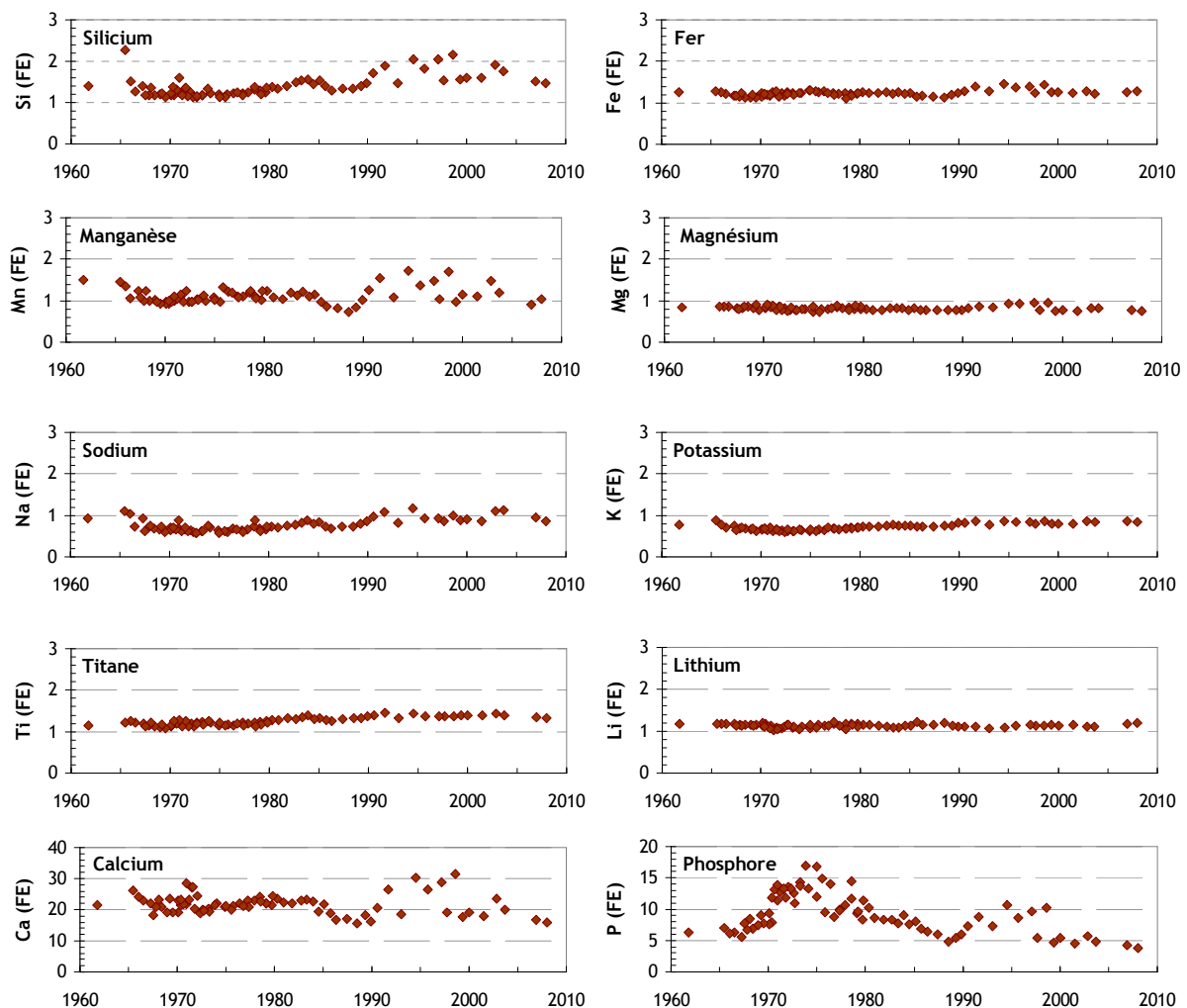


Figure 19. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments majeurs des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps - l'échelle des ordonnées est variable en fonction des éléments.

Sur la Figure 19, on remarque des profils très constants avec un FE proche de 1 pour les éléments suivants : fer, magnésium, potassium, titane. Quelques éléments présentent des teneurs plus variables, avec un FE qui reste proche de 1 ; ces variations restent faibles et localisées sur la période la plus récente (1990-2010) : silicium, manganèse et sodium. Ces variations sont anticorrélées avec le pourcentage de perte au feu (Figure 20) ; plus la



perte au feu est importante, plus il ya de matières organiques dans l'échantillon, et moins il y a de silicium. On verra par la suite que de nombreux éléments présentant cette anti-corrélation à la perte au feu. Le calcium présente le même type de profil que ces 3 derniers éléments, mais avec un FE beaucoup plus fort, autour de 25. Cet enrichissement est totalement naturel, puisque déterminé par la nature carbonatée du bassin versant de la Seine. Enfin, le phosphore, présentent des teneurs très variables, avec un FE variant de 18 autour de 1975, à 5 dans les années 2000. Dans les années 1970, des apports anthropiques sont à l'origine de ces teneurs très élevées ; des rejets de phosphogypses ont effectivement eu lieu dans les années 1970 au niveau de l'agglomération de Rouen (Voir partie 4.2).

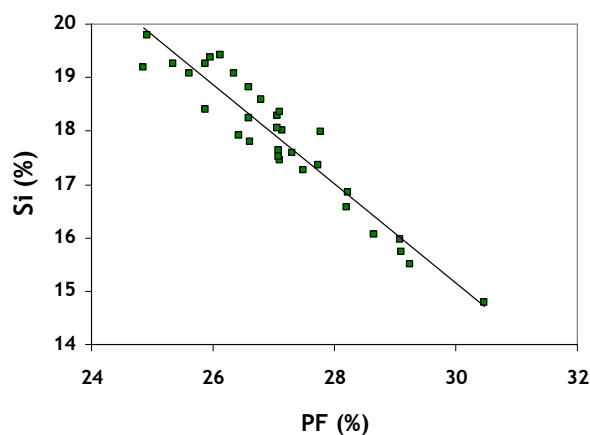


Figure 20. Corrélation entre la teneur de silicium (%) et la perte au feu (%) dans les sédiments carottés de la Darse des Docks.

### 3.4.1.2 *Eléments traces*

Les éléments traces se trouvent en majorité dans la fraction fine des sédiments, d'où l'importance de normaliser les valeurs à l'aluminium, élément dont la teneur est fonction en premier lieu de l'abondance de la fraction argileuse.

Nous avons classé ces éléments en 3 groupes, en fonction de l'allure de leurs évolutions temporelles :

- éléments dont le FE est constant et proche de 1.
- éléments dont le FE décroît depuis 1960, avec des FE très variables.
- éléments présentant un enrichissement dans les années 1970.

Dix éléments présentent des profils constants ; il s'agit du vanadium, du cobalt, du gallium, du germanium, du rubidium, du zirconium, du niobium, du césium, de l'hafnium et du tantale (Figure 21). Les facteurs d'enrichissement sont proches de 1 pour le vanadium, le cobalt, le gallium et le rubidium ; ces éléments présentent donc une

signature de type shale. Le germanium, le zirconium, le niobium, le césium, l'hafnium et le tantale présentent des FE un plus élevés entre 2 et 5 ; ils sont donc enrichis de façon constante dans le temps par rapport à la référence de type shale. Certains d'entre eux, présentent un profil bruité sur la période la plus récente (1990-2010), tout comme certains éléments majeurs. Il s'agit du cobalt, du germanium, du zirconium, de l'hafnium.

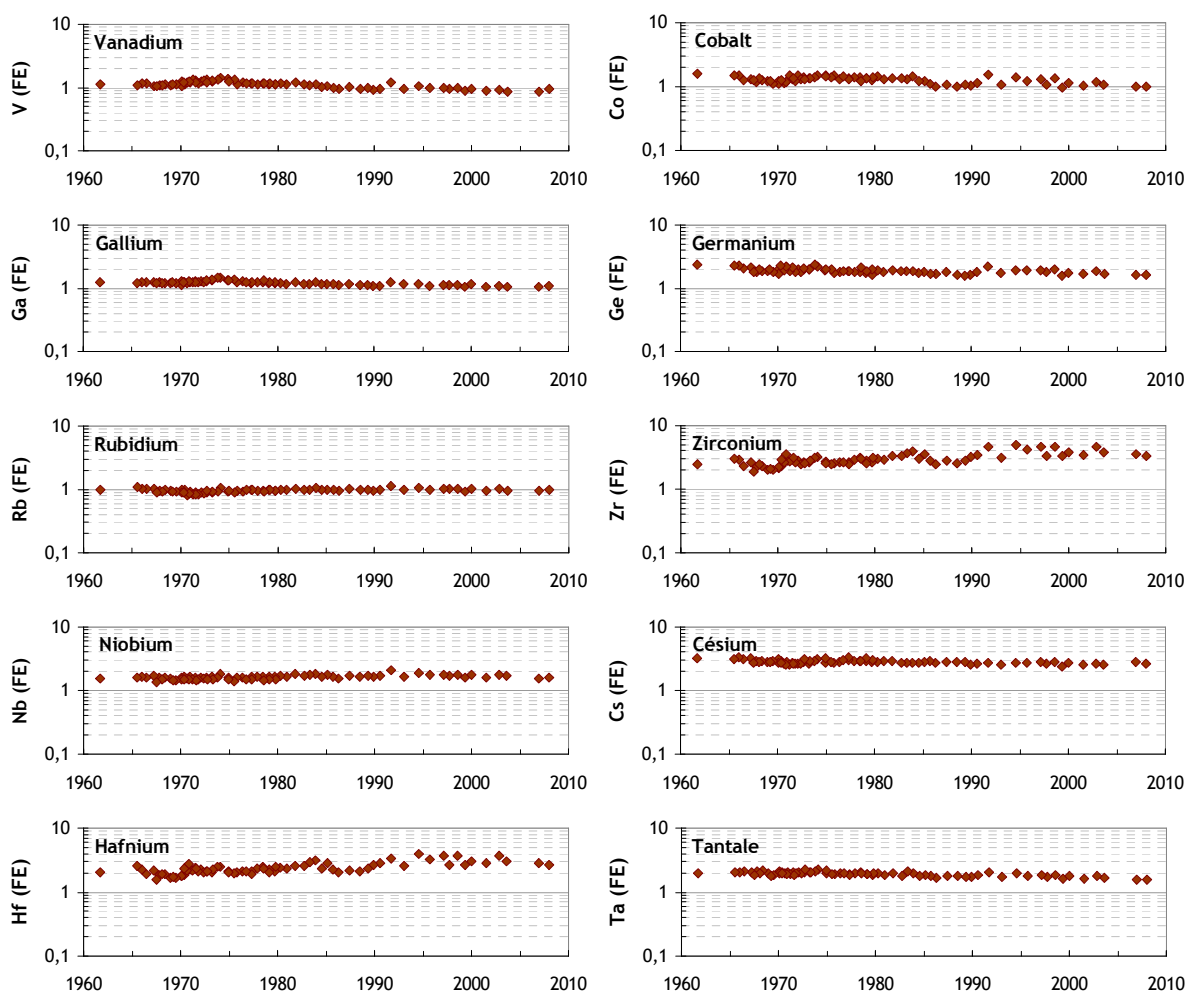


Figure 21. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments traces des sédiments de la Darse des Docks présentant peu de variations au cours du temps

Sept éléments présentent des FE en constante diminution au cours du temps : le zinc, l'arsenic, l'argent, l'étain, l'antimoine, le tungstène, le plomb (Figure 22). L'arsenic, l'antimoine et le tungstène ont un FE proche de 10 dans les années 1960 ; dans les années 2000, leur teneur revient à la normale avec un FE proche de 1. Le zinc, l'étain et le plomb présentent des FE beaucoup plus forts dans les années 1960 entre 40 et 70 ; dans les années 2000, leurs teneurs restent élevées avec un FE proche de 10. Enfin, l'argent présente un FE de 500 dans les années 1960 et de 50 dans les années 2000. Ces éléments témoignent d'une décontamination très progressive du stock sédimentaire.

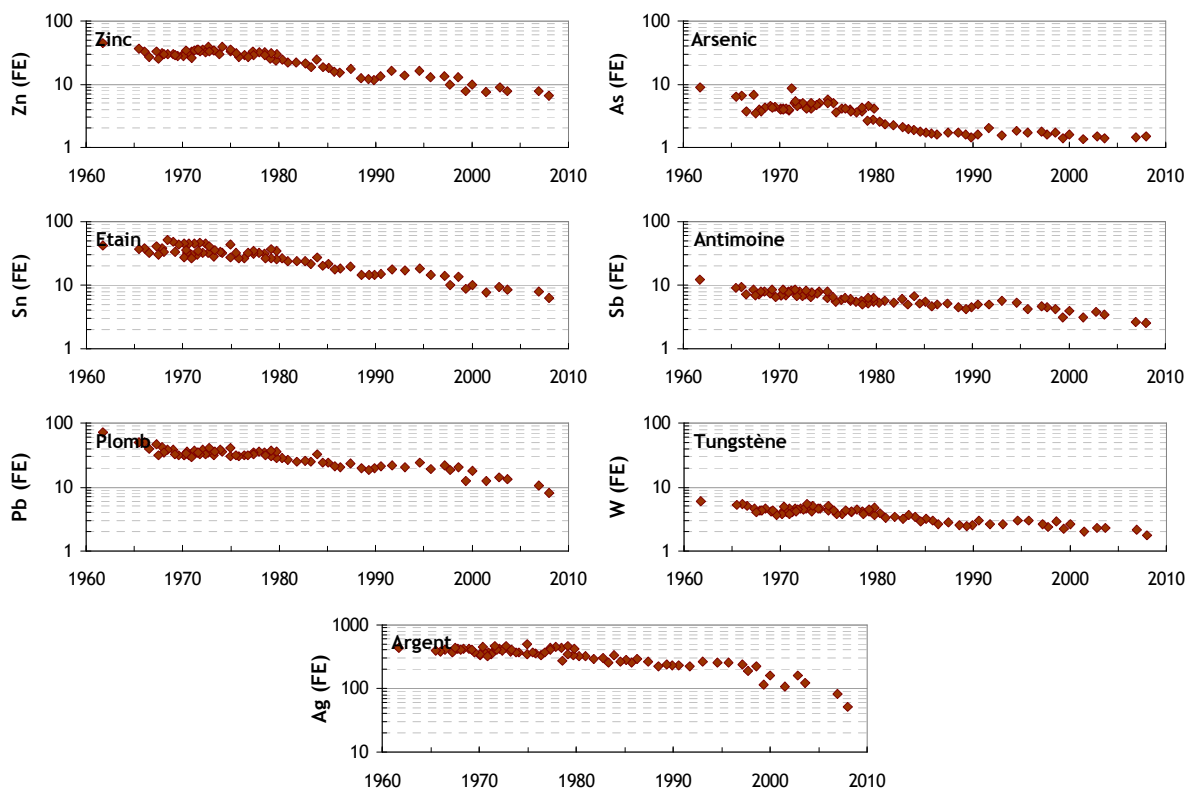


Figure 22. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments traces des sédiments de la Darse des Docks en diminution constante au cours du temps

Douze éléments présentent, avec le phosphore déjà mentionné, un pic de concentrations dans les années 1970 (Figure 23). Les rejets de phosphogypses sont à l'origine de ces concentrations en excès. Le cadmium et le bismuth présentent le FE le plus élevé à 350. Le chrome, le cuivre, l'yttrium et l'uranium ont des FE supérieurs à 10 durant cette période. Enfin, le strontium, le béryllium, le nickel, le molybdène, le baryum et le thorium présentent également un FE maximal dans les années 1970 entre 3 et 5 selon les éléments.

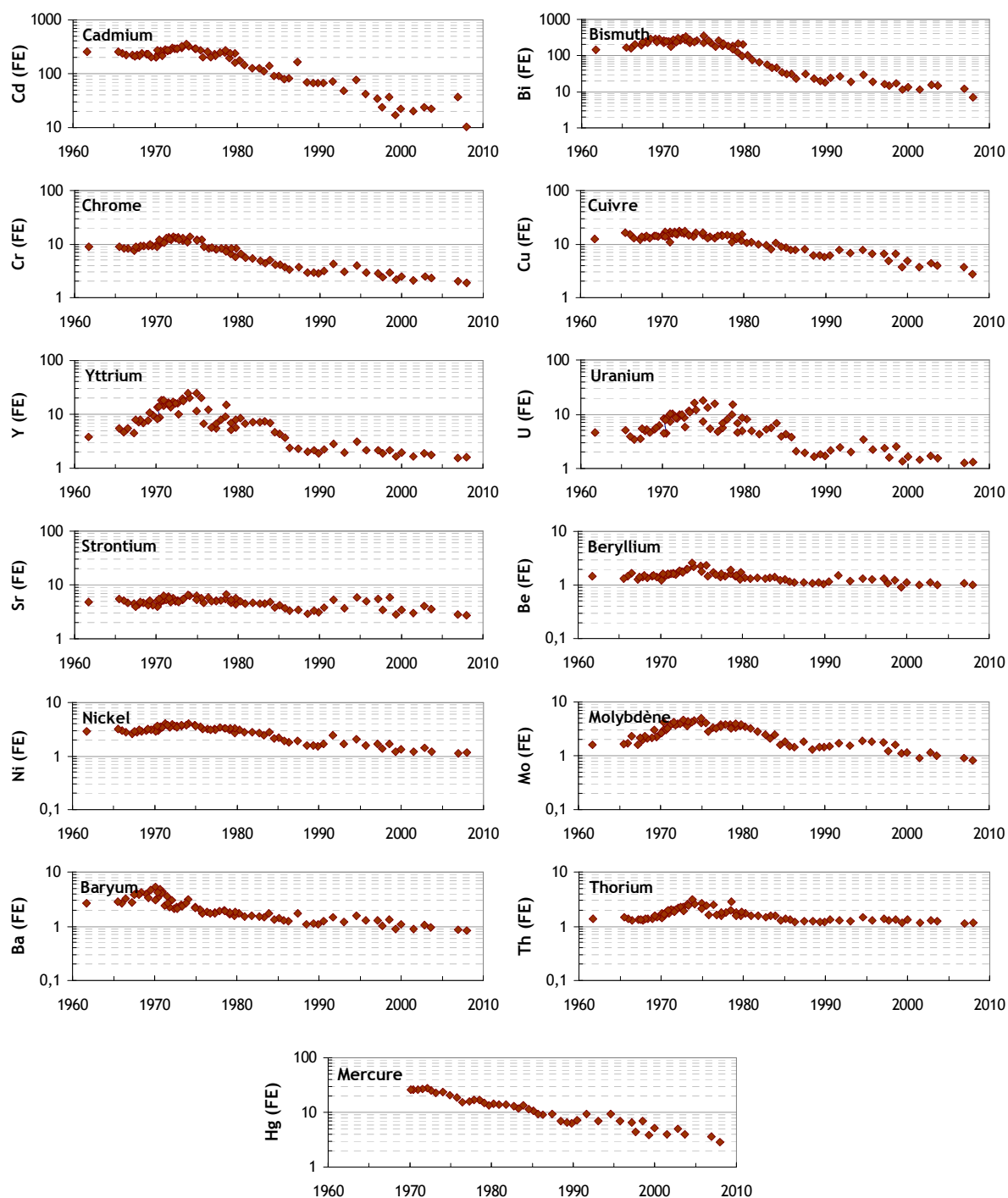


Figure 23. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments mineurs influencés par les rejets de phosphogypses des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps

Les teneurs de ces éléments, tous influencés par les rejets de phosphogypses ayant eu lieu dans l'agglomération de Rouen, ne sont pas maximales à la même date. La composition des phosphogypses rejetés est fonction de la composition du minerai de départ, elle est donc variable au cours du temps ; ainsi le bismuth présente une valeur maximale en 1970 alors

que la valeur maximale de l'yttrium est atteinte en 1975. L'enrichissement observé dans les années 1970 se superpose à une décroissance régulière des FE pour la plupart des éléments exceptés pour l'uranium, le béryllium et le thorium.

### 3.4.1.3 Terres rares

Les 14 terres rares analysées (du lanthane au lutécium) présentent tous le même profil. Quelques unes d'entre elles sont représentées sur la Figure 24. Les terres rares sont enrichies pendant la période de rejets des phosphogypses ; leur FE est d'environ 10 autour de 1975. Dans les années 2000, leurs teneurs reviennent à la normale avec un FE proche de 1.

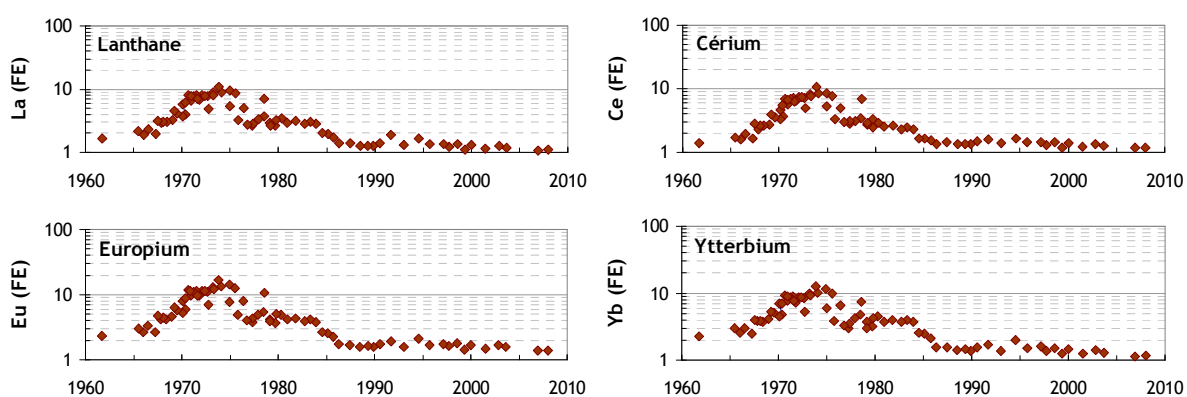


Figure 24. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) de 4 terres rares dans les sédiments de la Darse des Docks au cours du temps

## 3.4.2 Les concentrations mesurées dans les carottes sont-elles représentatives de celles mesurées dans les matières en suspension ?

### 3.4.2.1 Comparaison des sédiments de la Darse des Docks avec les MES analysées par la Cellule Anti-pollution pour 12 des éléments analysés

La Cellule Anti-pollution de la Seine de Rouen effectue des suivis réguliers de la contamination des MES (Matières En Suspension) par certains métaux sur 3 sites de prélèvement : Poses, la Bouille et Honfleur. Les mesures effectuées sur les MES du site de la Bouille, site le plus proche de la Darse des Docks, sont comparées aux mesures effectuées sur les sédiments de la Darse des Docks. Le cadmium, le chrome, le cobalt, le cuivre, le nickel, le plomb, le titane, le vanadium et le zinc sont mesurés dans les MES depuis 1975. Les mesures sont rares entre 1975 et 1980, elles deviennent plus régulières à partir de 1980 avec environ une mesure tous les 2 mois, voir tous les mois. Le fer, l'aluminium et le manganèse sont dosés depuis 1980. Enfin, la teneur des MES en argent est mesurée seulement depuis 2002. Les méthodes de mesure ont évoluées au cours du

temps ; ainsi sur les MES, les mesures en métaux effectuées dans les années 1980, sont moins fiables que les mesures effectuées dans les années 2000.

Sur la Figure 25 sont représentées les teneurs en aluminium dans les MES prélevées à La Bouille, ainsi que les teneurs en aluminium sur les échantillons des carottes datées prélevées dans la Darse des Docks. Ces deux séries de mesures sont représentées en fonction du temps.

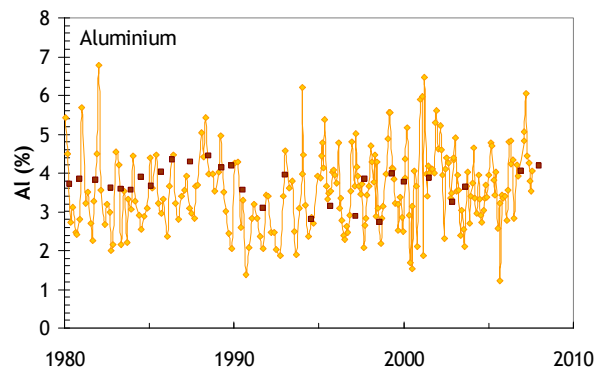
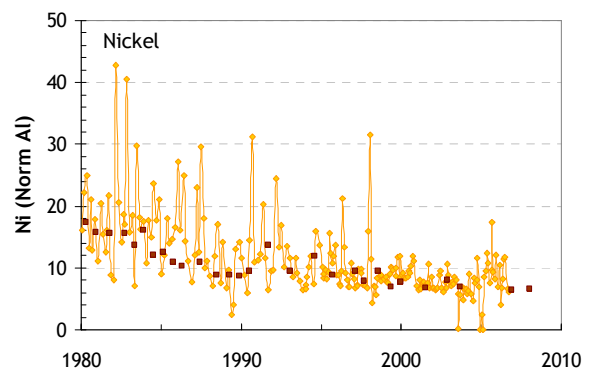
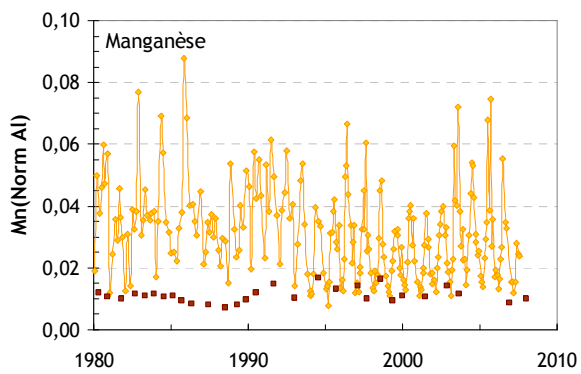
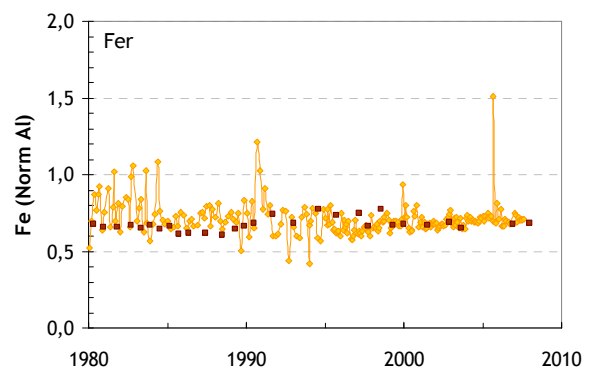
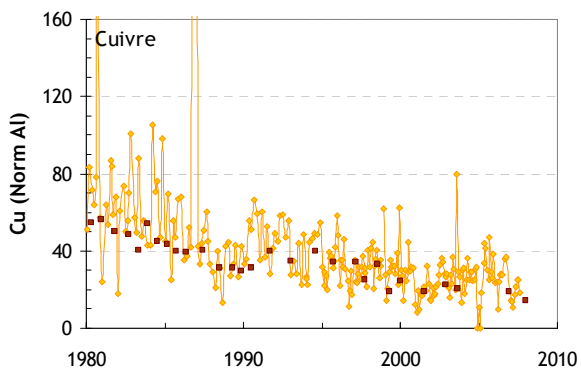
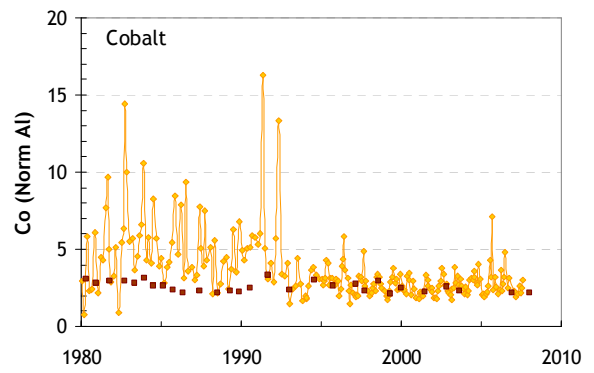
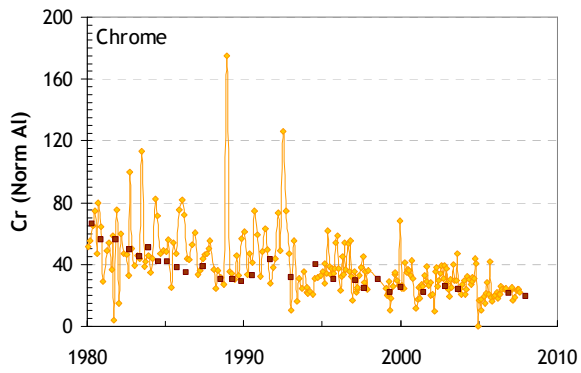
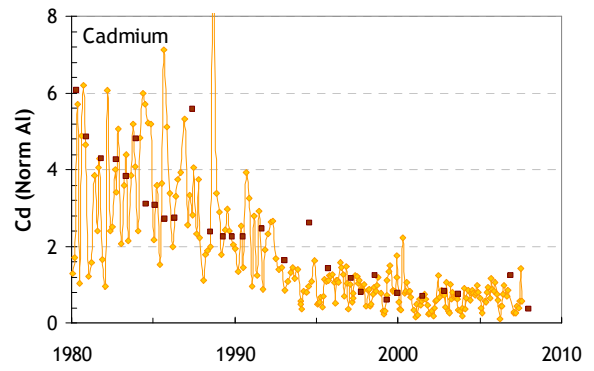
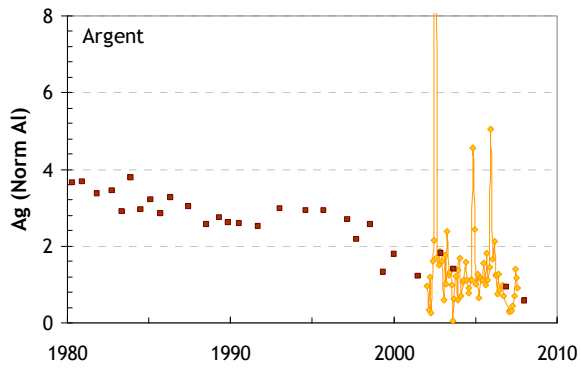


Figure 25. Teneurs en aluminium au cours du temps dans les MES prélevées à la Bouille (en orange) et dans les sédiments des carottes datées prélevées dans la Darse des Docks (en marron)

Les mesures d'aluminium sur les MES sont effectuées à pas de temps plus resserré ; les deux profils présentent cependant la même allure. On peut donc conclure que la nature des sédiments de la Darse est représentative de celle des MES transitant dans l'estuaire. Si l'on observe des profils similaires sur ces deux séries de données, il est probable que la granulométrie et la minéralogie de ces sédiments soit identique sur les deux types d'échantillon, MES et sédiments carottés.

Pour s'affranchir, de façon certaine, des effets de la granulométrie, les graphiques de la Figure 26 présentent des teneurs normalisées à l'aluminium. Nous disposons de 12 éléments qui ont fait l'objet de mesures à la fois sur les MES et sur les carottes de la Darse des Docks. Nous cherchons à savoir si les teneurs des différents éléments mesurées sur les carottes de la Darse des Docks sont représentatifs des teneurs de chaque élément des MES ayant transité dans l'estuaire fluvial de la Seine au cours du temps.



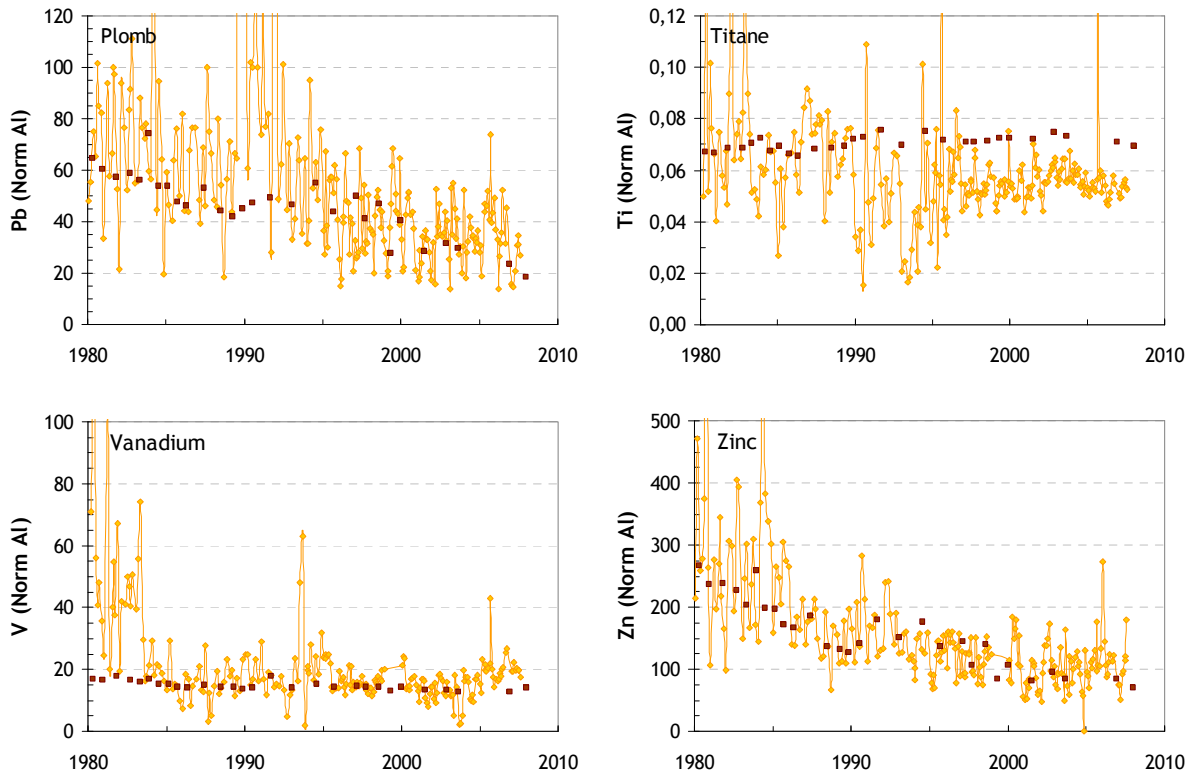


Figure 26. Teneurs normalisées à l'aluminium de 12 éléments au cours du temps mesurées dans les MES prélevées à la Bouille (en orange) et dans les sédiments des carottes datées prélevées dans la Darse des Docks (en marron)

La corrélation entre les teneurs des MES et les teneurs des sédiments carottés est très bonne pour de nombreux éléments : le cadmium, le chrome, le cobalt, le cuivre, le fer, le nickel, le plomb, le vanadium et le zinc. La différence principale entre les deux jeux de données pour ces 9 éléments est le pas d'échantillonnage : une mesure tous les 2 mois, voire tous les mois, est effectuée sur les MES, alors que les mesures effectuées sur les carottes correspondent à une mesure tous les ans. Le signal est donc lissé sur les carottes de la Darse des Docks. Les données d'argent sur les MES sont insuffisantes mais compatibles avec les teneurs des sédiments de la Darse des Docks. Le titane présente des valeurs autour de 0,05 sur les MES et de 0,07 sur les sédiments de la Darse des Docks pour la période 1995-2000, ce décalage est peu significatif eu égard aux difficultés analytiques pour doser cet élément comme en témoignent les valeurs très erratiques autour de 1995. Enfin, les teneurs de manganèse sur les sédiments carottés sont significativement inférieures par rapport aux teneurs sur les MES, d'un facteur 2 à 3.

Globalement, on peut conclure qu'à l'exception du manganèse, les teneurs des différents éléments mesurés sont semblables dans les MES et dans les sédiments carottés. La Darse des docks présentent donc une image fidèle du stock sédimentaire mobile.



#### 3.4.2.2 Cas des autres éléments non analysés dans le cadre du suivi des MES

La comparaison des analyses effectuées sur les MES et sur les sédiments carottés de la Darse des Docks qu'il est fort peu probable qu'il existe un fractionnement ou une ségrégation des particules au plan minéralogique ou granulométrique. Etant donné, que les éléments mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks sont peu ou pas réactifs, nous faisons l'hypothèse que les concentrations mesurées sur les sédiments carottés sont représentatives de celles du stock mobile.

### 3.5 Reconstitution des apports en radionucléides

#### 3.5.1 Rappel sur les radionucléides analysés dans les carottes

Les caractéristiques des radionucléides mesurés dans cette étude sont données en annexe (Tab. A1 et A2)

##### 3.5.1.1 Radionucléides d'origine artificielle

Le césium 137 ( $^{137}\text{Cs}$  - période radioactive 30,15 ans) est le seul radionucléide émetteur gamma d'origine artificielle à avoir été détecté dans les sédiments carottés à la Darse des Docks. Il provient des retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires, des retombées de l'accident de Tchernobyl et des rejets liquides de la centrale EDF de Nogent (CNPE Nogent). L'impact des rejets de  $^{137}\text{Cs}$  de la centrale n'est pas décelable même à proximité immédiate de l'installation (Boust et al., 2007). Il est donc logique d'en conclure qu'il ne le soit pas non plus à plus grande distance, après mélange du stock sédimentaire avec les autres apports sédimentaires du bassin versant. On ne peut exclure que des particules marquées par le  $^{137}\text{Cs}$  rejeté par l'usine de traitement des combustibles usés AREVA NC de La Hague ne puissent parvenir dans l'estuaire amont en conséquence du phénomène de pompage tidal. Ce processus caractéristique des estuaires mégatidaux a été documenté en Seine par Boust et al. (2002) et Vrel et al. (2011). L'américium 241 ( $^{241}\text{Am}$  - période 432 ans), émetteur alpha et gamma, n'a été détecté que par spectrométrie alpha. Les isotopes du plutonium  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ , le  $^{241}\text{Am}$  et le  $^{244}\text{Cm}$ , émetteurs alpha, ont aussi été recherchés dans cette étude. Ces radionucléides sont issus de l'utilisation civile ou militaire de l'énergie nucléaire. Ils sont présents dans les rejets liquides des usines de retraitement de combustibles usés. Les plutoniums sont aussi présents dans les retombées atmosphériques provenant des essais d'armes nucléaires, et pour une faible part, dans celles de l'accident de Tchernobyl. Comme la spectrométrie alpha, méthode couramment

utilisée pour quantifier les isotopes du plutonium, ne permet pas de distinguer les isotopes 239 et 240, ils sont notés  $^{239, 240}\text{Pu}$  et c'est la somme de leurs concentrations qui est donnée.

La connaissance de certains rapports isotopiques ( $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ , par exemple) peut permettre d'identifier l'origine des radionucléides mesurés ; ainsi le rapport d'activité  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  caractéristique des essais d'armes nucléaires atmosphériques est de l'ordre de 0,04. Le rapport isotopique  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  issus des procédés de l'usine de retraitement de combustibles usés de La Hague était de l'ordre de 0,04 dans les années 1960 et a augmenté jusqu'à 2 dans les années 1990 ; la rémanence de ces radionucléides dans les sédiments et la forte diminution des rejets depuis la fin des années 1980 conduit à un rapport isotopique intégré  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  de l'ordre de 0,7 actuellement en Manche.

Les concentrations de ces différents radionucléides sont variables et dépendent fortement de l'abondance de la fraction fine des sédiments ou de certaines phases porteuses spécifiques (zircon, monazite...).

### 3.5.1.2 Radionucléides d'origine naturelle

Le  $^{40}\text{K}$  est un radionucléide naturel de longue période ( $1,26 \times 10^9$  ans) qui a le même comportement et les mêmes phases porteuses que son isotope stable, le  $^{39}\text{K}$ .

Les radionucléides  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{208}\text{Tl}$ , radionucléides à vie courte, sont issus de la décroissance radioactive de  $^{232}\text{Th}$ , avec lequel ils ont atteint l'équilibre séculaire (activités égales).

Le thorium 227 ( $^{227}\text{Th}$ ) appartient à la chaîne de l'uranium 235 ( $^{235}\text{U}$ ) avec lequel il a atteint l'équilibre séculaire (activités égales). Dans un échantillon naturel, le rapport d'activité  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  attendu est de 21.

Le  $^{234}\text{Th}$ , le  $^{214}\text{Pb}$ , le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{210}\text{Pb}$  font partie de la chaîne de l' $^{238}\text{U}$  avec lequel ils ont atteint l'équilibre séculaire (activités égales). Les activités en  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$  sont donc normalement identiques. Dans les sédiments superficiels fraîchement déposés, une activité de  $^{234}\text{Th}$  en excès peut être détectée par suite de l'adsorption de ce radionucléide produit par décroissance de l' $^{238}\text{U}$  dans la colonne d'eau ; elle est sans objet ici eu égard à l'âge des sédiments carottés et à la courte période du  $^{234}\text{Th}$ .

Dans les sédiments, le  $^{210}\text{Pb}$  (période de 22,2 ans) est produit par la décroissance de ses précurseurs de la chaîne de l' $^{238}\text{U}$ . Il peut aussi provenir des retombées d'aérosols sur les milieux terrestres et marins après avoir été produit par le radon  $^{222}\text{Rn}$  émis à la surface des continents. Un excès de  $^{210}\text{Pb}$  est donc généralement observé dans les sédiments en

conséquence de son introduction dans la colonne d'eau via les retombées atmosphériques. Enfin, le  $^{210}\text{Pb}$  dans les sédiments marins peut aussi être issu des processus industriels, comme l'industrie des phosphates (phosphogypses), qui entraînent des modifications des équilibres attendus dans la chaîne de l' $^{238}\text{U}$ .

### 3.5.2 Evolution temporelle des concentrations enregistrées dans les sédiments

Le modèle d'âge précédemment établi permet de présenter les concentrations mesurées dans les différents niveaux des carottes prélevées sous la forme de séries temporelles (Figure 16), successivement pour les radionucléides d'origine artificielle et les radionucléides d'origine naturelle.

#### 3.5.2.1 Radionucléides d'origine artificielle

Deux séries de concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  ont été portées sur la Figure 27 en fonction du temps. La série notée  $^{137}\text{Cs}$  représente les concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  rapportées à l'année 2010 ; ce sont les concentrations actuellement présentes dans les sédiments. La série notée  $^{137}\text{Cs}^*$  représente les concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  corrigées de la décroissance depuis le dépôt ; elles décroissent d'un facteur 2 tous les 30,15 ans (la période du  $^{137}\text{Cs}$ ). Cette correction est rendue possible grâce à la datation précise des carottes ; ce sont les concentrations qui étaient présentes dans le sédiment à l'époque de son dépôt ; elles permettent une comparaison avec les concentrations rapportées par le passé.

Les deux séries présentent deux pics suivis d'une décroissance. Le premier date du début des années 60 et correspond aux retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires dont le maximum a eu lieu entre 1960 et 1963 ; les concentrations actuelles de l'ordre d'une trentaine de  $\text{Bq.kg}^{-1}$  ont presque atteint la centaine de  $\text{Bq.kg}^{-1}$  à l'époque du dépôt. Le second pic est lié aux retombées de l'accident de Tchernobyl ; les concentrations corrigées de la décroissance atteignent  $90 \text{ Bq.kg}^{-1}$  ; la diminution qui suit cette retombée ponctuelle se poursuit jusqu'au début des années 2000 : les concentrations actuelles sont de l'ordre de  $5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Elle résulte de la rétention et du relargage différé du  $^{137}\text{Cs}$  dans le bassin versant de la Seine et dans le lit du fleuve. Il est probable qu'une fraction, sûrement variable dans le temps, du  $^{137}\text{Cs}$  présent dans l'estuaire amont de la Seine provienne également des rejets liquides de l'usine de retraitement de La Hague, par suite du phénomène de pompage tidal déjà évoqué. Cette source distale ne peut être invoquée qu'à partir des années 80 ; en effet, les rejets les plus importants en  $^{137}\text{Cs}$  ont été effectués en 1970 et le temps de transit moyen entre le Cotentin et l'estuaire de la Seine est de l'ordre d'une dizaine d'années. On ne peut exclure qu'une partie du  $^{137}\text{Cs}$  provienne

des installations nucléaires de la région parisienne. Les rejets du CNPE de Nogent-sur-Seine contiennent également du  $^{137}\text{Cs}$  ; cependant, les activités en  $^{137}\text{Cs}$  mesurées dans les sédiments ne sont pas significativement différentes entre l'amont et l'aval de l'installation.

L'évolution temporelle des concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  (Figure 28) montre un pic à près de  $1500 \text{ mBq.kg}^{-1}$ , en 1975, faisant suite à une lente augmentation amorcée en 1970. Il est suivi par une décroissance d'allure exponentielle qui s'interrompt brutalement au début des années 90, à des concentrations d'une centaine de  $\text{Bq.kg}^{-1}$ . Au-delà, à partir de 1997, les concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  se stabilisent à une valeur moyenne de quelque  $20 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Le pic a été formellement expliqué par des rejets liquides du Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses de 1975, via la station d'Achères, et constitue de ce fait un marqueur temporel précieux (Boust et al., 2012).

L'évolution temporelle des concentrations en  $^{239,240}\text{Pu}$  (Figure 28) montre, quant à elle, un pic à près de  $5000 \text{ mBq.kg}^{-1}$ , daté de 1961, mais incomplètement décrit eu égard au nombre d'analyses à ce niveau. Même s'il est possible que cette concentration anormalement élevée soit également le résultat d'un rejet du Centre de Fontenay-aux-Roses, cette source n'est pas formellement avérée. Les concentrations en  $^{239,240}\text{Pu}$  décroissent ensuite de façon exponentielle jusqu'au milieu des années 80 ; elles stagnent alors vers  $200 \text{ mBq.kg}^{-1}$  jusqu'en 1995, puis se maintiennent à la valeur de  $150 \text{ mBq.kg}^{-1}$  jusqu'à la fin de l'enregistrement en 2008.

Le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  (Figure 29) confirme les observations précédemment réalisées. Il est également porté après correction de la décroissance du  $^{238}\text{Pu}$  ; les valeurs sont cependant peu différentes eu égard à la période de cet isotope (87,7 ans). En l'absence de toute influence industrielle, ce rapport devrait être de l'ordre de 0,04. La valeur enregistrée en 1961 (0,006) confirme une concentration en  $^{239,240}\text{Pu}$  anormalement élevée, d'origine industrielle. Le rapport passe de 0,04 à près de 5 entre 1970 et 1975, valeur caractéristique du rejet identifié plus haut. Après une décroissance jusqu'en 1980, il varie peu entre 0,9 et 0,6 jusqu'en 1995. Après une nette rupture, le rapport isotopique se stabilise à environ  $0,15 \pm 0,02$  sur la période 1997 à 2008.

Ces observations invitent à rechercher un événement majeur entre les années 1995 et 1997, ayant significativement affecté le stock de particules sédimentaires mobiles dans le haut estuaire de la Seine ou ayant perturbé le fonctionnement hydrosédimentaire de la Darse des Docks. Aucune interprétation définitive ne peut être validée à ce stade.

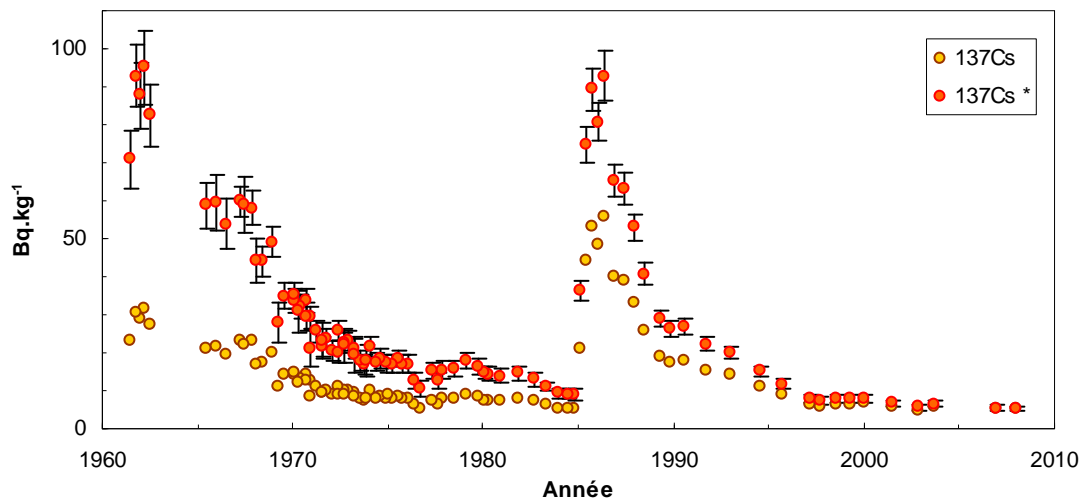


Figure 27. Evolution temporelle des concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt (notées  $^{137}\text{Cs}^*$ ), exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .

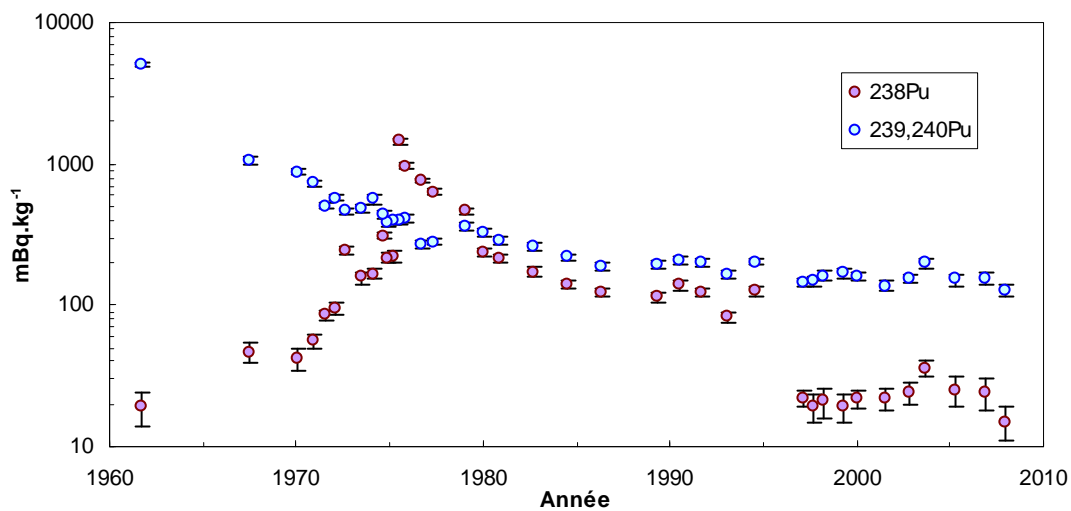


Figure 28. Evolution temporelle des concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239,240}\text{Pu}$  dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date de 2010 exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .

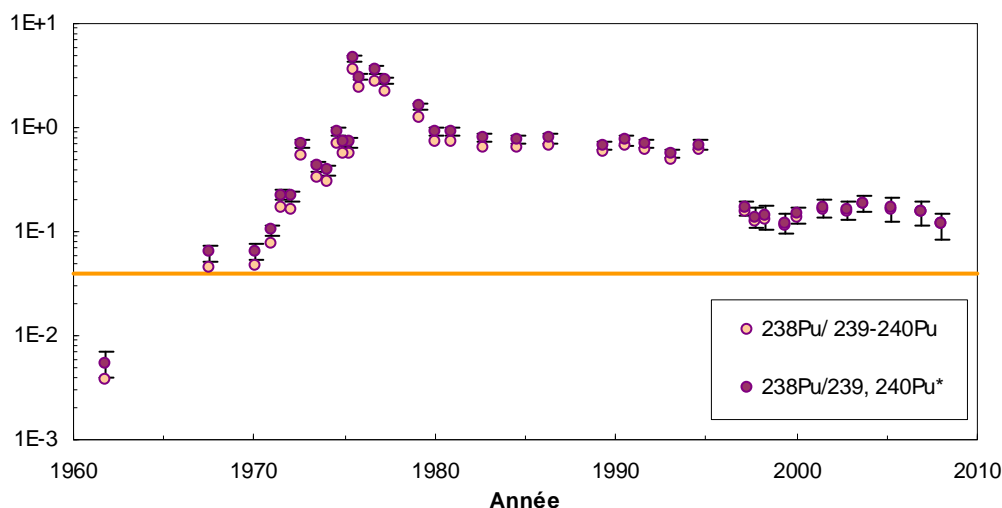


Figure 29. Evolution temporelle du rapport d'activité  $^{238}\text{Pu} / ^{239, 240}\text{Pu}$  dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance du  $^{238}\text{Pu}$  depuis le dépôt, notées \*. La barre horizontale représente la valeur caractéristique des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

L'évolution temporelle des concentrations en  $^{241}\text{Am}$  (Figure 30) montre une diminution assez régulière entre 1961 ( $450 \text{ mBq.kg}^{-1}$ ) et 2008 ( $50 \text{ mBq.kg}^{-1}$ ). Les rapports  $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$  sont compris entre 1,6 et 3,3 sauf pour le niveau daté de 1961 où ce rapport atteint 11, à cause de l'anomalie en  $^{239, 240}\text{Pu}$  déjà mentionnée. L'évolution du rapport  $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$  dans les retombées atmosphériques calculée en tenant compte de la production de  $^{241}\text{Am}$  par le  $^{241}\text{Pu}$  conduit à des valeurs du même ordre de grandeur (2-5 ; d'après Holm and Persson, 1978) mais ne permettent pas d'exclure un apport provenant des installations nucléaires de la région parisienne.

La Figure 30 présente les concentrations en  $^{244}\text{Cm}$  rapportées à la date du dépôt ; elles sont comprise entre 2 et  $13 \text{ mBq.kg}^{-1}$ , mais ne couvrent pas la période avant 1975. Les rapports  $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$  sont compris entre 7 et 50 ; ces valeurs signent la présence d'un apport provenant vraisemblablement des installations nucléaires de la région parisienne. En effet, le rapport  $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$  caractéristique des retombées était de l'ordre de 30000 en 1961 et a cru rapidement eu égard à la période du  $^{244}\text{Cm}$ .

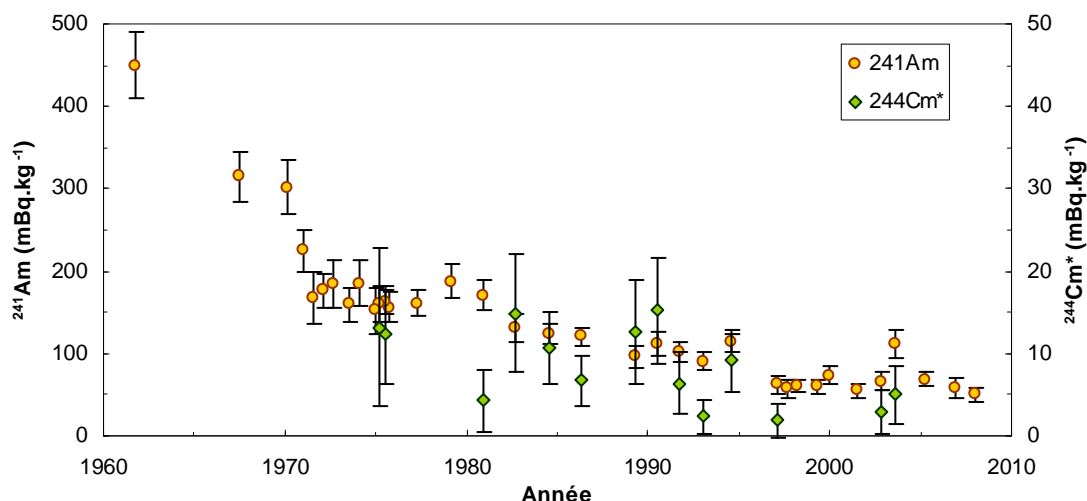


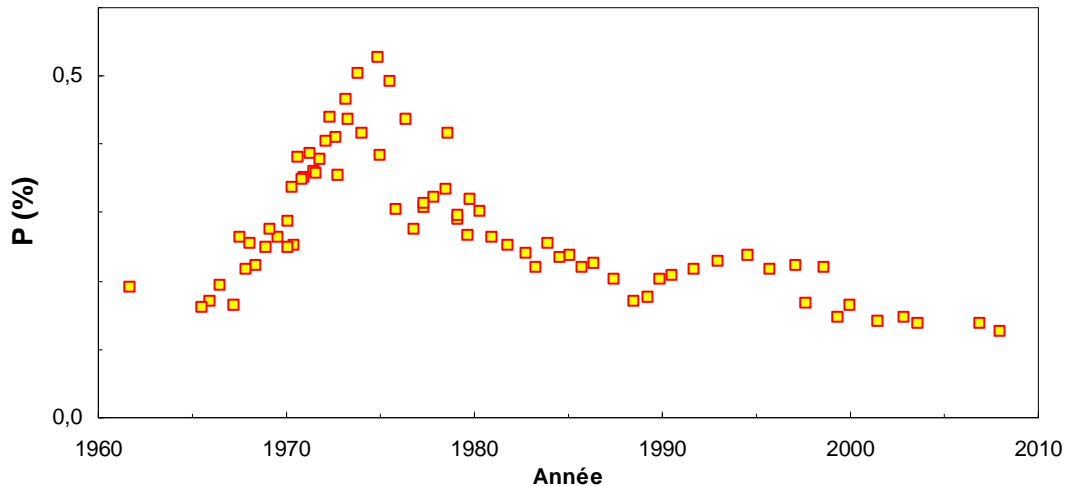
Figure 30. Evolution temporelle des concentrations en  $^{241}\text{Am}$  et  $^{244}\text{Cm}$  dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées \* pour le  $^{244}\text{Cm}$ , exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .

### 3.5.2.2 Radionucléides d'origine naturelle

L'évolution temporelle des concentrations en  $^{40}\text{K}$  est identique à celle du K stable qui ont été présentées à la section 4.4.1.1. Les concentrations varient entre 200 et 350  $\text{Bq.kg}^{-1}$ .

Les chaînes naturelles de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$  sont, à des degrés divers, marquées par les rejets de phosphogypses. Comme les concentrations en phosphore dans les phosphogypses sont remarquablement constantes ( $0,19 \pm 0,08\%$  P entre 1974 et 1987), elles donnent une image fidèle de la contribution des phosphogypses à la sédimentation dans la Darse des Docks. On notera toutefois qu'elles sont inférieures à celles mesurées dans les sédiments car elles sont représentatives du phosphogypse total et non de la fraction insoluble qui est très minoritaire. L'évolution temporelle des concentrations en phosphore est représentée (Figure 31) pour permettre une comparaison plus aisée avec celles des radionucléides qui, bien que d'origine naturelle, n'en sont pas moins présents à des concentrations largement supérieures à celles attendues pour un sédiment de type shale ; elles contribuent ainsi à ce qu'il est convenu d'appeler la "radioactivité naturelle renforcée".

En l'absence de rejets intra-estuariens, il est raisonnable d'estimer que les concentrations en phosphore devraient être de l'ordre de 0,6% (valeur mesurée dans des carottes prélevées à l'amont du barrage de Poses - Vrel, données non publiées).



**Figure 31. Evolution temporelle des concentrations en phosphore dans les sédiments de la Darse des Docks.**

Les activités en radionucléides de la chaîne du  $^{232}\text{Th}$ , mesurées par spectrométrie gamma ( $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  ; concentrations en  $^{208}\text{Tl}$  corrigées du rapport d'embranchement de 0,36) ou déduites des concentrations mesurées par ICP-MS ( $^{232}\text{Th}$ ) suivent toutes la même évolution (Figure 32) : augmentation depuis le début de l'enregistrement en 1961 et pic vers  $70 \text{ Bq.kg}^{-1}$  en 1973 (soit un excès de 2 à 3 par rapport aux shales), puis décroissance jusqu'en 2008. Comme à la fois les phosphorites, matière première pour la production d'acide phosphorique, et les phosphogypses sont réputés déficitaires en Th (Metzger et al., 1980), le pic observé en  $^{232}\text{Th}$  et ses descendants manifestement associés aux rejets de phosphogypses, ainsi que l'absence de fractionnement entre les radionucléides de la chaîne évoque une dissolution incomplète de minéraux thorifères résistants et présents en traces dans les phosphorites comme la monazite ; l'excès en lanthanides (terres rares), déjà mentionné, peut aussi s'expliquer de cette façon.

Dans la série du  $^{235}\text{U}$ , les activités en  $^{227}\text{Th}$  dépassent une quarantaine de  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sont en excès d'un facteur 2 environ par rapport à celles du  $^{235}\text{U}$ . Elles suivent la même évolution temporelle que celles du phosphore, de  $^{238}\text{U}$  ou du  $^{232}\text{Th}$  et sont liées aux rejets de phosphogypses (Figure 33) ; elles ne sont d'ailleurs mesurables que pendant la période au cours de laquelle ils sont les plus importants. Le déséquilibre  $^{235}\text{U}$ - $^{227}\text{Th}$  résulte vraisemblablement d'un fractionnement au cours du traitement chimique dans lequel le thorium est beaucoup moins soluble que l'uranium, ce dernier ayant, de surcroît, une plus forte affinité pour l'acide phosphorique. La remise à l'équilibre est rendue impossible par la présence d'un radionucléide à vie longue, le protactinium 231 ( $^{231}\text{Pa}$  ; période 32700 ans)



Le rapport  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  est de l'ordre de  $15\pm 4$ , c'est-à-dire un peu inférieur à la valeur attendue de 20, pour un sédiment naturel. La mesure de l' $^{235}\text{U}$  par spectrométrie gamma est cependant délicate.

Les activités en radionucléides de la chaîne du  $^{238}\text{U}$ , mesurées par spectrométrie gamma ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ) ou déduites des concentrations mesurées par ICP-MS ( $^{238}\text{U}$ ) suivent la même évolution que celles précédemment décrites et reliées aux rejets de phosphogypses (Figure 34). On note toutefois un net fractionnement entre les radionucléides du début de la chaîne ( $^{238}\text{U}$  et  $^{234}\text{Th}$ ) et le  $^{226}\text{Ra}$  et ses descendants. Ce fractionnement résulte (comme déjà évoqué pour l' $^{235}\text{U}$ ) de la répartition des radionucléides entre acide phosphorique et phosphogypses au cours du processus de production en fonction de leur solubilité et de leur affinité pour certaines phases en présence : U et Pb sont préférentiellement extraits dans l'acide phosphorique tandis que le Ra (et le polonium non dosé ici) est extrait avec les phosphogypses à cause de sa très forte insolubilité en présence de sulfates (Sebesta et al., 1981). Contrairement à ce qui a été observé pour le couple  $^{235}\text{U}$ - $^{227}\text{Th}$ , l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{234}\text{Th}$  sont ici à l'équilibre : cet équilibre a été atteint après production du phosphogypse, le  $^{234}\text{Th}$  étant le descendant direct et de courte période (24 jours), de l' $^{238}\text{U}$ . Les concentrations en  $^{226}\text{Ra}$  atteignent plus de  $1500\text{ Bq.kg}^{-1}$  ; c'est environ 50 fois plus que ce qui serait observé en l'absence de toute influence industrielle.

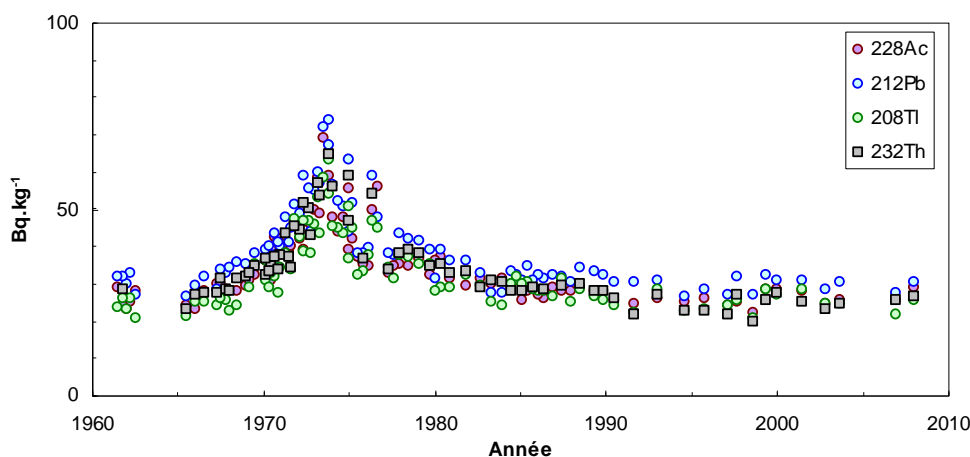


Figure 32. Evolution temporelle des concentrations des radionucléides émetteurs gamma de la chaîne du  $^{232}\text{Th}$  :  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Tl}$  ; les activités en  $^{232}\text{Th}$  ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en  $^{208}\text{Tl}$  ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les concentrations en  $^{212}\text{Bi}$ , très voisines de celles en  $^{212}\text{Pb}$ , ont été omises ; valeurs exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ .

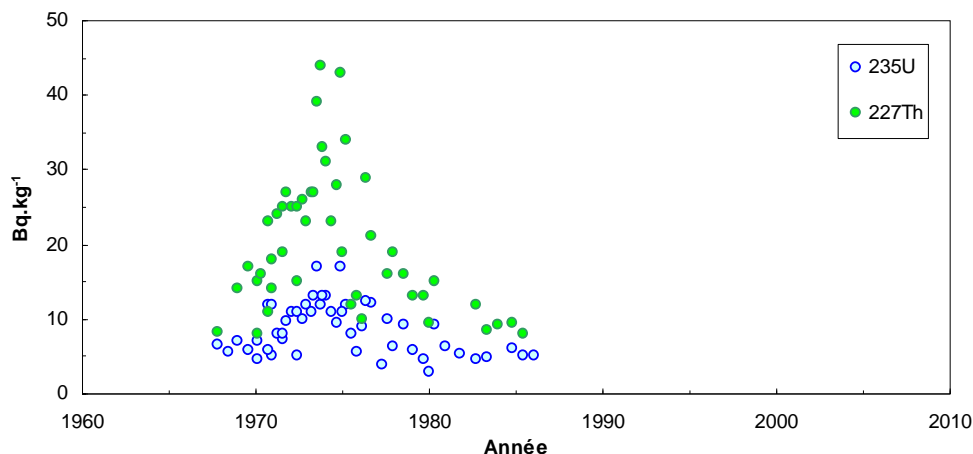


Figure 33. Evolution temporelle des concentrations en  $^{235}\text{U}$  et  $^{227}\text{Th}$  ; valeurs en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ .

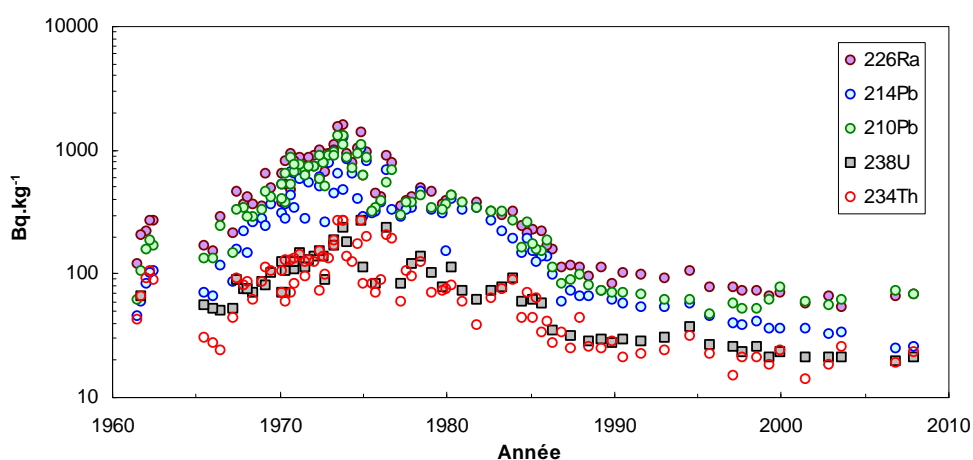


Figure 34. Evolution temporelle des concentrations des radionucléides émetteurs gamma de la chaîne de l' $^{238}\text{U}$  :  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  ; les activités en  $^{238}\text{U}$  ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en  $^{214}\text{Bi}$ , très voisines de celles en  $^{214}\text{Pb}$ , ont été omises ; valeurs exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ .

### 3.5.3 Les concentrations mesurées dans les carottes sont-elles représentatives de celles mesurées dans les matières en suspension ?

Les données disponibles permettant de répondre à cette question sont rares. Elles ont été extraites des travaux de thèse de Thomas (1988) et de Garcia (1996) et complétées de données IRSN acquises à la station OPERA de l'île Lacroix par filtration (entre 1999 et 2007) et dans des pièges à particules à l'île Lacroix lors d'une étude dans le cadre du programme Seine Aval (entre décembre 1997 et avril 1999) : elles concernent  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  et  $^{238}\text{Pu}$ . Les concentrations dans les matières en suspension sont comparées aux concentrations déduites aux mêmes dates de l'enregistrement sédimentaire daté de la Darse des Docks. La Figure 35 montre que l'adéquation entre ces deux séries de données est très bonne malgré la large gamme de concentrations couverte. Ces observations attestent du fait que, s'agissant des radionucléides, il n'y a pas de différence entre le

matériel particulaire circulant dans cette partie de l'estuaire et celui qui se dépose dans la darse des Docks ; par conséquent, l'enregistrement daté de la darse des Docks fournit une image conforme des concentrations en radionucléides caractéristiques du stock sédimentaire mobile dans le haut estuaire de la Seine au cours des 50 dernières années, attestant par là-même de la robustesse de la datation proposée.

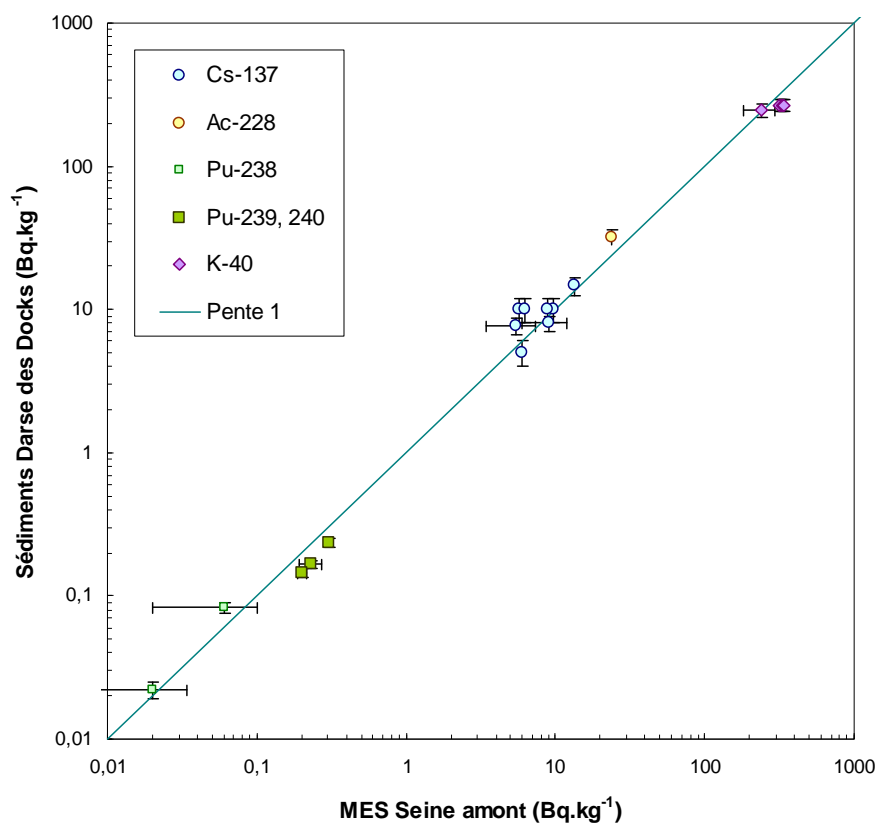


Figure 35. Comparaison entre les concentrations en radionucléides mesurées dans les matières en suspension de la Seine entre 1979 et 2000 (d'après Thomas, 1988 ; Garcia, 1997 ; Jeandel *et al.*, 1980 ; IRSN, données non publiées) et les concentrations déduites aux mêmes dates de l'enregistrement sédimentaire daté de la Darse des Docks ; valeurs exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .

### 3.5.4 Conclusions

- Une nette anomalie en  $^{238}\text{Pu}$  conduisant à des concentrations de l'ordre de  $1,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , a été découverte et datée à l'année 1975 ; sa source a été formellement identifiée en région parisienne ;
- Une nette anomalie en  $^{239}, ^{240}\text{Pu}$  conduisant à des concentrations de l'ordre de  $5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , a été découverte et datée à l'année 1961 ; sa source n'a pas été formellement identifiée en région parisienne ;
- Les rejets de phosphogypses effectués dans l'estuaire notamment de 1965 à 1986 ont induit des concentrations élevées en  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  (dans une moindre mesure,  $^{232}\text{Th}$ )

et leurs descendants dans les sédiments de la darse des Docks ; la somme des concentrations des radionucléides de ces chaînes naturelles mesurées dans les sédiments en 1974 atteint de l'ordre de  $15000 \text{ Bq.kg}^{-1}$  ; cette valeur devrait conduire à les traiter comme des déchets TFA (déchets radioactifs de Très Faible Activité dont l'activité est comprise entre 1000 et  $100000 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , selon la réglementation en vigueur) s'ils devaient être manipulés et reconditionnés.

- Le net changement dans les concentrations en  $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$  et dans le rapport  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$ , intervenu entre 1995 et 1997, suggère un événement majeur dans le fonctionnement hydrosédimentaire du haut estuaire de la Seine dont la nature reste à élucider.
- Comme déjà montré pour les contaminants métalliques, les concentrations en radionucléides enregistrées dans les sédiments de la Darse des Docks fournit une image fidèle des concentrations présentes dans le matériel particulaire qui a transité dans le haut estuaire durant les 50 dernières années.

### **3.6 Reconstitution des apports en contaminants organiques**

Il s'agit dans cette partie d'interpréter les mesures de micropolluants organiques réalisées sur les carottes de sédiments de la Darse des Docks afin de reconstituer les apports en contaminants à l'estuaire amont de la Seine. Divers groupes de substances ont été suivis les polychlorobiphényles (PCB), les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), les hydrocarbures aromatiques alkylés (HAP-alk.) certains polybromo di phényles-éthers (PBDE) et divers pesticides organochlorés (OCP).

#### **3.6.1 Nature, origine et caractéristiques générales des contaminants organiques analysés**

Ces groupes de contaminants présentent plusieurs caractéristiques communes :

- leur présence dans l'environnement est très liée aux activités industrielles urbaines ou agricoles. Ce sont soit des composés de synthèse (PCB, OCP) pour lesquels les concentrations de référence dans l'environnement sont nulles, soit des composés pour partie d'origine naturelle (hydrocarbures) mais dont les sources de contamination sur le bassin versant de la Seine sont totalement d'origine anthropique (combustion de produits pétroliers, incinération de déchets, pétrochimie, transport de dérivés du pétrole).
- leurs caractéristiques physico-chimiques sont voisines : notamment une grande persistance, un caractère hydrophobe élevé et donc, des comportements comparables dans

l'environnement aquatique. Ils présentent en effet une faible réactivité chimique, résistent aux processus de dégradation chimiques et biologiques. Leur faible solubilité (hydrophobicité) leur confère une grande capacité à s'adsorber aux matériaux solides et à s'accumuler dans les sédiments. Ce sont des Polluants Organiques Persistants (POP) pris en compte par la Convention de Stockholm (PCB, OCP) ou de type POP pour les HAP et les PBDE.

- leur fort impact environnemental et sanitaire en raison de leur caractère bioaccumulable (PCB, OCP), biocide (OCP), cancérigène (HAP, PCB) ou reprotoxique (PCB, PBDE). Les réglementations progressivement mises en place pour réduire leur possible impact, des modifications des pratiques industrielles, le contrôle des émissions représentent quelques-unes des mesures qui ont conduit à une diminution des niveaux de concentration dans l'environnement depuis une cinquantaine d'années. Toutefois, cette vigilance reste d'actualité (Plan National PCB, par exemple).

**Les polychloro-biphényles (PCB)** sont des contaminants de l'environnement préoccupants en raison de leur persistance, de leur capacité à s'accumuler dans les sédiments et les organismes et de leur toxicité. Les PCB sont des composés de synthèse, c'est-à-dire, à la différence des éléments traces métalliques, d'origine strictement liée aux activités humaines.

Ils ont été produits industriellement à partir de 1930 par chloration du biphényle, synthèse qui conduit à des mélanges techniques largement utilisés comme isolants thermiques dans les transformateurs électriques notamment. Ces formulations techniques sont connues par leur nom de marque (Aroclor aux US, Clophen en Allemagne, Kanelchlor au Japon, Phénochlor et Pyralène en France) et leur degré moyen de chloration (Aroclor1232, 1242, 1254, 1260 ou Phénochlor DP3, DP4, DP5, DP6 par exemples). La production mondiale de PCB, cumulée entre 1930 et 1994 a été estimée à 1,3 million de tonnes environ (Breivik *et al.*, 2002).

Des résidus de PCB ont été identifiés pour la première fois dans la chair d'oiseaux marins de l'archipel de Stockholm par Jensen (1966). Compte tenu de la prise de conscience de leur risques environnementaux et sanitaires qu'ils induisent, leur utilisation a été très réglementée, restreinte aux systèmes clos à partir de 1975 ; finalement, leur production a été arrêtée.

En France, la production totale de PCB depuis 1930 est estimée à près de 135 000 tonnes ; cette production, réalisée essentiellement entre 1945-50 avec un pic au début des années 70 a été stoppée en 1987.

La synthèse des PCB conduit théoriquement à 209 composés distincts, les congénères de PCB, qui se différencient par le nombre et la position des atomes de chlore sur la molécule. Un nombre plus limité, environ une centaine d'entre eux sont effectivement retrouvés dans l'environnement. Les **PCB indicateurs** sont ceux qui sont suivis systématiquement dans le cadre de programmes de surveillance et dans cette présente étude : ce sont les congénères PCB28, 52, 101, 118, 138, 153, et 180.

On ne dispose pas d'informations sur les quantités des différents mélanges techniques produites et utilisées en France, ni sur les changements éventuels au cours de la période d'utilisation dans la répartition des parts relatives de ces différents mélanges techniques. Sur la base des données de production des pays de l'OCDE Breivik (2002) a estimé la production globale de PCB et celle de composés individuels ainsi que leur évolution sur la période 1930-1995. Ces estimations constituent ainsi de précieux repères pour évaluer la chronologie des apports en PCB enregistrés dans les sédiments.

Dans le cadre du Réseau National de la Contamination Chimique (ROCCH, ex RNO), les concentrations en PCB dans les mollusques bivalves varient de quelques  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  (poids sec) à plusieurs centaines de  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  ; les niveaux les plus élevés sur l'ensemble du littoral sont mesurés dans les mollusques prélevés à proximité de l'estuaire de la Seine. Dans les sédiments marins côtiers, les concentrations en PCB varient sur une gamme de trois ordres de grandeur : pour le PCB153, congénère majoritaire dans le sédiment, les niveaux de contamination se situent entre 0,2 et à 200  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  (synthèse des données RNO-ROCCh, 608 prélèvements de sédiments côtiers réalisés sur les trois façades sur la période 1994-2006).

**Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)** sont des contaminants de l'environnement préoccupants en raison de leur persistance, de leur capacité à s'accumuler dans les sédiments et dans certains organismes, et de leur caractère cancérigène. Ils sont constitués de plusieurs cycles aromatiques liés par au moins deux atomes de carbone adjacents et peuvent posséder des groupements alkylés dans le cas de HAP naturellement présents dans le pétrole et ses produits dérivés. On distingue les hydrocarbures pétrogéniques, présents dans le pétrole et les combustibles fossiles, des hydrocarbures pyrogéniques, produits lors de combustions, notamment pour la production d'énergie pour l'industrie et les transports ou lors de la combustion incomplète de matière organique (charbon, bois, aliments,...) ou l'incinération des déchets urbains. Ainsi, la présence des HAP dans l'environnement a des origines diffuses, diverses et très largement liées aux activités humaines.

Parmi la multitude de composés du groupe des HAP, l'attention est portée en priorité sur une vingtaine de substances incluant les composés parents (non substitués) reconnus prioritaires en raison notamment de leur caractère cancérigène et certains composés alkylés qui sont potentiellement des témoins d'une contamination récente par les produits pétroliers (transport, raffinage et pétrochimie).

A la différence des PCB, et compte tenu du caractère ancien et chronique de la contamination en HAP, de la multiplicité et de la diversité des sources de contamination, il n'y a pas de repères chronologiques marquants pour les HAP. Plusieurs auteurs (i.e. Budzinski *et al.*, 1997 ; Yunker *et al.*, 2002 ; Leaute, 2008 ; Vane *et al.*, 2011) ont proposé des indices (rapports de concentration de certains des HAP individualisés) permettant de différencier les origines de la contamination des sédiments par les HAP.

Leur caractère hydrophobe, défini par le coefficient de partage octanol-eau ( $K_{ow}$ ) explique l'affinité des HAP pour les tissus biologiques riches en lipides, et pour les particules solides et les sédiments. Ils sont effectivement mesurés à des niveaux élevés dans la chair des bivalves, de 1 à 50  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  poids sec pour le benzo-a-pyrene, de 0,5 à 30  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  pour le fluoranthène (données RNO-ROCC). En revanche, les HAP ne sont pas mesurés dans les tissus d'organismes marins supérieurs car ils sont efficacement biotransformés et éliminés par les crustacés et les poissons. Dans les sédiments marins prélevés en différentes zones le long du littoral métropolitain, les concentrations les plus élevées atteignent quelques  $\text{mg.kg}^{-1}$  poids sec : 10 pour le fluoranthène, 2,3 pour le benzo a pyrène.

**Les polybromo-diphényles éthers (PBDE)** englobent une large famille de composés bromés qui ont été utilisés comme produits retardateurs de flamme dans les textiles, les matériaux isolants, les matières plastiques, l'équipement électronique et informatique et qui sont, par conséquent, largement disséminés dans l'environnement. Différents mélanges techniques ont été utilisés notamment les produits penta, octa et déca bromés. Actuellement c'est le mélange décabromé, qui est principalement utilisé, suite à l'interdiction des mélanges pentabromés en 2001.

Les concentrations en PBDE dans les organismes marins se situent au niveau de quelques  $\text{ng.g}^{-1}$  de chair. Ces substances sont reconnues comme perturbateurs endocriniens. La préoccupation concernant les dérivés bromés est liée à leur détection dans tous les compartiments de l'environnement y compris dans les organismes et, plus important, au constat de l'augmentation très sensible des teneurs environnementales dans la période 1980-2000.

Par ailleurs, il faut noter que si le produit le plus utilisé est le mélange décabromé, donc très majoritairement constitué du composé BDE209, c'est généralement le composé tétrabromé BDE47 qui est détecté en plus forte concentration dans les organismes, reflétant la complexité des processus de dégradation des PBDE et celui de leur transport dans l'environnement. Par ailleurs l'analyse du composé PBDE209 présente de nombreuses difficultés et repose sur un protocole spécifique, différent de celui utilisé pour les autres PBDE. Toutefois, ce congénère n'a pas été recherché dans les sédiments prélevés dans cette étude, alors que d'après des mesures réalisées dans des environnements comparables les niveaux de présence se situeraient à des niveaux bien supérieurs (Johannessen *et al.* 2008 ; Vane *et al.*, 2010) ; ces derniers auteurs ont rapporté des concentrations de 1 à 25  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  pour le PBDE 47 et jusqu'à 2000  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  pour le PBDE209 dans des sédiments de l'estuaire de la Clyde (Ecosse).

Plusieurs **pesticides organochlorés** (OCP) ont été analysés. Pour la plupart, ces composés font partie des POP et leur production et utilisation ont été réglementées ou arrêtées dans les années 1970-1990. Leur persistance explique leur présence dans l'environnement, y compris dans les sédiments.

### 3.6.2 Evolution temporelle des concentrations enregistrées dans les sédiments

#### 3.6.2.1 Les polychloro-biphényles (PCB)

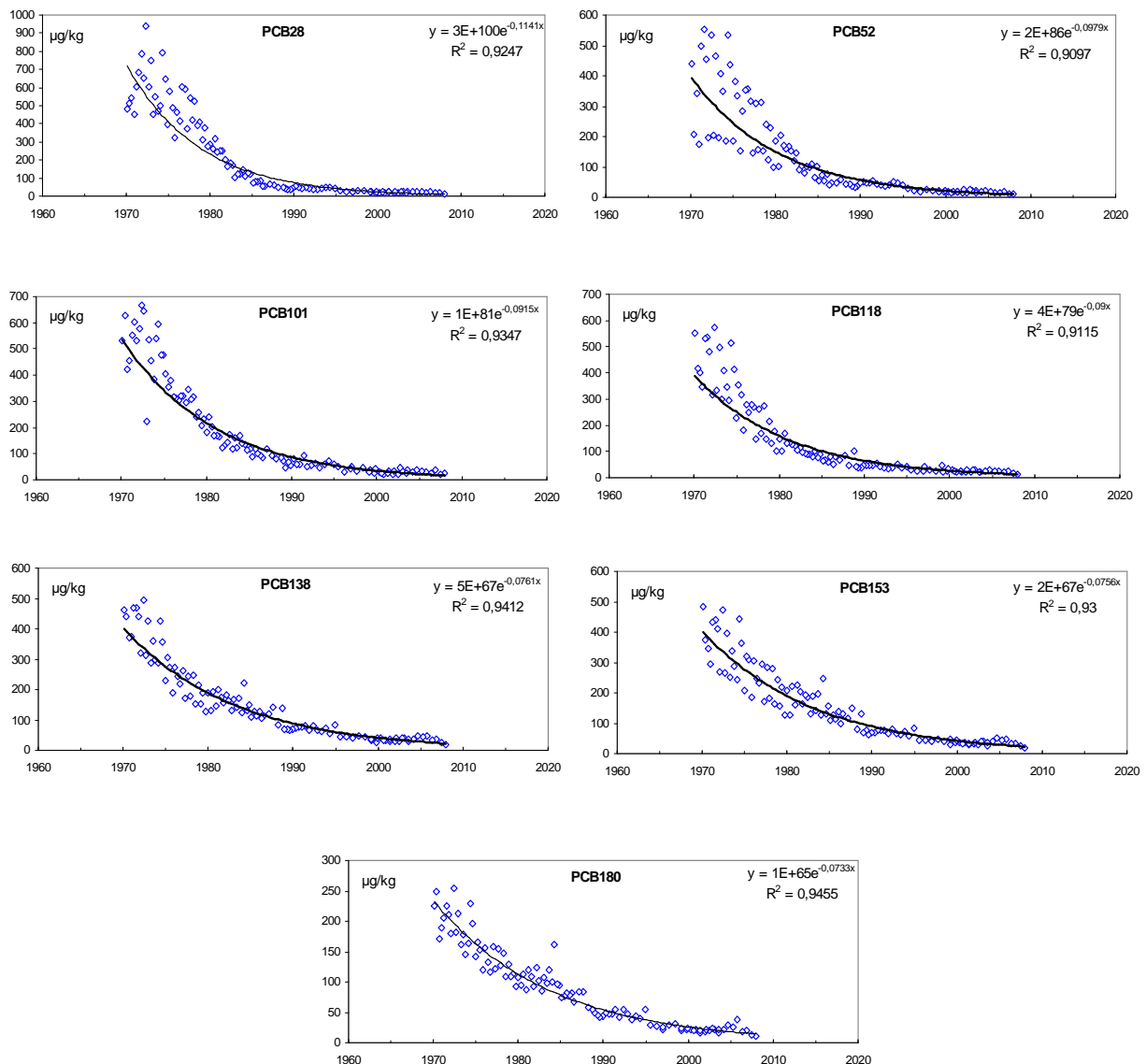
Les différents congénères de PCB sont présents dans les prélèvements de sédiment à des concentrations qui décroissent de niveaux les plus profonds datant de 1970 aux niveaux superficiels récents.

Par analogie à la démarche suivie pour les contaminants métalliques, on peut se référer aux BAC (*background assessment concentrations*) pour définir un enrichissement en contaminants. Ces BAC sont des concentrations de "bruit de fond", donc proches de zéro dans le cas des PCB, qui correspondent aux plus faibles concentrations de PCB mesurées dans des sédiments présumés indemnes de toute contamination. Pour les différents congénères de PCB, ces BAC se situent à ces concentrations de 0,1 à 0,2  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  (poids sec), ce qui conduirait à des facteurs d'enrichissement, variables selon les congénères, de l'ordre de 4000 pour les niveaux de sédiments les plus anciens à environ 65-130 pour les niveaux les plus récents. Cette décroissance de la contamination d'un facteur allant de 20 à 65 entre 1970 et 2010 est illustrée par la Figure 36.



L'enregistrement sédimentaire couvre les apports en PCB dans la période de production et d'utilisation maximales des PCB, aux alentours de 1970-1975 , puis d'utilisation réglementée et limitée progressivement entre 1975-1990 jusqu'à la cessation de leur production en 1987 (France). Leur utilisation a ensuite été strictement réduite aux gros équipements électriques fermés. Ces mesures ne permettent pas de caler précisément le pic de production car elles ont été réalisées dans leur ensemble dans la phase réglementée de l'utilisation des PCB, limitée aux systèmes clos à partir de 1975. On observe sur ces graphes de meilleures corrélations pour les congénères les plus chlorés : PCB180 (7 atomes de Cl/molécule), PCB153 et 138 (6Cl/mol.). Pour ces composés, les décroissances apparentes sont plus lentes en accord avec leur persistance plus élevées.

En première approche, la décroissance de la contamination peut être décrite par une cinétique du premier ordre qui conduirait à des durées de demi-décontamination (temps au bout duquel la contamination a diminué de moitié) comprises entre 6 et 10 ans (Tableau 3) si on considère que le sédiment a parfaitement enregistré la chronologie des apports en PCB.



**Figure 36. Evolution temporelle de la contamination en PCB des sédiments de la Darse des Docks.**

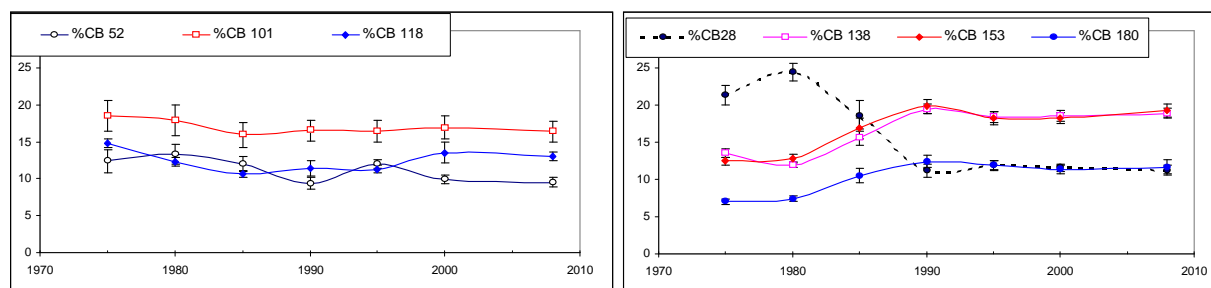
Cette décroissance de la contamination en PCB dans les sédiments entre 1970 et 2010 s'accompagne d'une modification de la composition apparente des congénères (Figure 37), caractérisée par une diminution de l'importance relative du PCB 28, une relative stabilité des composés intermédiaires (PCB52, 101 et 118) et une augmentation relative des congénères les plus chlorés (PCB138, 153 et 180). Différentes hypothèses peuvent expliquer ces évolutions et notamment, la diminution du PCB28 dans les années 80.

(1) *Le caractère labile des composés moins chlorés* : il pourrait entraîner leur élution et ainsi un enrichissement des couches les plus anciennes en PCB28. C'est ce qui est effectivement observé, mais le maximum attendu pour le PCB28 dans les couches les plus anciennes est mesuré dans la période 1975 -1980. On observe de façon très atténuée cette

même augmentation de la contribution du PCB52 aux caractéristiques physico-chimiques peu différentes. Cette période 1970-1980 correspond au maximum de production et d'utilisation des mélanges techniques de PCB, pratiques qui seront ensuite réglementées et réduites.

**Tableau 3. Caractéristiques des tendances évolutives de la contamination en PCB des sédiments ; k : constante de vitesse de décroissance ;  $T_{1/2}$  : période de décontamination en années**

	k	$T_{1/2}$
PCB28 (3 Cl)	0,1141	6,0
PCB52 (4 Cl)	0,0979	7,0
PCB101 (5 Cl)	0,0915	7,5
PCB118 (5 Cl)	0,0900	7,7
PCB138 (6 Cl)	0,0761	9,1
PCB153 (6 Cl)	0,0756	9,1
PCB180 (7 Cl)	0,0733	9,4



**Figure 37. Evolution de la composition des PCB entre 1970 et 2010. Il s'agit de la composition pour chacun des PCB ( $\%CB_i = 100 \cdot PCB_i / \text{Somme } 7PCB$ ) et ce sont les valeurs moyennes calculées tous les 5 ans qui sont représentées.**

(2) *une modification de la production et de l'utilisation des mélanges techniques de PCB* avec une restriction des formulations les plus chlorées reconnues plus persistantes et bioaccumulables. Cela se traduirait, avec quelques années de décalage, par l'observation d'une augmentation relative des PCB 28 et 52 mais aussi par une diminution des PCB les plus chlorés (CB138,153 et 180) ce que ne confirment pas les mesures, notamment dans le cas de ces congénères les plus chlorés dont la composition augmente. La comparaison des taux de chloration d'après les chiffres de production des PCB manufacturés dans les pays de l'OCDE (Breivik *et al.*, 2002) et donc vraisemblablement du même ordre que ceux produits et utilisés en France (données non accessibles ou inexistantes) ne vont pas dans le sens des mesures réalisées sur les sédiments.

(3) *la dégradation des PCB les moins persistants* et inversement l'augmentation des congénères les plus chlorés (PCB138, 153, 180) ce que montrent les mesures.

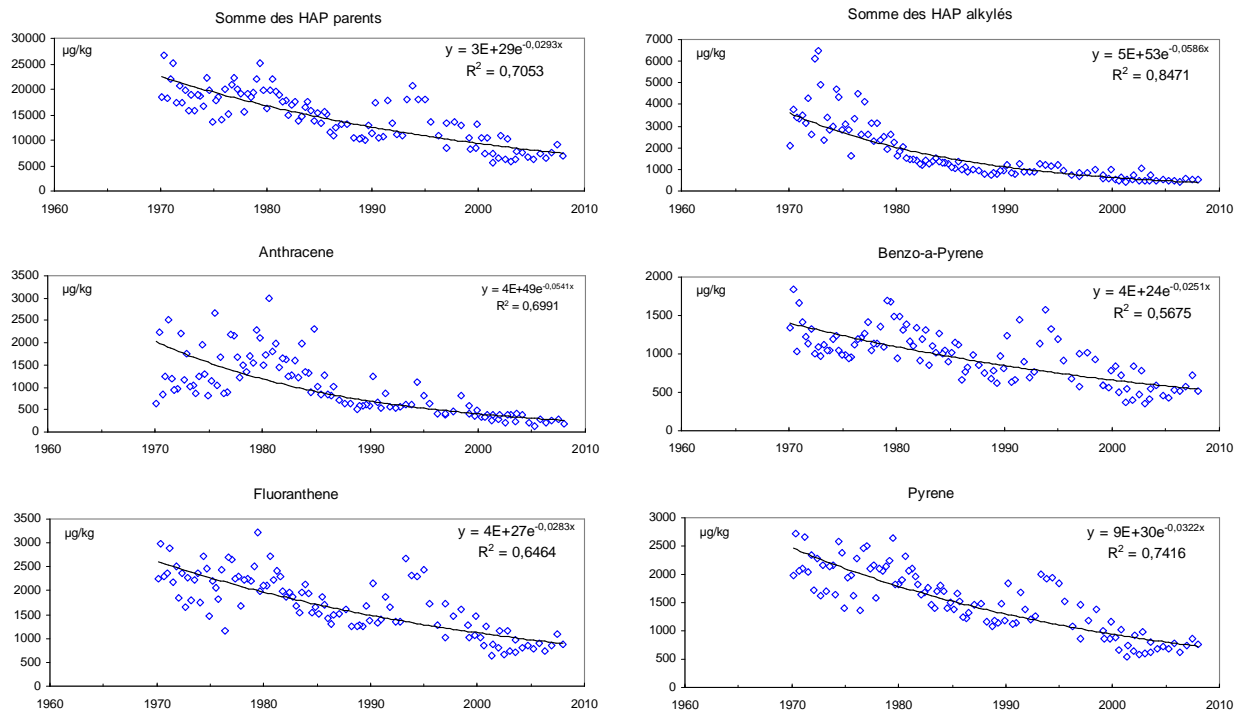
Il est important de prendre en compte que les mesures du PCB28 peuvent être affectées d'incertitudes importantes du fait d'interférences lors de l'analyse notamment avec le PCB50 mais a priori de façon insignifiante compte tenu de la très faible concentration de ce constituant dans les mélanges techniques, mais davantage par le PCB31 présent à des niveaux comparables à ceux du PCB 28. Par ailleurs, un fait moins connu, qui n'a rien à voir avec l'utilisation des PCB au cours de la période 1970-1990, est la présence à Oissel, bien en amont du site d'étude, d'un rejet industriel qui présentait des niveaux exceptionnellement élevés de résidus de fabrication de colorants et d'autres substances parmi lesquelles un congénère de PCB. Ce rejet de sous-produits de synthèse de colorant, a pollué la Seine et ses sédiments à proximité de l'exutoire et les matières particulaires en suspension véhiculées par le fleuve à des niveaux exceptionnellement élevés. On peut de nouveau suspecter des interférences de ce composé lors de la mesure du PCB28.

Il semble donc qu'il faille rester prudent sur l'interprétation des résultats de mesures. On retiendra donc sur la base des mesures des congénères PCB 52, 101, 118, 138, 153 et 180 que la contamination en PCB des sédiments et donc des apports est maximale dans la période 1970-1975 ; elle décroît relativement rapidement jusque vers les années 1995 à partir de laquelle reste relativement stable ou décroissante mais très lentement. Le modèle, selon une loi de décroissance exponentielle, est une approche pratique permettant l'estimation de durée de demi-décontamination entre 7 et 9,5 ans environ, mais cette décontamination semble se produire en plusieurs phases selon des cinétiques distinctes.

#### 3.6.2.2 *Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP).*

Dans les sédiments, les concentrations en HAP parents (HAP non substitués) varient entre la centaine et quelques milliers de  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  ; les constituants à 2 ou 3 cycles (naphtalène, acénaphthène, acénaphthylène, fluorène) plus volatils sont peu abondants. Là encore si on considère les concentrations de référence de quelques  $\mu\text{g}$  ou dizaines de  $\mu\text{g.kg}^{-1}$ , (concentrations en HAP mesurées dans un sédiment profond datant de la période préindustrielle, par exemple), les facteurs d'enrichissement seraient de 35-90 pour le benzo a pyrène, 30-95 pour le pyrène, 40-120 pour le fluoranthène , 10-30 pour l'indéno-pyrène.

Comme dans le cas des PCB, les niveaux de HAP dans les sédiments présentent des allures décroissantes, représentées pour quelques-uns des HAP (Figure 38).



**Figure 38. Evolution temporelle de la contamination en HAP des sédiments de la Darse des Docks.**

Toutefois, cette décroissance est beaucoup plus lente compte tenu d'apports en PAH qui restent importants, diffus et beaucoup plus difficiles à contrôler (production d'énergie, pétrochimie, incinération), à la différence de ceux des PCB. Cette diversité des sources de contamination par les HAP explique aussi la variabilité selon les constituants. Du fait de l'importance des hydrocarbures dans nos sociétés, la diminution des apports de HAP dans le sédiment est plus lente et moins régulière que celle observée pour les PCB ; le temps au bout duquel la contamination aurait diminuée de moitié serait de 12 à 35 ans (Tableau 4) à l'exception du cas particulier des composés volatils comme l'acénaphylène (41 ans).

Les hydrocarbures alkylés reflètent la présence d'une pollution d'origine pétrolière. L'évolution des niveaux de présence en méthyl-chrysène, méthyl naphthalène, méthyl-phénanthrène et méthyl dibenzo-thiophènes (Figure 39) montre que les pollutions de ce type (transport pétrolier, raffinage) sont mieux maîtrisées depuis une trentaine d'années.

Tableau 4. Caractéristiques des tendances évolutives de la contamination en HAP des sédiments ; k : constante de vitesse de décroissance ; r<sup>2</sup> : coefficient de corrélation ; T<sub>1/2</sub> : période de décontamination en années.

	k	r <sup>2</sup>	T <sub>1/2</sub>		k	r <sup>2</sup>	T <sub>1/2</sub>
Naphtalène	0,0454	0,76	15,2	Triphénylène+chrys.	0,0282	0,69	24,5
Acénaphthylène	0,0168	0,31	41,1	BbF+BkF+BjF*	0,0270	0,67	25,6
Acénaphthène	0,0334	0,52	20,7	Benzo-e-pyrène	0,0301	0,74	22,9
Fluorène	0,0375	0,69	18,4	Benzo-a-pyrène	0,2510	0,57	27,5
Phénanthrène	0,0321	0,68	21,5	Pérylène	0,0200	0,38	34,5
Anthracène	0,0541	0,70	12,8	Indéno pyrène	0,0220	0,50	31,4
Fluoranthène	0,0283	0,65	24,4	Benzo-ghi-pérylène	0,0236	0,57	29,2
Pyrène	0,0322	0,71	21,4	Somme HAP parents	0,0293	0,71	23,5
Benzo-a-anthrac.	0,0244	0,55	28,3	Somme HAP alkylés	0,0586	0,85	11,8

\*Somme Benzo fluoranthènes b, j, k,

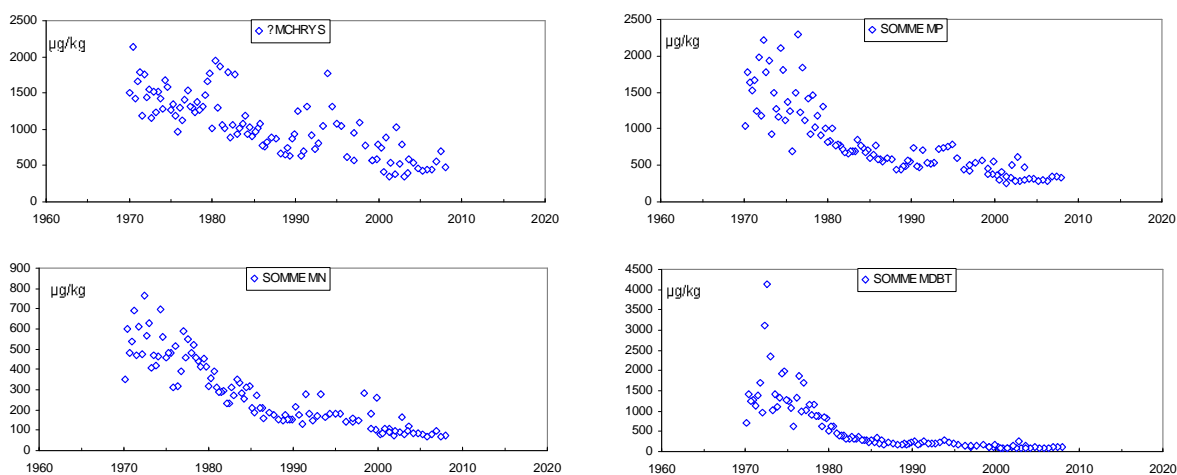


Figure 39. Evolution temporelle de la contamination en HAP alkylés des sédiments de la Darse des Docks.

Selon les indices proposés pour catégoriser la contamination par les hydrocarbures, elle a pour origine essentielle la combustion de combustibles (charbon, bois et/ou pétrole). On observe que ces rapports restent sensiblement constants sur l'ensemble des sédiments (Tableau 5).

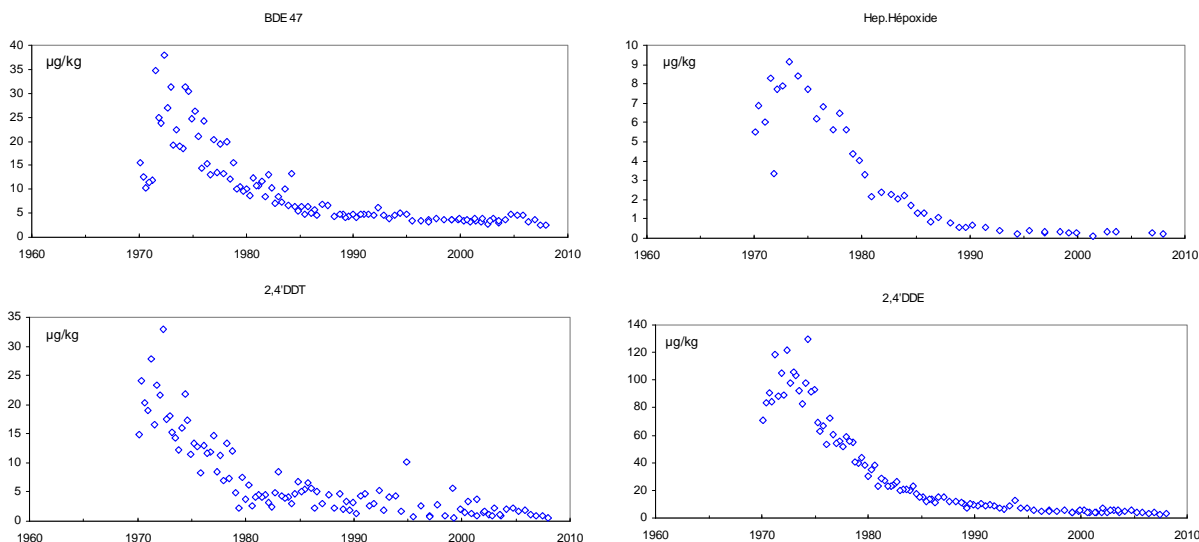
Tableau 5. Rapports isomériques des PAH dans les sédiments de la Darse des Docks (d'après Vane *et al.*, 2012 ; moyenne des rapports pour chacune des périodes données. A : anthracène ; Ph : phénanthrène ; Fa : fluoranthène ; P : pyrène ; BaA : benzo-a-anthracène ; C : chrysène ; IP : indéno-pyrène ; BP : benzo-ghi-pérylène).

	HAP/ (HAP+HAP alk)	A/(A+Ph)	Fa/(Fa+P)	BaA/(BaA+C)	IP/(IP+BP)
<i>Réf. pétrole</i>		<0,1	<0,4	<0,2	<0,2
<i>Réf. combustion</i>		>0,1	>0,5	>0,35	>0,5
1970-1975	0,14 - 0,18	0,47 - 0,53	0,61 - 0,670	0,42 - 0,45	0,55 - 0,60
1975-1980	0,11 - 0,15	0,53 - 0,60	0,55 - 0,62	0,43 - 0,46	0,54 - 0,58
1980-1985	0,08 - 0,08	0,60 - 0,65	0,53 - 0,58	0,42 - 0,43	0,51 - 0,52
1985-1990	0,07 - 0,08	0,50 - 0,56	0,64 - 0,69	0,42 - 0,44	0,51 - 0,54
1990-2000	0,04 - 0,09	0,39 - 0,47	0,69 - 0,76	0,44 - 0,46	0,54 - 0,59
2000-2008	0,06 - 0,07	0,38 - 0,43	0,73 - 0,77	0,45 - 0,47	0,56 - 0,59

### 3.6.2.3 Les polybromodiphényléthers (PBDE) et les pesticides organochlorés.

Plusieurs substances ont été mesurées individuellement, ou avec d'autres, lorsque la résolution du système chromatographique ne permettait pas de les discriminer ; elles présentent de ce fait un intérêt limité pour une estimation de la chronologie des apports. Pour toutes ces substances, quelques exemples sont donnés (Figure 40) ; les niveaux sont à la baisse, surtout à partir des années 1975-1980.

Le PBDE47 est présent dans le sédiment à des concentrations entre 5 et 40  $\mu\text{g.kg}^{-1}$ , il n'est cependant pas représentatif des PBDE. Les concentrations en PBDE 99 et 153 varient dans le domaine 1-25 et 0,5-4  $\mu\text{g.kg}^{-1}$  respectivement, sans révéler une quelconque tendance sur la période considérée. Les PBDE seraient potentiellement de bons marqueurs de la chronologie des apports compte tenu de leur usage récent, de 1950 à 2000 environ. D'autres substances comme le lindane (gamma-Hexachlorocyclohexane) ou le HCB (hexachlorobenzène) sont relativement solubles et sont présentes à des niveaux faibles dans le sédiment entre 0,2 et 2  $\mu\text{g.kg}^{-1}$ .



**Figure 40. Evolution temporelle de la contamination par le PBDE47 et quelques pesticides organochlorés dans les sédiments de la Darse des Docks.**

Divers pesticides organochlorés (OCP), ont été mesurés montrant des tendances à la baisse bien marquées. Les OCP ont fait l'objet de réglementations restreignant ou interdisant leur usage dès le début des années 70 se traduisant par une diminution de la contamination. C'est le cas du DDT, pour lequel nous ne disposons d'informations utilisables que pour les isomères 2'4 DDT et 2'4'DDE alors que les formes 4'4' sont prédominantes dans les produits utilisés par le passé.

### 3.6.3 Les concentrations mesurées dans les carottes sont-elles représentatives de celles mesurées dans les matières en suspension ?

#### 3.6.3.1 Comparaison des concentrations en contaminants organiques dans les sédiments RHAPSODIS avec celles mesurées par la Cellule Anti-Pollution dans les matières en suspension.

A la différence des éléments métalliques, les PCB et les HAP n'ont pas été suivis systématiquement dans les MES par la Cellule Anti-pollution du Service de la Navigation de la Seine. Il est donc impossible de comparer les concentrations mesurées dans les carottes avec celles mesurées dans les matières en suspension pour statuer de la représentativité de l'enregistrement sédimentaire pour retracer l'historique des concentrations en contaminants organiques dans les matières en suspension du haut estuaire de la Seine. A défaut, des comparaisons ont été tentées avec d'autres séries, notamment celles obtenues dans le cadre du RNO-ROCCh.



### 3.6.3.2 Comparaison avec d'autres séries

Indépendamment des mesures de contaminants dans les sédiments les séries temporelles obtenues sur les moules dans le cadre du RNO-ROCCh mettent bien en évidence la décroissance de la contamination de l'estuaire et de la baie de Seine. L'exemple donné concerne le site de Villerville, à proximité de l'estuaire et montre la décroissance de cette contamination sur la période 1980-2005 (Figure 41) ; l'estimation grossière conduit à une diminution d'un facteur 2 de cette contamination au bout de 25 ans.

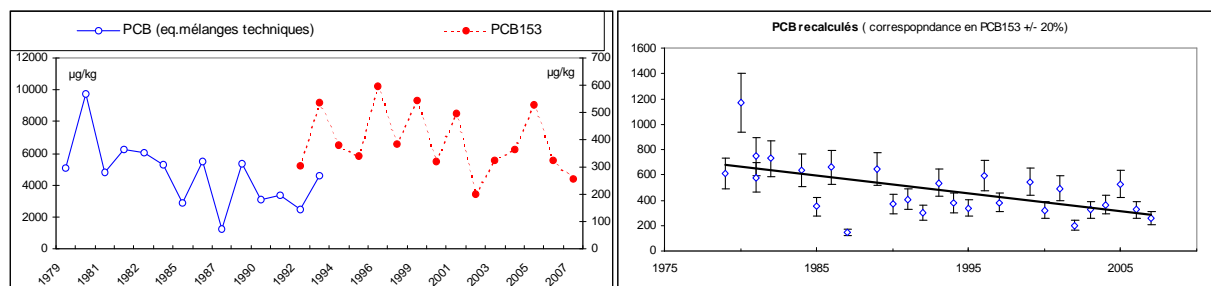


Figure 41. Evolution de la contamination en PCB mesurés dans les moules de Villerville sur la période 1980-2005. Les concentrations en PCB sont recalculées en utilisant un coefficient correctif pour tenir compte du changement du mode d'analyse des PCB et de l'expression des concentrations, d'équivalent de mélanges techniques au composé individuel en 1992.

Les analyses rétrospectives (selon un même protocole analytique) confirment ces observations et montrent que la contamination par les PCB de moules de collectées à proximité de l'estuaire de la Seine a diminué de moitié en ( $t_{1/2}$  : 15,6 ans) sur la période 1980-2005 (Johansson, 2006). Pour les sédiments de la Darse des Docks cette décontamination apparente s'opère en 7-10 ans environ. Ces suivis par des mesures dans les mollusques, en milieu marin, ne permettent de caler directement la chronologie des apports en contaminants au niveau de Rouen par les MES, à Rouen.

### 3.7 Existe-t-il une relation entre la diversité microbienne et le niveau de contamination chimique le long de la carotte ?

La première partie du volet microbiologique de ce projet vise à évaluer l'impact de la contamination chimique sur l'évolution de la diversité microbienne des sédiments. La démarche développée repose sur une approche d'écologie moléculaire basée sur l'étude du génome des communautés microbiennes (métagénome) qui permet de s'affranchir des biais liés à la cultivabilité des microorganismes. Les microorganismes cultivables ne représentent en effet qu'un faible pourcentage de la communauté totale et l'approche moléculaire permet d'accéder à la fraction non cultivable de cette communauté.

### 3.7.1 Optimisation de l'extraction des acides nucléiques

L'extraction et la purification des acides nucléiques constituent une étape cruciale pour l'étude du métagénome microbien. Ces étapes ont été optimisées en raison de l'hétérogénéité du sédiment (gradient de pH, teneur en eau) et des variations importantes des concentrations en contaminants métalliques et organiques observées le long de la carotte. Deux protocoles d'extractions et trois protocoles de purification ont été testés afin d'obtenir le meilleur rendement possible ainsi que des acides nucléiques exempts de contaminants co-purifiés susceptibles d'interférer avec les analyses ultérieures. Les deux kits d'extraction reposent sur le principe d'une lyse mécanique et chimique des microorganismes *in situ*. Les extractions réalisées à partir de 0,5 g de deux échantillons sédimentaires montrent que les rendements obtenus à l'aide du kit FastDNA® (Bio 101) couplé au système FastPrep FP120 (bead-beating) sont meilleurs que ceux obtenus en utilisant le protocole du kit PowerSoil® DNA Isolation (MOBIO) (Figure 42).

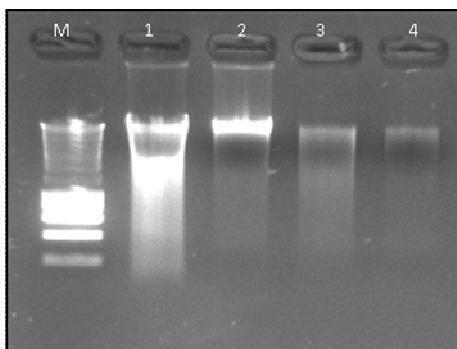


Figure 42. Rendement d'extraction de l'ADN génomique en utilisant deux kits FastDNA (BIO 101) et PowerSoil (MO BIO). M, marqueur de taille Smartladder (Eurogentec) ; 1 et 2, ADN génomiques des échantillons 1 et 2 extraits par le protocole BIO 101 ; 3 et 4, ADN génomiques des échantillons 1 et 2 extraits par le protocole MO BIO.

Trois techniques de purification ont été testées (chromatographie d'affinité): (i) colonnes "Elutip-D" (Schleicher & Schuell), (ii) kit QIAamp DNA stool (Qiagen) et (iii) colonnes "AllPrep" (Qiagen). La pureté de l'ADN a été estimée par la détermination du rapport de l'absorbance à 230 nm, 260 nm et 280 nm. Des rapports A260/A230 et A260/A280 compris entre 1,7 et 2 correspondent à une pureté optimale de l'ADN. Les résultats montrent que les rapports A260/A280 et A260/A230 obtenus à l'issue de cette étape de purification indiquent la présence de contaminants co-extraits avec les acides nucléiques. A l'issue de l'étape de purification, les rapports obtenus avec les colonnes "AllPrep" sont meilleurs que ceux obtenus avec les 2 autres colonnes de purification (Tableau 6). Afin de vérifier la qualité des acides nucléiques extraits et purifiés, une amplification par PCR du gène codant l'ARNr 16S a été réalisée à partir du même échantillon d'acides nucléiques purifié par les 3 différentes techniques. Pour une quantité d'ADN équivalente analysée, la Figure

43 montre que l'intensité de la bande correspondant à l'*ADNr 16S* amplifié est plus importante à partir de l'ADN purifié avec les colonnes AllPrep comparativement aux deux autres techniques. Les protocoles d'extraction « FastDNA » et de purification « AllPrep » ont donc été retenus pour analyser la totalité des échantillons de la carotte.

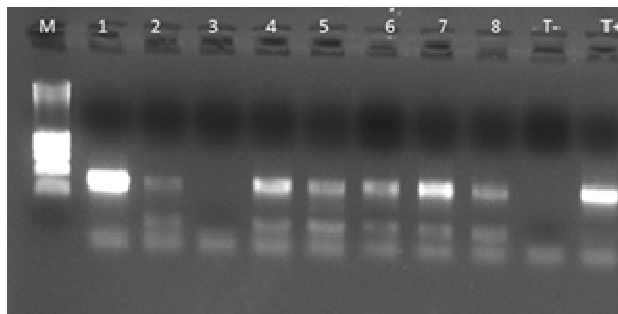


Figure 43: Amplification de l'*ADNr 16S* à partir des acides nucléiques purifiés selon trois différents protocoles. M, marqueur de taille Smartladder (Eurogentec); T+, ADN génomique d'une souche bactérienne; T-, témoin négatif ; puits 1, 10 ng échantillon 1 AllPrep ; puits 2, 1 ng échantillon 1 AllPrep ; puits 3, 0.1 ng échantillon 1 AllPrep ; puits 4, 10 ng échantillon 1 Elutip-D; puits 5, 1 ng échantillon 1 Elutip-D ; puits 6, 0.1 ng échantillon 1 Elutip-D; puit 7, 10 ng échantillon 1 QIAamp DNA stool ; puits 8, 1 ng échantillon 1 QIAamp DNA stool.

Tableau 6. Comparaison de purifications des acides nucléiques de deux échantillons (Ech A et Ech B) de la carotte sédimentaire.

	Extraction sans purification		Purification AllPrep		Purification Elutip-D		Purification QIAamp DNA stool	
	$A_{260}/A_{230}$	$A_{260}/A_{280}$	$A_{260}/A_{230}$	$A_{260}/A_{280}$	$A_{260}/A_{230}$	$A_{260}/A_{280}$	$A_{260}/A_{230}$	$A_{260}/A_{280}$
Ech. A	0,26	1,42	0,58	1,78	0,32	1,58	0,42	1,61
Ech. B	0,11	1,64	0,33	1,83	0,18	1,72	0,34	1,75

### 3.7.2 Estimation de l'abondance bactérienne en fonction de l'âge des sédiments

L'impact des contaminants métalliques et organiques sur les abondances des deux groupes de microorganismes, bactéries et archées, a été évalué en quantifiant le gène codant l'ARNr 16S (*ADNr16S*) dans l'ADN total extrait des sédiments. Par la suite, la détection ou quantification de gènes de résistance sera toujours comparée à la valeur, « nombre de

copies d'*ADNr16S* », afin d'intégrer des variations des biomasses microbiennes le long de la carotte.

Le long de la carotte prélevée en 2008, l'abondance bactérienne évaluée par le nombre de copies d'*ADNr 16S* est de l'ordre de  $7,77 \cdot 10^7 \pm 2,35 \cdot 10^6$  copies par gramme de sédiment sec (g.s.s) (Figure 44). Dans les sédiments datés de 1970, cette abondance bactérienne diminue d'un facteur 10 ( $6,31 \cdot 10^6 \pm 2,33 \cdot 10^5$  copies/g.s.s). L'évolution de l'abondance des archées est similaire avec en 2006,9, un nombre de copies de l'*ADNr 16S* de l'ordre de  $2,95 \cdot 10^6 \pm 8,89 \cdot 10^4$  copies/g.s.s qui diminue d'1 Log dans les sédiments à partir de 1983,3. L'analyse de la variance par un test non paramétrique (test Kruskal-Wallis,  $\alpha > 0,05$ ) montre que la différence de l'abondance microbienne le long de la carotte est significative.

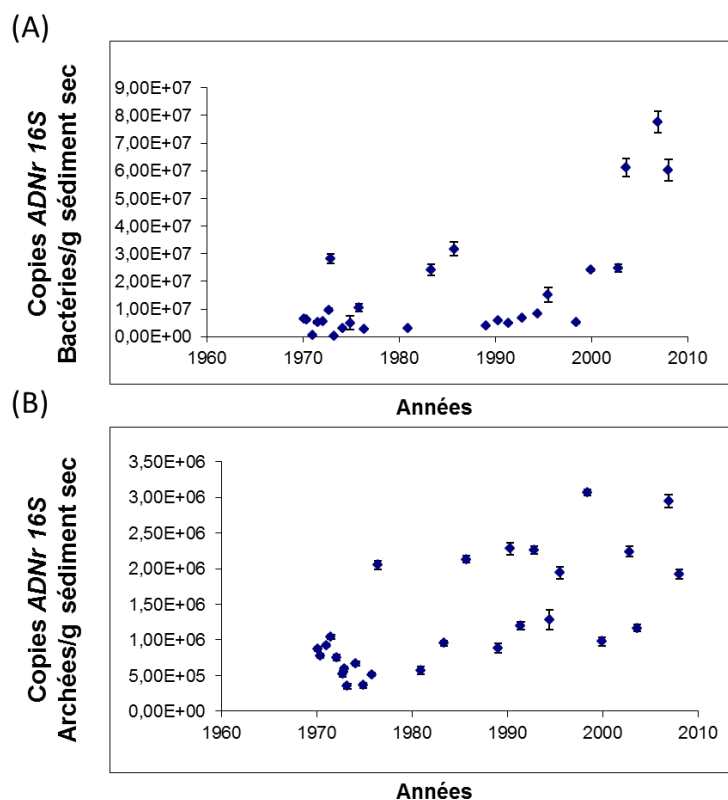


Figure 44. Détermination de l'abondance de (A) bactéries et (B) d'Archées (exprimé en nombre de copies d'*ADNr 16S*/g sédiment sec) dans les sédiments de la carotte RHAPSODIS.

### 3.7.3 Etude de la structure des communautés microbiennes par empreinte moléculaire

L'impact de la contamination organique et métallique sur l'évolution de la diversité spécifique des communautés microbiennes des sédiments (bactéries et archées) a été évalué le long de la carotte. L'empreinte génétique de la communauté microbienne pourrait refléter ce gradient de contamination et ainsi servir d'indicateur.

La stratégie adoptée pour l'étude de cette diversité repose sur la combinaison de deux techniques de biologie moléculaire basées sur l'étude des séquences de l'*ADNr 16S*. La diversité spécifique des bactéries et des archées a été analysée dans un premier temps par une technique d'empreinte moléculaire appelée DGGE (Denaturing Gel Gradient Electrophoresis) qui permet de mettre en évidence des éventuelles variations de la structure des communautés microbiennes induites par les concentrations des contaminants. Cette technique repose sur l'amplification par PCR de l'*ADNr 16S* (bactéries et archées) des communautés microbiennes, suivie d'une séparation des amplicons obtenus en fonction de leur composition nucléotidique par une technique électrophorétique (gradient de dénaturation). L'empreinte moléculaire obtenue reflétera ainsi la diversité spécifique de l'échantillon analysé.

Afin de minimiser les variations liées à l'hétérogénéité du sédiment, les profils DGGE ont été obtenus à partir d'acides nucléiques issus de trois amplifications indépendantes pour chaque échantillon analysé. Nous avons également pris la précaution de déposer la même quantité d'*ADNr 16S* amplifié pour la totalité des échantillons afin de s'assurer que les modifications observées n'étaient pas imputables à des variations liées à l'efficacité d'amplification du gène cible compte tenu des gradients importants en contaminants chimiques observés le long de la carotte. Ces précautions nous permettent ainsi de comparer les structures génétiques des communautés de différents échantillons présentant des caractéristiques physico-chimiques très contrastées.

L'analyse DGGE a été effectuée selon le mode opératoire décrit par Muyzer et al, 1996 et les conditions expérimentales de Zwart et al, 1998. Les profils obtenus ont ensuite été analysés par le logiciel GelCompar (Applied Maths, Belgique) afin de déterminer l'intensité et la position relative de chaque bande sur chaque profil. A partir des matrices de similarités obtenues, une classification ascendante hiérarchique (CAH) des profils DGGE a été réalisée en utilisant le coefficient de Pearson et la méthode de lien moyen (Figure 45). Les tests statistiques non paramétriques ( $\alpha=0,05$ ) effectués sur les profils DGGE de l'*ADNr 16S* des bactéries permettent de distinguer 2 clusters en fonction des concentrations en métaux traces et en HAP: le premier regroupe majoritairement des sédiments anciens des années 1970 et 1980 et pour lesquels les concentrations en contaminants métalliques et organiques sont plus importantes et le second regroupe les sédiments des années 1990 et 2000 qui correspondent aux sédiments les moins contaminés (Figure 45). Ce résultat indique que la structure des communautés bactériennes des sédiments a évolué en fonction de l'historique de la contamination et reflète ainsi la contamination chimique du bassin versant. Dans des sédiments de fjord Norvégiens exposés depuis plus de 80 années par des métaux traces (cadmium, cuivre, plomb, et zinc) et pour lesquels un gradient de

contamination était observé, Gillan et al (2005) ont montré par une approche DGGE un impact des métaux traces sur l'évolution de la structure des communautés microbiennes. Toutefois, la diversité spécifique était comparable à celle d'un sédiment non contaminé suggérant une résilience des communautés impactées par ces métaux traces. Les résultats obtenus à partir de la carotte RHAPSODIS suggèrent également une résilience des communautés notamment dans les sédiments les plus anciens et les plus contaminés puisque nous n'observons pas une diminution du nombre de bandes sur les profils.

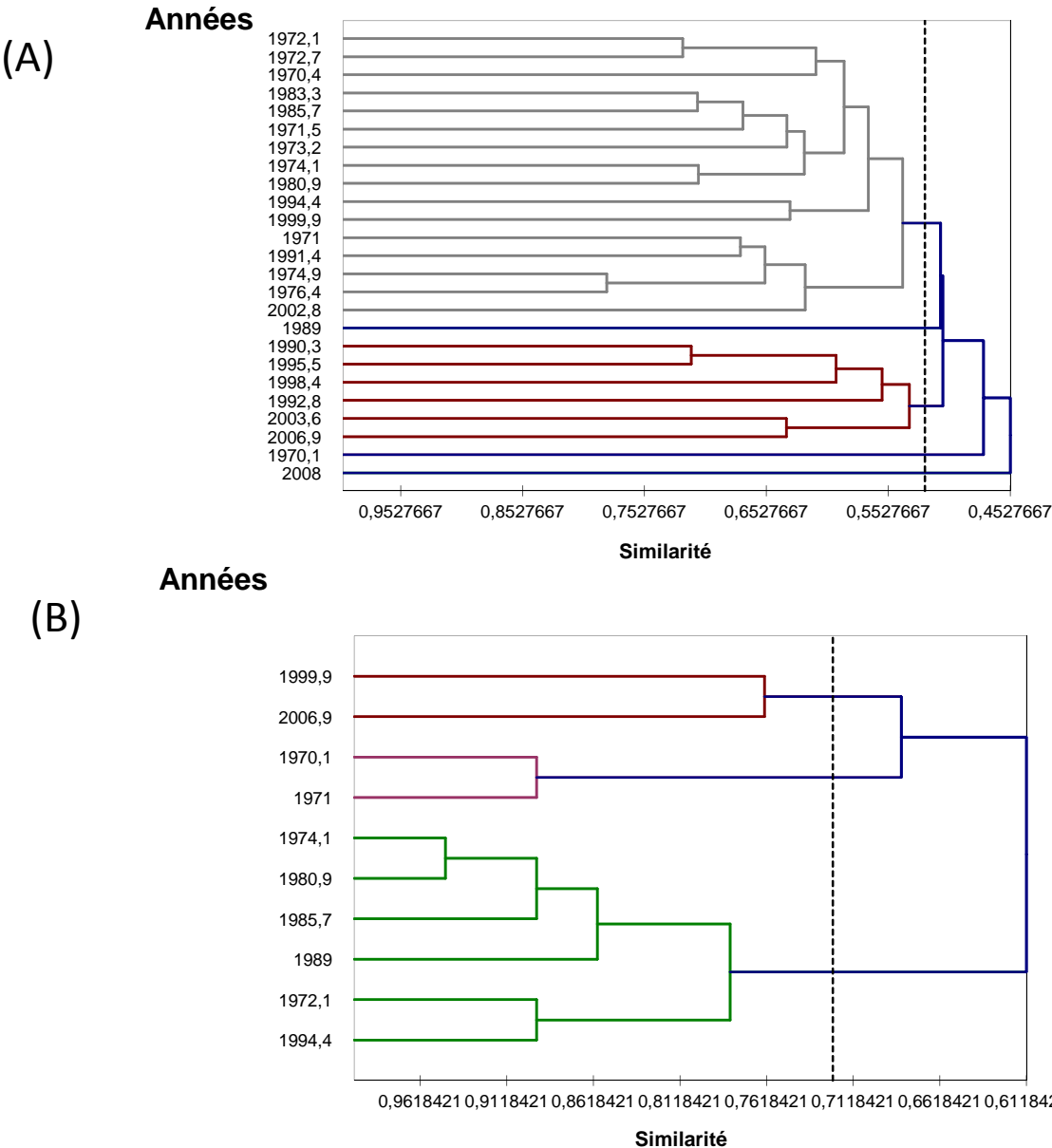


Figure 45. Classification ascendante hiérarchique des profils DGGE obtenus à partir de l'ADNr 16S des Bactéries (A) et des Archées (B) dans les sédiments de la carotte.

L'analyse des structures des communautés d'archées a également été réalisée par DGGE sur 10 échantillons couvrant l'ensemble de la carotte (Figure 45). L'étude de cette communauté a fait l'objet d'un développement méthodologique afin d'obtenir un jeu d'amorces permettant de cibler le maximum d'espèces. L'analyse des profils par clusterisation montre une modification de la structure des communautés en fonction de l'âge des sédiments. Deux clusters regroupent les échantillons les plus anciens (1970,1 et 1971) et les plus récents (1999,9 et 2006,9) alors que les autres échantillons sont regroupés dans un même cluster. Les analyses statistiques réalisées sur les profils DGGE des archées montrent que les concentrations en HAP et métaux traces ne permettent pas d'expliquer la structuration des communautés d'Archées. Ce résultat suggère l'existence d'autres paramètres qui influent sur la structure de ces communautés.

#### 3.7.4 Etude de la diversité des communautés microbiennes par puces phylogénétiques (Phylochips)

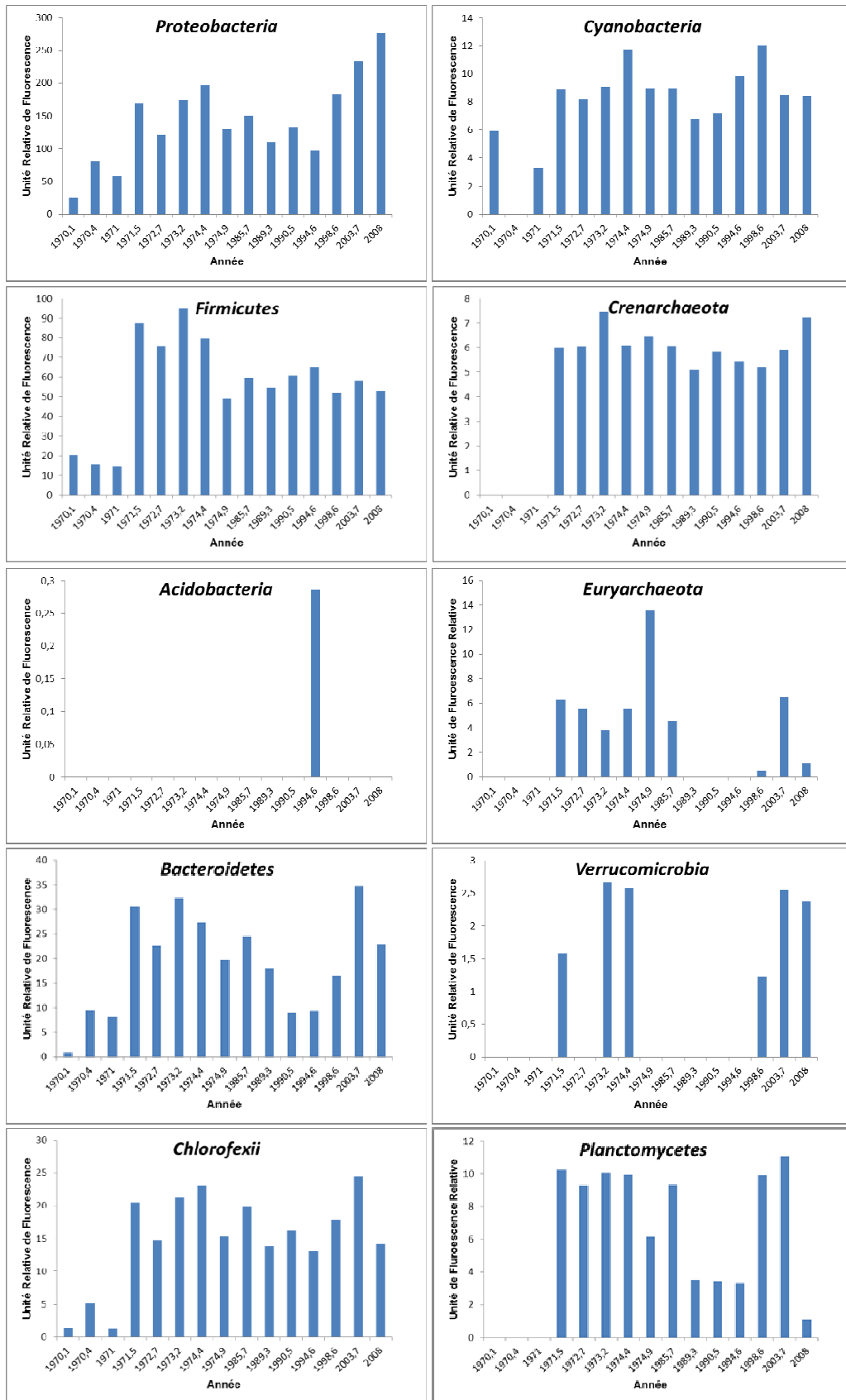
L'approche DGGE permet d'étudier l'évolution de la structure génétique des communautés microbiennes de plusieurs échantillons sans pour autant permettre l'identification des espèces présentes. Cette démarche a donc été complétée par une étude de la diversité spécifique à l'aide de "puces à ADN" qualifiées de taxonomique ou phylogénétique (Phylochip). Ce travail a été réalisé en collaboration avec l'équipe « Génomique Microbienne Environnementale » du laboratoire Ampère de l'Ecole Centrale de Lyon (P. Simonet, S. Cécillon) à partir de sédiments pour lesquels nous avons montré des modifications de structure de communautés par DGGE.

Cette approche repose successivement sur l'extraction de l'ADN total des communautés microbiennes des sédiments, suivie de l'amplification d'une partie plus ou moins longue l'ADNr 16S grâce à des amorces définies selon le niveau de spécificité souhaité et de l'hybridation des produits PCR contre des oligo-sondes préalablement définies, synthétisées *ex situ* puis greffées sur la lame ou directement synthétisées sur la puce. La puce porte donc des oligonucléotides de séquences spécifiques de chaque espèce. Les signaux de fluorescence issus de l'hybridation sont quantifiés permettant ainsi de détecter la présence de bactéries des différentes espèces représentées sur la puce ADN et d'évaluer leurs quantités relatives (Glaser, 2005).

Les puces qui ont été utilisées permettent de cibler à la fois les bactéries et les archées ; les résultats obtenus peuvent être interprétés à l'échelle du phylum, de la classe, de l'ordre, de la famille, du genre ou de l'espèce. L'évolution de la proportion de chaque phylum au sein de chaque échantillon est présentée sur la (Figure 46) et montre une

modification des diversités des communautés en fonction de l'âge des sédiments. Trois catégories de sédiments peuvent être distinguées (dépôts compris entre 1970-1975, 1995 et postérieurs à 2000).





Voir légende page suivante

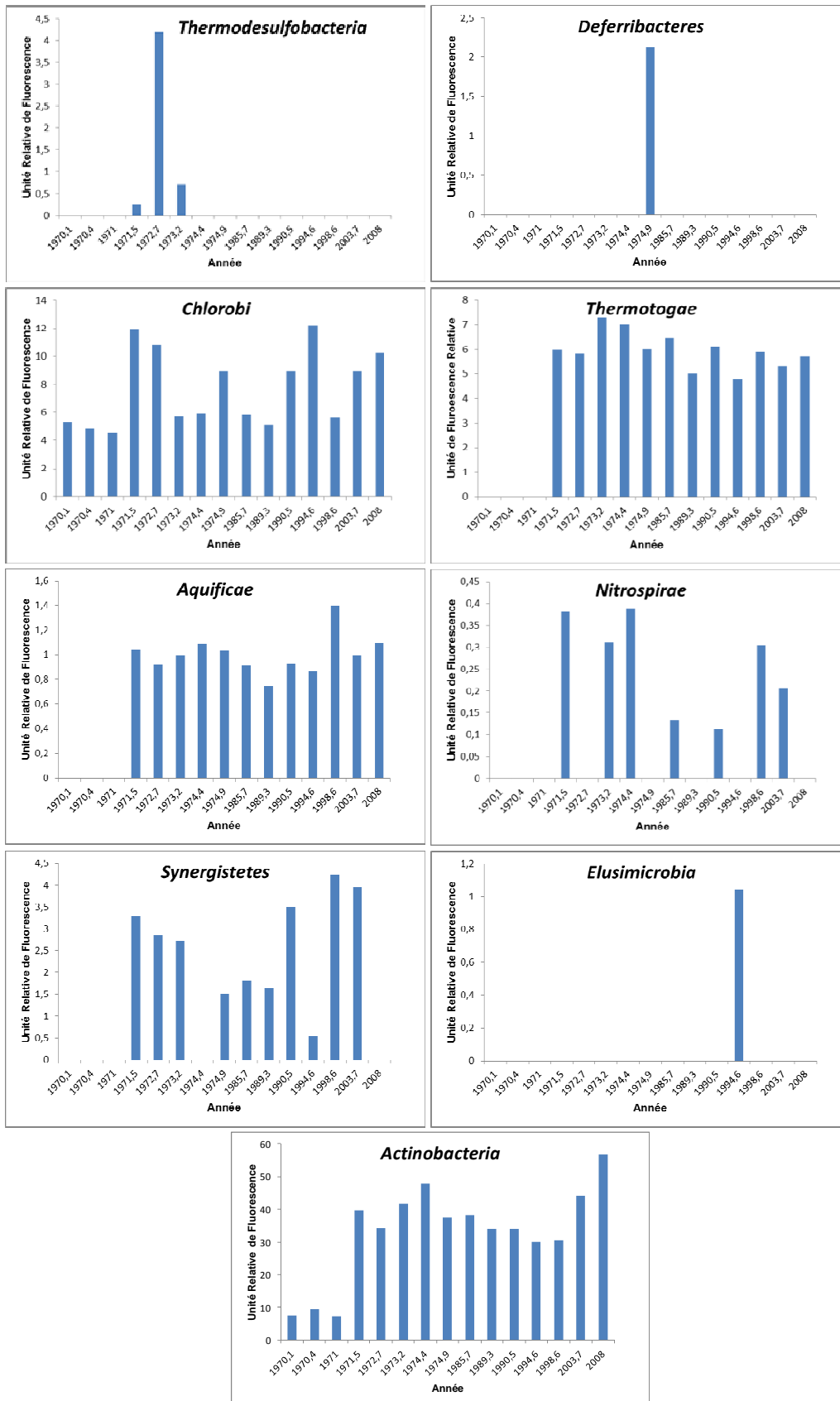


Figure 46. Abondance relative de chaque phylum (Bactéries et d'Archées) obtenus au sein de la communauté microbienne des sédiments de la carotte RHAPSODIS. L'intensité des signaux de fluorescence obtenus par la puce phylogénétique (Phylochips, exprimés en Unité Relative de Fluorescence) est proportionnelle à l'abondance des phylums ciblés.

Les sédiments correspondant aux dépôts des années 1971,5-1974,9 sont caractérisés, au niveau des archées, par un enrichissement en *Euryarchaeota* qui deviennent minoritaires après les années 1990. A l'inverse, les *Crenaechaeta* sont identifiées le long de la carotte à l'exception des sédiments de 1970,1, 1970,4 et 1971. Concernant les bactéries, les phylums *Thermodesulfobacteria* et *Deferribacteres* sont exclusivement représentés dans les sédiments déposés respectivement entre 1971,5-1973,2 et en 1974,9. La présence de ces phylums dans ces sédiments peut s'expliquer par leur métabolisme énergétique notamment par le fait que les bactéries appartenant au *Thermodesulfobacteria* sont capables d'utiliser le sulfate, sulfite, et thiosulfate comme accepteur d'électrons ; les *Deferribacteres* utilisant le Fe(III), Mn(IV), S<sup>0</sup>, Co(III), et le nitrate en anaérobiose.

Pour les sédiments déposés entre 1971-1975, un enrichissement en *Firmicutes*, *Bacteroidetes*, *Nitropsirae*, *Verrumicrobia* et *Synergistetes* est observé. Ce dernier phylum nouvellement décrit comprend des microorganismes isolés de l'Homme, animaux, sol et habitats océaniques (Labutti et al, 2010). Le phylum *Verrumicrobia* est fréquemment rencontré dans les lacs eutrophes et comprend des bactéries appendiculées, ce qui leur confère un avantage dans la capture de nutriments et une résistance au grazing (Zeng et al, 2009).

Les sédiments de 1994,6 sont quant à eux caractérisés par la présence exclusive de bactéries appartenant aux *Acidobacteria* et *Elusimicrobia*. Des approches moléculaires ont permis d'identifier des séquences relatives aux *Acidobacteria* dans un grand nombre d'habitats tels que les sédiments et sols contaminés par de l'uranium ou des métaux traces (Barns et al, 2007 ; Mondani et al, 2011).

Les échantillons déposés après les années 2000 sont représentés majoritairement par des *Proteobacteria*, *Bacteroidetes* et *Planctomycetes*. Un enrichissement en *Verrumicrobia* et *Synergistetes* est observé comme pour les sédiments déposés entre 1971-1975.

L'analyse en composantes principales suivie par une analyse de co-inertie appliquée aux deux jeux de données, un comprenant les espèces bactériennes identifiées par puces phylogénétiques, le second rapportant les contaminants organiques et métalliques est présentée sur la Figure 47. Le premier facteur extrait 93,3% de la variabilité ; 98,45% sont compris dans les 2 premières composantes. Une co-structure forte entre les 2 tableaux de données est donc observée. Trois groupes d'échantillons peuvent être identifiés. La diversité microbienne associée aux dépôts de sédiments plus récents (2008 à 1990,5) n'est pas influencée par les contaminants métalliques et organiques. La diversité microbienne associée aux échantillons de 1970,4, 1971 et 1971,5 est corrélée à la contamination en HAP des sédiments ; alors que la diversité associée aux sédiments de 1970,1, 1972,7, 1973,2,

1974,4 et 1974,9 peut être expliquée par les concentrations élevées en métaux traces et quelques HAP.

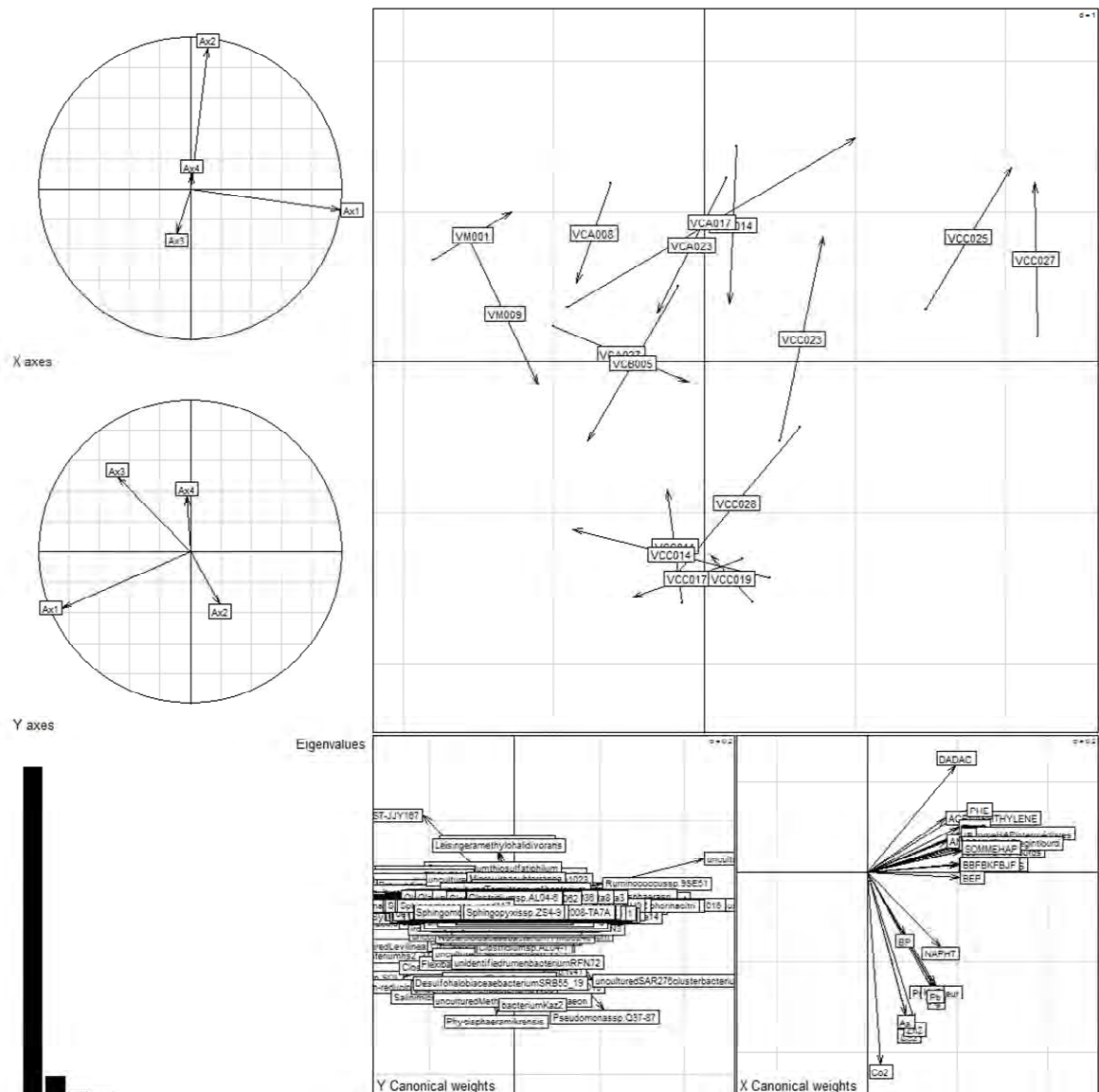


Figure 47. Analyse de co-inertie associée aux deux jeux de données (chimiques et espèces microbiennes). La datation des sédiments pour les différents échantillons correspond respectivement à : VM001, 2008 ; VM009, 2003,7 ; VCA008, 1998,6 ; VCA014, 1994,6 ; VCA017, 1993 ; VCA023, 1990,5 ; VCA027, 1898,3 ; VB005, 1985,7 ; VCC011, 1974,9 ; VCC014, 1974,1 ; VCC017, 1973,2 ; VCC019, 1972,7 ; VCC023, 1971,5 ; VCC025, 1971 ; VCC027, 1970,4 ; VCC028, 1970,1.

Des corrélations positives ( $p < 0,05$ ,  $R > 0,9$ ) et négatives ( $p < 0,05$ ,  $R < -0,9$ ) ont pu être établies sur la base de la co-inertie (corrélation des poids canoniques) entre espèces bactériennes et contaminants métalliques et/ou organiques. Pour les sédiments de 1971,5, 1973,2, 1974,4, 1974,9, une corrélation positive est observée entre la bactérie sulfato-réductrice *Thermodesulfobacterium thermophilum* et les concentrations en  $Pb^{2+}$ ,  $Ag^+$  et pyralène. De nombreuses espèces de Clostridies ont été identifiées dans les mêmes échantillons dont certaines sont spécifiquement présentes dans les sédiments de 1973,2.

Des corrélations positives sont à nouveau observées avec les concentrations en  $Zn^{2+}$ ,  $As^{3+}$ ,  $Hg^{2+}$ ,  $Cd^{2+}$  et fluoranthène et benzo(g,h,i)pérylène. Le genre *Deferribacter* a été exclusivement identifié dans le sédiment de 1974,9 ; une corrélation positive est observée avec la concentration en  $Hg^{2+}$  et  $Zn^{2+}$ . Ces analyses statistiques seront poursuivies dans le cadre de la thèse d'Assia Kaci afin d'identifier les genres bactéries structurant les communautés impactées les contaminants. Mais il apparaît déjà que la diversité microbienne est façonnée par les contaminants métalliques et organiques mais également favorisée par la diversité métabolique des microorganismes ; certains par exemple étant capables d'utiliser des HAP comme source de carbone.

Par ailleurs, à l'aide des mêmes puces phylogénétiques, les communautés métaboliquement actives au sein des sédiments sont actuellement en cours de caractérisation. Ce travail sera également complété d'une approche métagénomique permettant d'évaluer la diversité fonctionnelle potentielle associée aux communautés microbiennes des sédiments en fonction du gradient de contamination.

### ***3.8 Impact de la contamination métallique des sédiments sur la communauté microbienne résistante aux métaux traces***

Les résultats précédents ont montré l'impact de la contamination métallique sur la diversité spécifique des communautés microbiennes des sédiments qui peuvent s'expliquer par la disparition des espèces sensibles mais également l'augmentation de la proportion de microorganismes résistants.

Les bactéries ont développé différents systèmes de résistance aux métaux traces. Il est ainsi possible de distinguer les mécanismes de résistance non inductibles qui peuvent être dépendants ou non dépendants du métabolisme. Ces mécanismes correspondent à la précipitation ou séquestration du métal toxique (interaction avec la surface bactérienne, séquestration extracellulaire, formation de précipité métallique (intra ou extracellulaire) ou à un changement de spéciation de l'ion métallique (conduisant à une forme peu biodisponible). L'ensemble de ces mécanismes vise à diminuer la biodisponibilité de l'ion métallique toxique.

Il existe également des mécanismes de résistance induits en réponse à une concentration toxique en métaux traces, dépendants du métabolisme, impliquant des enzymes/protéines codées par des gènes spécifiques. Ceux-ci correspondent à des transports actifs des ions métalliques hors de la cellule, un changement de spéciation lié à une modification enzymatique du métal (réduction, méthylation ou oxydation) et à la synthèse de protéines

permettant leur séquestration intracellulaire. Ces mécanismes conduisent à une diminution de la concentration des ions métalliques libres dans le milieu intracellulaire.

### 3.8.1 Existe-t-il une relation entre l'occurrence de gènes de résistance en métaux traces et la contamination chimique ?

La contamination métallique peut imprégner durablement le compartiment microbien du milieu récepteur en favorisant l'émergence de bactéries résistantes et en enrichissant le patrimoine génétique des bactéries en gènes de résistance aux métaux traces. Le suivi de ces gènes dans la communauté totale a été réalisé afin d'identifier les périodes où les contaminants métalliques ont atteint des concentrations toxiques pour le métabolisme cellulaire mais également afin d'évaluer leur persistance dans le temps. La résistance bactérienne aux contaminants métalliques historiques de l'estuaire de Seine a été étudiée ( $\text{Hg}^{2+}$ ,  $\text{Ag}^+$ ,  $\text{Cd}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$  et  $\text{Co}^{2+}$ ).

#### 3.8.1.1 Occurrence du gène de résistance au mercure (*merA*)

La protéine MerA (réductase mercurique) est l'enzyme centrale du mécanisme de détoxification unique du mercure par les bactéries. Elle catalyse la réduction de l'ion mercurique  $\text{Hg}^{2+}$  en mercure élémentaire  $\text{Hg}^0$  qui est volatil et donc moins biodisponible. Bien que le mécanisme de résistance au mercure soit unique et commun à de nombreux genres bactériens phylogénétiquement éloignés, la réductase mercurique présente une forte diversité de séquence d'un phylum bactérien à un autre. Cette hétérogénéité rend impossible l'utilisation d'un couple d'amorce consensuel pour cibler l'ensemble des phylums bactériens mais présente l'avantage de pouvoir étudier la diversité des genres bactériens résistants au mercure dans les sédiments de la carotte.

Ainsi plusieurs jeux d'amorces ont été utilisés afin de cibler le gène *merA* d'*Actinobacteria*, *Firmicutes*,  *$\alpha$ -Proteobacteria* et des *B/ $\gamma$ -Proteobacteria* (Oregaard et Sorensen, 2007 et Schaefer et al, 2004). Le gène *merA*, des *B/ $\gamma$ -Proteobacteria* a été détecté uniquement dans les sédiments de surface de 2008 alors que des concentrations plus élevées en mercure sont observées en profondeur (Figure 48). Ce résultat est en accord avec les travaux de Ramond et al. (2008) réalisés en estuaire de Seine et qui ont montré que la dynamique du gène *merA* présent chez les *B/ $\gamma$ -Proteobacteria* était associée principalement à un apport de bactéries d'origine fécale résistantes au mercure et corrélées à des dépôts de sédiments récents. De plus, l'absence de détection du gène *merA* de *B/ $\gamma$ -Proteobacteria* en profondeur suggère l'ADN de ces bactéries fécales

allochtones ne persiste pas en profondeur puisque le milieu récepteur est régulièrement impacté par ces bactéries fécales.

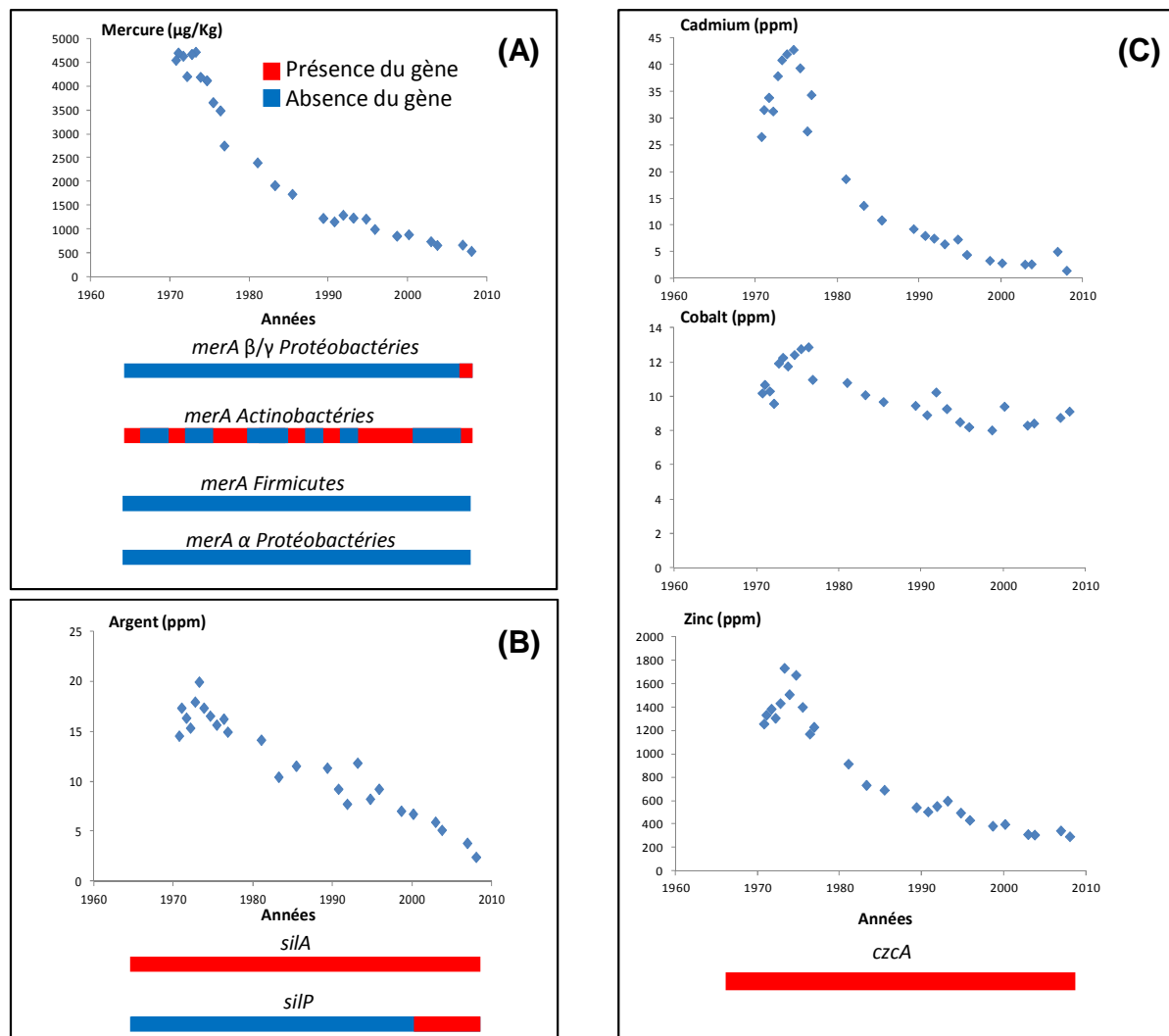


Figure 48. Détection moléculaire des gènes (A) *merA*, (B) *silA* et *silP* et (C) *czcA* dans les sédiments de la carotte Rhapsodis. (■) présence et (■) absence du gène cible.

À l'inverse, le gène *merA* d'*Actinobacteria* a été détecté sur près de la moitié des échantillons analysés le long de la carotte (13 échantillons sur 29 repartis entre les années 1970 à 2008 ; Figure 48). Ces résultats peuvent s'expliquer par une adaptation des bactéries de ce phylum en réponse à la contamination permanente des sédiments par le  $Hg^{2+}$ . La diversité obtenue par les puces phylogénétiques indique la présence d'*Actinobacteria* le long de la carotte et montre que celles-ci ont été régulièrement exposées à des concentrations élevées en  $Hg^{2+}$ . Au contraire, dans des échantillons de sols de surface et sub-surface impactés depuis des décennies à des concentrations élevées en  $Hg^{2+}$ , Oregaard et Sorensen (2007) ont montré la présence du gène *merA* d'Actinobactéries

uniquement dans des échantillons de surface alors que le gène *merA* des *B/γ-Proteobacteria* avait été détecté jusqu'à 100 cm de profondeur.

Le gène *merA* de Firmicutes et *α-Proteobacteria* n'a pas pu être détecté dans les échantillons analysés. Comme suggéré par Oregaard et al (2007) dans des sols contaminés par du  $Hg^{2+}$ , il est probable que les *Firmicutes* présents dans les sédiments ne soient pas résistants au  $Hg^{2+}$  ou que leur ADN ne soit pas correctement extrait, conduisant à une absence d'amplification. Le faible rendement de l'extraction des *Firmicutes* pourrait être dû à leur faible abondance dans le sédiment et/ou une efficacité de lyse insuffisante de ces bactéries à Gram positif. Cette dernière hypothèse n'est pas privilégiée puisque les analyses de diversité par puces à ADN ont montré la présence de *Firmicutes* le long de la carotte sédimentaire et notamment dans les sédiments plus anciens.

Les résultats montrent que la réponse des communautés microbiennes des sédiments à la contamination mercurique est très différente d'un phylum à l'autre. La recherche du gène *merA* d'*Actinobacteria* semble être un indicateur de l'exposition de communautés microbiennes à des concentrations élevées en  $Hg^{2+}$ . Comme suggéré par Ramond et al (2009), les bactéries allochtones résistantes au  $Hg^{2+}$  perdent leur cultivabilité dans le milieu récepteur. Les résultats obtenus avec la carotte RHAPSODIS montrent que le flux de gènes *merA* associé à ces bactéries ne se maintient pas dans les sédiments anciens.

#### 3.8.1.2 Occurrence des gènes de résistance à l'argent (*silA* et *silP*)

La résistance bactérienne à l' $Ag^+$  peut être conférée par deux principaux mécanismes liés à l'efflux de l'ion toxique du cytoplasme. Le premier correspond à un système d'extrusion de type antiport cation/proton, appelé système HME-RND (Heavy Metal Efflux-Resistance Nodulation Division) présent chez les bactéries à Gram négatif. Ce système est composé de trois protéines codées par les gènes *silCBA*. Ces pompes permettent l'efflux des ions  $Ag^+$  depuis le cytoplasme, la membrane cytoplasmique ou le périplasme à travers la membrane externe vers l'extérieur (Nies, 2007). Le second mécanisme repose sur une pompe ( $P_{1B}$ -ATPase) codée par le gène *silP* qui peut être rencontré également chez les bactéries à Gram positif. Pour les bactéries à Gram négatif, un couplage entre ces deux mécanismes complémentaires de résistance à l'argent a été observé.

Le gène *silP* a été recherché dans 29 échantillons et détecté uniquement dans 5 d'entre eux correspondant à des dépôts récents de sédiments (1999,4 à 2008 ; Figure 48). Au contraire, le gène *silA* présent chez les bactéries à Gram négatif a été détecté dans la totalité des échantillons analysés (1970 à 2008). Ces deux gènes ont été décrits majoritairement chez des entérobactéries et des bactéries du genre *Pseudomonas*.



L'analyse de souches d'entérobactéries a montré que le gène *silA* était plus prévalent que *silP* (Silver, 2003) ; ce qui pourrait expliquer les résultats observés.

### 3.8.1.3 Occurrence des gènes de résistance au cadmium (*cadA* et *czcA*)

Ces résultats font l'objet d'un article qui a été soumis à *Letters Applied Microbiology*.

Il existe deux principaux mécanismes bactériens de résistance au cadmium reposant tous les deux sur des protéines à efflux. Dans ce travail, le gène *cadA* codant pour une pompe de type P<sub>1B</sub>-ATPase et le gène *czcA* qui code pour une protéine de la famille HME-RND (antiport cation/proton) ont été recherchés par PCR (Oger et al, 2001 ; Nies et al, 1989).

Le gène *cadA* qui permet la résistance chez les bactéries à Gram positif, n'a pas été détecté dans la totalité des échantillons analysés (29 échantillons). Ce résultat peut s'expliquer par la spécificité des amorces utilisées ciblant préférentiellement quatre principaux genres bactériens à Gram positif (Oger et al, 2001). Le gène *czcA* qui permet la résistance simultanée au Cd<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> et Co<sup>2+</sup> chez les bactéries à Gram négatif a été ciblé en utilisant dans un premier temps le seul jeu d'amorces disponible dans la littérature (Nies et al., 1989). Le gène a alors été détecté dans un seul échantillon de 1976,4 dans lequel des concentrations très élevées en cadmium ont été observées en raison d'apports en phosphogypses.

L'interrogation de banques de séquences (NCBI) avec ce jeu d'amorces a cependant montré que celui-ci ciblait préférentiellement le gène présent chez l'espèce *Cupriavidus metallidurans*. Dans le cadre de ce travail, de nouvelles amorces ont été dessinées afin de cibler ce gène chez un plus grand nombre d'espèces. Un alignement a été réalisé à partir de 500 séquences protéiques CzcA rapatriées de banques de données et a permis d'identifier deux motifs protéiques conservés chez 40% des séquences. Ces deux motifs ont été utilisés pour dessiner un nouveau jeu d'amorces. Après validation de ces amorces (voir paragraphe 4.8.3), le gène *czcA* a été détecté dans la totalité des échantillons analysés indiquant alors une réponse des communautés microbiennes à la contamination des sédiments par le Co<sup>2+</sup>, Zn<sup>2+</sup> et Cd<sup>2+</sup> (Figure 48).

### 3.8.2 Existe-il une relation entre l'abondance des gènes de résistance aux métaux traces et la contamination métallique des sédiments ?

Les résultats précédents ont permis de corréler la présence de gènes de résistance bactériens à la contamination métallique du sédiment. Toutefois, il est pertinent de vérifier si l'abondance de ces gènes de résistance reflète les concentrations des métaux traces dans les sédiments. La quantification des gènes de résistance précédemment cités a

été entreprise par la technique de PCR en temps réel lorsque la dégénérescence des amorces le permettait. En effet, l'utilisation d'amorces dégénérées se traduit par l'obtention d'amplicons de différentes tailles et spécificités rendant toute quantification impossible. Seule la quantification du gène *silA* a pu être réalisée.

Le nombre de copies du gène *silA* exprimé par gramme de sédiment sec a été estimé dans 4 échantillons contrastés au niveau des concentrations en  $\text{Ag}^+$  (1970,1, 1980,9, 1999,9 et 2002,8). Le nombre de copies du gène *silA*/g.s.s ne semble pas corrélé à la concentration en  $\text{Ag}^+$  observée dans les sédiments (Figure 49). Ce résultat peut s'expliquer par le fait que l' $\text{Ag}^+$  peut être transporté par des pompes à efflux impliquées dans le transport d'autres métaux. Ainsi, la résistance à cet ion peut être également conférée par la présence de CopA ( $P_{1B}$ -ATPase) ou CusA (HME-RND) qui sont impliquées dans la résistance bactérienne au cuivre (Franke et al, 2007). La résistance à un métal trace ne résulte donc pas d'un mécanisme unique (à l'exception du mercure); ce qui ne permet pas toujours de faire la corrélation entre l'abondance d'un gène de résistance et le niveau de contamination.

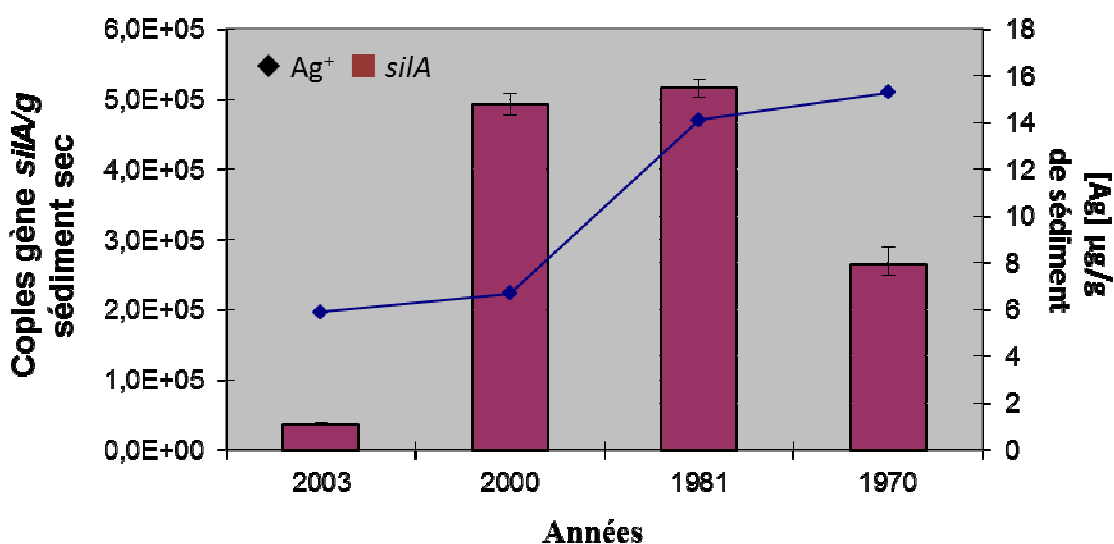


Figure 49. Evolution du nombre de copies du gène *silA*/g de sédiment sec le long d'un gradient de contamination en  $\text{Ag}^+$ .

### 3.8.3 Impact de la contamination en cadmium, zinc et cobalt sur la diversité du gène *czcA*

Nous avons ensuite évalué dans quelle mesure le niveau de contamination des sédiments pouvait influencer la diversité des espèces microbiennes résistantes à ce métal. Pour cela, le gène *czcA* a été amplifié à partir des échantillons correspondant aux années 2002,8 et 1974,9 et pour lesquels les concentrations en  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$  et  $\text{Cd}^{2+}$  étaient respectivement de 8,3, 310 et 2,6  $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$  et 12,7, 1395 et 39,4  $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$ . La diversité a été évaluée après clonage

et séquençage des amplicons obtenus. Sur 178 clones obtenus à partir des deux échantillons, les séquences analysées correspondent toutes au gène *czcA* confirmant ainsi la spécificité des amorces dessinées. La majorité des séquences obtenues correspond à de nouvelles séquences qui présentent après traduction moins de 95% d'identité avec les protéines CzcA présentes dans les banques de données (Tableau 7).

**Tableau 7. Similarité au niveau des séquences protéiques partielles CzcA détectées dans deux échantillons de sédiments de la carotte RHAPSODIS présentant des concentrations contrastées en (cobalt, zinc et cadmium). Sédiments de 1974,9.**

% de clones (n=78)	Phylum	% identité (acide aminé)	Numéro accession	Séquence proche
92,3%	<i>Betaproteobacteria</i>	82 à 85%	ZP_05133355	<i>Stenotrophomonas sp</i> , SKA14
1,3%	<i>Betaproteobacteria</i>	99%	YP_004124893	<i>Alicyclophilus denitrificans</i> BC
1,3%	<i>Bacteroidetes</i>	83%		<i>Chryseobacterium gleum</i> ATCC 35910
1,3%	<i>Gammaproteobacteria</i>	82%	ZP_08536846	<i>Methylophaga aminisulfidivorans</i>
1,3%	<i>Alphaproteobacteria</i>	83%	YP_002130288	<i>Phenylobacterium zucineum</i> HLK1
1,3%	<i>Bacteroidetes</i>	73%	YP_004041695	<i>Paludibacter propionicigenes</i> WB4
1,3%	<i>Betaproteobacteria</i>	88%	YP_003846726	<i>Gallionella capsiferriformans</i> ES-2

Une diminution importante de la diversité du gène *czcA* est observée dans les sédiments les plus contaminés de 1974,9 ; 92% des séquences identifiées (sur 78 clones analysés) présentent un pourcentage d'identité allant 82 à 85% avec la protéine CzcA présente chez le genre *Stenotrophomonas* appartenant à la classe des  $\gamma$ -*Proteobacteria* (Tableau 7). Dans les sédiments moins contaminés de 2002,8, une augmentation importante de la diversité de ce gène est observée (sur 80 clones analysés) avec majoritairement des séquences présentant des identités de séquence avec la protéine présente chez des bactéries à Gram négatif appartenant aux classes des  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\delta$ ,  $\gamma$ -*Proteobacteria* (Tableau 8). Ce résultat indique que la contamination élevée en  $\text{Cd}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$  et  $\text{Zn}^{2+}$  a sélectionné certaines espèces résistantes à ces métaux qui s'accompagne d'une diminution de la diversité du gène *czcA*.

**Tableau 8. Similarité au niveau des séquences protéiques partielles CzcA détectées dans deux échantillons de sédiments de la carotte RHAPSODIS présentant des concentrations contrastées en (cobalt, zinc et cadmium). Sédiments de 2002,8.**

% de clones (n=78)	Phylum	% identité (acide aminé)	Numéro accession	Séquence proche
32,50%	<i>Gammaproteobacteria</i>	83 à 89%	YP_863670	<i>Stenotrophomonas sp</i> , SKA14
5,00%	nd	74 to 78%	nd	uncultured <i>Acidobacteria bacterium</i> A11
10,00%	<i>Gammaproteobacteria</i>	77 à 82%	YP_752127	<i>Shewanella frigidimarina</i> NCIMB 400
3,75%	<i>Betaproteobacteria</i>	94%	YP_001021548	<i>Methylibium petroleiphilum</i> PM1
3,75%	<i>Gammaproteobacteria</i>	80 à 84%	YP_004436615	<i>Glaciecola sp</i> , 4H-3-7+YE-5
3,75%	<i>Alphaproteobacteria</i>	65 à 84%	YP_004866524	<i>Micavibrio aeruginosavorus</i> ARL-13
3,75%	<i>Verrucomicrobia</i>	73 à 76%	YP_001821314	<i>Opitutus terrae</i> PB90-1
2,50%	<i>Gammaproteobacteria</i>	74 à 76%	YP_004425510	<i>Alteromonas macleodii</i> str, 'Deep ecotype'
2,50%	<i>Nitrospirae</i>	79 à 91%	YP_003797421	<i>Candidatus Nitrospira defluvii</i>
2,50%	<i>Betaproteobacteria</i>	94%	EHN66995	<i>Comamonas testosteroni</i> ATCC 11996
2,50%	<i>Betaproteobacteria</i>	76 à 78%	YP_004293760	<i>Nitrosomonas sp</i> , AL212
2,50%	<i>Alphaproteobacteria</i>	85 à 89%	YP_002130288	<i>Phenylobacterium zucineum</i> HLK1
2,50%	<i>Gammaproteobacteria</i>	81%	ZP_05133355	<i>Thiomicrospira crunogena</i> XCL-2
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	72%	ZP_09219797	<i>Acinetobacter sp</i> , NBRC 100985
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	76%	YP_693103	<i>Alcanivorax borkumensis</i> SK2
1,25%	<i>Betaproteobacteria</i>	90%	YP_004124893	<i>Alicyclophilus denitrificans</i> BC
1,25%	<i>Betaproteobacteria</i>	73%	YP_439571	<i>Burkholderia thailandensis</i> E264
1,25%	<i>Betaproteobacteria</i>	72%	ZP_02370863	<i>Burkholderia thailandensis</i> TXDOH
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	74%	YP_001982318	<i>Cellvibrio japonicus</i> Ueda107
1,25%	<i>Betaproteobacteria</i>	94%	YP_001562744	<i>Delftia acidovorans</i> SPH-1
1,25%	<i>Deltaproteobacteria</i>	73%	ZP_01312939	<i>Desulfuromonas acetoxidans</i> DSM 684
1,25%	<i>Deltaproteobacteria</i>	74%	YP_004198929	<i>Geobacter sp</i> , M18
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	77%	ZP_03559698	<i>Glaciecola sp</i> , HTCC2999
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	78%	YP_003146463	<i>Kangiella koreensis</i> DSM 16069
1,25%	<i>Betaproteobacteria</i>	89%	ZP_01914772	<i>Limnobacter sp</i> , MED105
1,25%	<i>Bacteroidetes</i>	76%	AEV96782	<i>Niastella koreensis</i> GR20-10
1,25%	<i>Alphaproteobacteria</i>	71%	ZP_09195363	<i>Novosphingobium pentaromativorans</i> US6-1
1,25%	<i>Verrucomicrobia</i>	73%	EHP36306	<i>Opitutaceae bacterium</i> TAV5
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	75%	YP_527427	<i>Saccharophagus degradans</i> 2-40
1,25%	<i>Gammaproteobacteria</i>	73%	YP_752127	<i>Shewanella sp</i> , ANA-3
1,25%	nd	81%	nd	uncultured organism

En conclusion, l'ensemble de ces résultats montrent que la contamination métallique peut imprégner durablement le compartiment microbien du milieu récepteur en enrichissant le patrimoine génétique des bactéries en gènes de résistance aux métaux traces. Pour le Hg<sup>2+</sup> et dans les sédiments anciens, cet enrichissement ne concerne que le phylum des *Actinobacteria*. Par ailleurs, nous n'avons pas observé le maintien du gène *merA* de

bactéries allochtones ni une réponse des communautés autochtones autre que les *Actinobacteria*. Pour les autres métaux, seuls les gènes de résistance codant des protéines HME-RND ont été systématiquement détectés en relation avec la contamination. Ce mécanisme de résistance aux métaux traces semble fréquemment développé par les bactéries à Gram négatif et pourrait servir d'indicateur d'anthropisation dans les sédiments. Ce point doit être confirmé par la recherche de gènes codant des protéines HME-RND et conférant la résistance à d'autres métaux. Il semble toutefois difficile de relier l'abondance des gènes de résistance aux concentrations en métaux compte tenu des différents mécanismes de résistance pouvant être développés par les microorganismes.

### 3.8.4 Etude des bactéries sporulantes résistantes aux métaux traces

Une approche culturale a été menée en complément à l'approche moléculaire afin d'étudier les bactéries sporulantes (aérobies et anaérobies) résistantes aux métaux traces (mercure et cadmium) et évaluer si cette communauté pouvait refléter le niveau de contamination du sédiment. Cette approche permettra également d'évaluer le risque lié à la germination de spores de bactéries résistantes aux métaux traces lors de la remise en suspension notamment lors du dragage des sédiments.

Quatre échantillons contrastés en terme de contamination métallique ont été analysés (2002,8, 1985,7, 1974,1 et 1970,1). Afin de conclure à un phénotype de résistance, une souche de référence sensible (*E. coli* KL16) a été utilisée afin de déterminer les concentrations minimales en métaux traces qui inhibent sa croissance. Les concentrations, au-delà desquelles nous n'observons plus la croissance pour cette souche ont été considérées comme valeurs seuils. De cette manière, les concentrations minimales inhibitrices (C.M.I) en  $Cd^{2+}$  et  $Hg^{2+}$  sur milieu R2A ont été respectivement fixées à 250 et 37  $\mu M$ .

En aérobiose, l'abondance de la communauté sporulante aérobie varie de  $3,4 \pm 0,9 \cdot 10^4$  UFC/g à  $3,4 \pm 1,1 \cdot 10^3$  UFC/g en fonction de la période échantillonnée (Tableau 9). Une très forte variabilité a été observée au niveau des dénombrements des flores résistantes. L'abondance des bactéries sporulantes résistantes au cadmium est inférieure à 100 UFC/g quel que soit l'échantillon étudié. Les bactéries sporulantes résistantes au mercure représentent de 8,45% à moins de 0,28% de la communauté sporulante aérobie. Ce pourcentage ne semble pas corrélé à la concentration en  $Hg^{2+}$  des sédiments puisque le plus fort pourcentage de bactéries sporulantes résistante au  $Hg^{2+}$  a été obtenu dans les sédiments les moins contaminés. En anaérobiose, seul l'échantillon de 1974,1 a été étudié. L'abondance de la communauté sporulante anaérobie est alors de  $5750 \pm 3775$  UFC/g et les

bactéries sporulantes résistantes au mercure correspondent à 9,5% de la communauté sporulante anaérobie.

**Tableau 9. Dénombrement des bactéries hétérotrophes sporulantes (aérobies et anaérobies) résistantes au cadmium et mercure dans quatre échantillons de la carotte RHAPSODIS.**

Echantillon	Aérobiose (72 h)			Anaérobiose (120 h)		
	R2A UFC/g	R2A + HgCl <sub>2</sub> UFC/g	R2A + CdCl <sub>2</sub> UFC/g	R2A UFC/g	R2A + HgCl <sub>2</sub> UFC/g	R2A + CdCl <sub>2</sub> UFC/g
2002,8	14200 ± 1552	1200 ± 458	< 100	na	na	na
1985,7	3467 ± 1097	< 100	< 100	5750 ± 3775	550 ± 636	na
1974,1	7567 ± 1834	300 ± 346	< 100	na	na	na
1970,1	34733 ± 9552	< 100	< 100	na	na	na

na : non analysé

Le niveau de résistance au mercure des bactéries sporulantes isolées sur milieu R2A supplémenté en Hg<sup>2+</sup> (37 µM) a été testé en les repiquant sur le même milieu supplémenté en mercure à des concentrations allant jusqu'à 200 µM. Pour les sédiments de 2002,8, les résultats montrent que les bactéries sporulantes tolèrent des concentrations plus élevées en mercure comparativement à celles isolées dans des sédiments plus anciens et plus contaminés en Hg de 1974,1. En effet, 9/23 souches isolées des sédiments de 2002,8 résistent à des concentrations de 200 µM alors que celles isolées des sédiments de 1974,1 ne résistent pas à des concentrations supérieures à 37 µM. Les résultats suggèrent que dans les sédiments de 2002,8, il y a eu un apport de bactéries, qui ont été exposées à une concentration toxique au mercure dans un autre environnement au niveau du bassin versant ( sols , hommes , animaux, eau...), et qui y persistent sous forme sporulée

Ces résultats montrent que l'abondance et le niveau de résistance au Hg<sup>2+</sup> et Cd<sup>2+</sup> des bactéries sporulantes résistantes ne reflète pas le niveau de contamination des sédiments dans lesquelles elles se trouvent mais probablement celui du réservoir d'origine dans lequel les bactéries ont acquis leurs résistances. L'étude de cette communauté sporulante ne semble pas constituer un marqueur pertinent pour évaluer si les communautés microbiennes des sédiments ont été exposées à des concentrations toxiques en métaux traces.

### **3.9 Persistance des gènes de résistance aux antibiotiques et des bactéries d'origine fécale**

Depuis les années 1950 et le début de l'utilisation massive des antibiotiques, les bactéries pathogènes initialement sensibles aux antibiotiques ont très rapidement acquis des mécanismes de résistance, transférés pour certains à partir de bactéries environnementales. Comme exemple, on peut citer l'apparition, puis la large diffusion parmi les entérobactéries retrouvées en pathologie humaine, des gènes de résistance plasmidiques aux quinolones de type *qnr*, dont l'origine probable est une bactérie aquatique (*Shewanella algae*; Poirel et al, 2005). Un autre exemple de transfert réussi et pérenne de gènes de l'environnement vers les bactéries pathogènes est la mobilisation à partir de différentes espèces de *Kluyvera* (une bactérie de l'environnement très rarement isolée en situation de pathogène) des gènes codant pour les  $\beta$ -lactamases à spectre large de type CTX-M aujourd'hui pandémiques et dont les conséquences thérapeutiques sont très lourdes (Poirel et al, 2002). Ainsi la notion de résistome environnemental a été définie comme représentant à la fois les gènes de résistance appartenant aux communautés bactériennes de l'environnement et les gènes apportés par les bactéries fécales dérivées des activités humaines (Wright, 2007). Ce résistome environnemental pourrait constituer un réservoir de gènes de résistance susceptible d'être rétro-transféré à des bactéries potentiellement pathogènes.

Dans les zones anthropisées, les eaux estuariennes sont le milieu récepteur terminal de cette contamination et les vasières sont des zones de décantation des particules fines, où les bactéries fécales et les contaminants chimiques se déposent. Le compartiment sédimentaire pourrait ainsi constituer un résistome environnemental enrichi en gènes de virulence ou de résistance aux antibiotiques en fonction des apports et les dynamiques qui pourraient y régner, notamment les échanges de gènes de résistance entre bactéries de différents phylums sont encore peu appréhendés. Nous avons dans ce volet sanitaire (en complément avec le programme FLASH) évalué la persistance de bactéries fécales d'origine allochtones dans les sédiments en recherchant un indicateur de contamination fécale et un pathogène bactérien puis estimé la persistance de gènes de résistance aux antibiotiques en fonction du contexte épidémiologique.

#### **3.9.1 Persistance de gènes de bactéries fécales dans les sédiments**

Les gènes *uidA* d'*E.coli* et *fliC* de *Salmonella* ont été recherchés par amplification PCR (Bej et al, 1991 ; Touron et al, 2005). Le gène *uidA* qui pour la  $\beta$ -D-glucuronidase chez *E.coli* a été détecté au niveau de 5 échantillons sur 29 analysés (Tableau 10). *E. coli* a été

notamment détectée dans des dépôts sédimentaires récents (2003,6 et 2000,8) mais également dans ceux correspondant aux années 1976,4 1981,9 et 1985,7. L'évolution de l'abondance des coliformes thermotolérants au niveau de la Bouille (situé à proximité des rejets de la STEP Emeraude) entre les années 1977 et 1997, indique la présence d'un maxima en 1982 et une diminution significative (1 Log) de ces indicateurs depuis 1995 (Servais et al, 1999) ; pouvant expliquer ainsi la persistance de l'ADN d'*E. coli* dans les sédiments de 1977 à 1985. Ces résultats montrent par contre que l'ADN d'*E. coli* ne persiste pas dans les sédiments les plus anciens (antérieurs à 1976,4). L'étude de la diversité de la communauté microbienne par puce à ADN (phylochips) indique par ailleurs l'absence d'*E. coli* dans les sédiments antérieurs à 1976,4.

La persistance de l'ADN du pathogène bactérien *Salmonella* dans les sédiments estuariens a été également recherchée par une amplification PCR multiplex nichée. Le gène ciblé est le gène *fliC* codant pour la flagelline (protéine du flagelle). Celui-ci a été détecté au niveau d'un seul échantillon de sédiments de 2003,6 dans lequel le gène *uidA* avait déjà été détecté (Tableau 10).

A partir de carottes sédimentaires prélevées en estuaire de Seine (vasière Nord) et correspondant à des dépôts récents de sédiments (carotte de 30 cm), des travaux précédents avaient montré la présence quasi permanente de l'ADN d'*E. coli* et *Salmonella* par PCR (Berthe et al, 2008). Pour des sédiments plus anciens de la carotte RHAPSODIS, il a été possible d'identifier *E. coli* jusque dans les années 1985,7 à 1976,4 sans toutefois pouvoir détecter *Salmonella*. Bien qu'étant régulièrement impacté par des bactéries d'origine fécale, ces résultats suggèrent que ces sédiments ont dans une certaine mesure une capacité d'autoépuration et que l'ADN de bactéries pathogènes semble disparaître dans les sédiments plus anciens. Ce résultat pourra être confirmé par la recherche de gènes de virulence de différents pathogènes bactériens d'origine fécale.



Tableau 10. Détection des gènes *uidA*, *fliC* et *bla*-TEM, *bla*-CTX-M, *mecA* et *tet(A)* le long de la carotte sédimentaire. (+) et (-) indiquent respectivement la présence et l'absence des gènes recherchés, (NA) indique les échantillons qui n'ont pas été analysés.

Année	Gène <i>uidA</i> d' <i>E.coli</i>	Gène <i>fliC</i> de <i>Salmonella</i>	Gène <i>bla</i> <sub>CTX-M</sub>	Gène <i>bla</i> <sub>TEM</sub>	Gène <i>mecA</i>	Gène <i>tetA</i>
2008	-	-	-	NA	-	-
2006,9	-	-	-	NA	-	-
2003,6	+	+	-	NA	-	-
2001,4	-	-	-	NA	-	-
1999,2	-	-	-	NA	-	-
1997,0	-	-	-	NA	-	-
2002,8	+	-	-	+	-	-
1999,9	-	-	-	+	-	-
1998,4	-	-	-	+	-	-
1995,5	-	-	-	+	-	-
1994,4	-	-	-	+	-	-
1992,8	-	-	-	+	-	-
1991,4	-	-	-	+	-	-
1990,3	-	-	-	+	-	-
1989	-	-	-	-	-	-
1987,1	NA	NA	-	-	-	-
1985,7	+	-	-	+	-	-
1984,5	NA	NA	-	+	-	-
1983,3	NA	NA	-	+	-	-
1982,1	NA	NA	-	+	-	-
1980,9	+	-	-	-	-	-
1976,4	+	-	-	+	-	-
1975,8	-	-	-	+	-	-
1974,9	-	-	-	-	-	-
1974,1	-	-	-	+	-	-
1973,2	-	-	-	+	-	-
1972,9	-	-	-	+	-	-
1972,7	-	-	-	-	-	-
1972,1	-	-	-	+	-	-
1971,5	-	-	-	+	-	-
1971,0	-	-	-	+	-	-
1970,4	-	-	-	+	-	-
1970,1	-	-	-	+	-	-

### 3.9.2 Persistance de gènes de résistance aux antibiotiques dans les sédiments estuariens.

La recherche de gènes de résistance aux antibiotiques a été réalisée en collaboration avec l'équipe du Pr A. Andremont (Hôpital Bichat) sur 27 échantillons couvrant l'ensemble de la carotte sédimentaire (Tableau 10). Les gènes de résistance aux antibiotiques qui ont été

recherchés par PCR sont : (a) *bla*CTX-M: codant une  $\beta$ -lactamase à spectre dit « élargi » (BLSE), en expansion rapide chez les entérobactéries et notamment chez *E. coli*, ( b) *bla*TEM: codant une  $\beta$ -lactamase à spectre dit "étroit" (amorces ciblant également les dérivés de TEM donnant un phénotype de BLSE), résistance très prévalente au sein de diverses espèces mais principalement chez les entérobactéries (c) *tetA*: gène de résistance à la tétracycline fréquemment retrouvé chez les entérobactéries, et (d) *mecA* : résistance à la méthicilline chez les staphylocoques.

Le gène *bla*CTX-M n'a pu être détecté dans aucun des échantillons testés. Les données épidémiologiques montrent cependant depuis 2000, une expansion de souches possédant des BLSE de type CTX-M au sein des entérobactéries en milieu hospitalier. Ces bactéries devraient alors se retrouver dans les effluents de station d'épuration et impacter le milieu récepteur. Toutefois, Oberlé et al (2012) (projet FLASH) ont montré une diminution de l'occurrence des souches d'*E. coli* antibiorésistantes le long d'un continuum hospitalier-station d'épuration-milieu récepteur qui pourrait expliquer l'absence de *bla*CTX-M dans les dépôts de sédiments postérieurs aux années 2000.

Au contraire, le gène *bla*TEM a été détecté dans la majorité des sédiments entre 1970,1 et 2002,8 (Tableau 10). Les données épidémiologiques indiquent l'occurrence de souches d'entérobactéries possédant des BLSE de type TEM/SHV majoritairement entre les années 1990 et 2000. La présence de ce gène depuis les années 1970 pourrait être relative à des apports importants de bactéries fécales résistantes ou au contraire à la présence de ce gène au sein de bactéries autochtones du milieu récepteur. De plus, l'absence de détection d'*E. coli* dans les sédiments les plus anciens semble également privilégier la deuxième hypothèse. Le compartiment sédimentaire constituerait un résistome environnemental enrichi en gènes *bla*TEM présent chez des souches autochtones et pose alors le problème d'un rétro transfert de ces gènes de résistance à des souches potentiellement pathogènes. Dans un travail analogue réalisé à partir de sols échantillonnés depuis 1940, Knapp et al (2010) ont montré la présence *bla*TEM depuis les années 1940. Le séquençage des gènes *bla*TEM amplifiés dans les sédiments de 1970 sera réalisé dans le cadre de la thèse d'Assia Kaci et pourra apporter des informations concernant les espèces portant ce gène.

Les gènes de résistance à la tétracycline (*tetA*) et à la méthicilline (*mecA*) n'ont pas été détectés dans les mêmes sédiments que ceux analysés dans le Tableau 10. Pour le gène *mecA*, ce résultat pourrait être imputable à l'absence de bactéries du genre *Staphylococcus* comme montré par les puces phylogénétiques et semble indiquer leur disparition rapide dans les sédiments (y compris de leur ADN).

Pour ces deux gènes, il est également possible que les amorces utilisées, qui ont été dessinées à partir de gènes de résistance de souches hospitalières, ne permettent pas d'amplifier le gène présent chez des souches environnementales. Une approche complémentaire, développée par Sommer et al (2009), basée sur le criblage d'une banque d'expression réalisée à partir d'ADN métagénomique de ces sédiments, permettrait de rechercher ces gènes de résistance tout en s'affranchissant du biais lié à la spécificité des amorces PCR.

## 4 RETOMBÉES OPERATIONNELLES DIRECTES ET INDIRECTES

Il est difficile d'anticiper les retombées opérationnelles directes et indirectes des travaux réalisés dans le cadre du projet RHAPSODIS. Ce sera aux décideurs, aux aménageurs de s'emparer des données et des connaissances acquises, avec l'aide du GIP Seine Aval, pour en tirer les éléments les plus applicables dans le champ opérationnel. Nous donnons ci-après des pistes autant vers l'opérationnalité que vers la nécessaire poursuite de l'exploitation des résultats ou même des échantillons acquis.

### 4.1 *Historique de la contamination du haut estuaire de la Seine et éléments prédictifs*

#### 4.1.1 Calcul des flux de contaminants au haut estuaire de la Seine

Les séries temporelles acquises sur les concentrations de très nombreux contaminants à l'état particulaire, et validées par une datation robuste, offrent la possibilité de calculer les flux de ces contaminants au haut estuaire de la Seine, résultant des apports amont et des apports intra-estuariens. Une difficulté attendue dans cet exercice réside dans le fait que, dans les années 1970, les tonnages de phosphogypses ont été de l'ordre de grandeur des apports particuliers de la Seine depuis l'amont (débit solide) et que leur temps de rémanence compris entre 0,5 et 2 ans en moyenne peut être épisodiquement fortement influencé par des crues exceptionnelles ou des années sans crue importante.

#### 4.1.2 Caractérisation des sédiments de la Darse des Docks et risque écotoxicologique

Les nombreuses données acquises sur les sédiments de la Darse des Docks permettent une caractérisation globale du matériel de remplissage des bassins de la zone portuaire de Rouen et pourraient au besoin permettre d'approcher un bilan global des contaminants qui s'y sont accumulés depuis un demi-siècle au moins. Elles fournissent également les éléments d'évaluation du risque écotoxicologique qui serait induit par des dragages ou des aménagements qui conduiraient à la remobilisation, voire à la valorisation, des sédiments de la Darse des Docks ou des bassins portuaires de la région rouennaise.

### 4.1.3 Réponse des niveaux de contamination à la réduction de l'usage et/ou des rejets

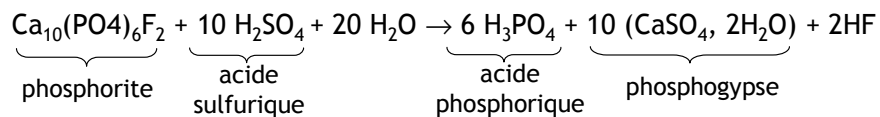
L'évolution temporelle des concentrations de la plupart des contaminants analysés dans les sédiments de la Darse des Docks et donc dans le stock sédimentaire transitant dans l'estuaire amont de la Seine montre une diminution générale plus ou moins accentuée, en réponse aux réductions des rejets intra-estuariens (phosphogypses et industries locales), mais aussi à une réduction des apports de l'amont. L'extrapolation des décroissances observées ne permet pas d'attendre un retour à des concentrations naturelles avant des décennies pour de nombreux contaminants métalliques et organiques, notamment ; ce n'est pas le cas des radionucléides dont les points de rejet et les usages sont mieux connus et maîtrisés. En l'absence d'un inventaire précis des productions, usages, rejets, recyclages et d'une bonne connaissance des processus de rémanence, dans le bassin versant, il est difficile de savoir si les effets constatés sont à la hauteur des efforts consentis et s'il existe une marge de progression qui permettrait d'écourter le délai pour un retour à une situation normale. Certains radionucléides artificiels introduits dans le milieu (rejet de  $^{238}\text{Pu}$  dans la Seine ou retombée de  $^{137}\text{Cs}$  sur le bassin versant) sur une période très courte au regard des temps de résidence attendus fournissent des éléments de compréhension précieux à cet égard.

## 4.2 *L'héritage des phosphogypses*

Dès avant que les premiers résultats ne soient produits, il avait été anticipé que les rejets de phosphogypses devaient faire l'objet d'une attention particulière. Il était cependant difficile de prédire à quel point l'héritage des phosphogypses était encore décelable dans les sédiments de la Darse des Docks, notamment en ce qui concerne les contaminants métalliques et les radionucléides des chaînes naturelles des uraniums et du thorium (radioactivité naturelle renforcée). Cela justifie pleinement l'effort consenti pour rassembler les éléments permettant de retracer l'histoire de l'industrie de la production des phosphates dans la région rouennaise et des rejets de phosphogypses associés. Nous en donnons ici les principaux éléments qui font l'objet d'un document séparé et d'une base de données associée.

### 4.2.1 Généralités sur les phosphogypses

La fabrication d'acide phosphorique (engrais phosphatés) engendre la production d'un sous-produit, le phosphogypse, selon la réaction suivante :



La production d'une tonne d'acide phosphorique nécessite 4 tonnes de minerai et 2,5 tonnes d'acide sulfurique, et génère environ 5 tonnes de phosphogypses. Dans les années 1980, en France, 6 millions de tonnes de phosphogypses étaient produites chaque année dont environ 63% en Seine-Maritime. Cette production s'est achevée en 2004.

Le phosphogypse contient de nombreux métaux ainsi que des traces d'éléments radioactifs provenant des impuretés naturelles des minerais phosphatés. Les rejets de phosphogypses dans l'environnement engendrent donc une contamination importante. Les éléments les plus couramment enrichis dans les phosphogypses sont le strontium, le baryum, le zirconium, le titane, le cadmium...

Dans l'estuaire amont de la Seine, deux usines ont produit de grandes quantités de phosphogypses marquant les sédiments de l'estuaire en divers contaminants. L'usine "Grande-Paroisse" située à Grand-Quevilly, soit à environ 5 km en amont de la Darse des Docks, a produit des phosphogypses de 1930 à 2004. L'usine "Potasse et Engrais Chimique" située à Grand-Couronne, 5 km en aval de l'entrée de la Darse des Docks, a produit des phosphogypses sur une période plus courte, 1974 à 1992. La production de phosphogypses de ces deux usines a fait l'objet d'une étude approfondie dans le cadre de ce projet.

#### 4.2.2 Constitution d'une base de données sur les phosphogypses

Une enquête a été menée auprès des industriels afin d'identifier les périodes et lieux de rejets de phosphogypses, ainsi que les quantités rejetées et la composition des rejets.

L'usine Grande Paroisse (GP) a commencé son activité vers 1930 ; jusqu'en 1974, les rejets de phosphogypses ont été effectués directement dans l'estuaire de la Seine. Les rejets les plus importants ont eu lieu entre 1968 et 1974. L'usine Potasse et Engrais Chimique (PEC) a commencé son activité en 1974. Entre 1974 et 1979, ces deux usines rejettent encore une partie de leur production de phosphogypses directement dans l'estuaire, environ 20%. A partir de 1974, la majorité des phosphogypses est transportée par barge jusqu'en baie de Seine, ce transport engendre de la surverse, c'est-à-dire une perte de phosphogypses lors du transport vers le large. Lors des périodes de mauvais temps, les usines sont autorisées à déverser le phosphogypse dans une "zone de repli" (non identifiée). A partir de 1984 pour GP, et de 1987 pour PEC, les phosphogypses sont stockés à terre ; les lixiviats sont récupérés et traités avant d'être rejetés dans l'estuaire de la Seine. La production de phosphogypse est stoppée en 2004 pour GP et en 1992 pour PEC (Figure 50 et Figure 51).

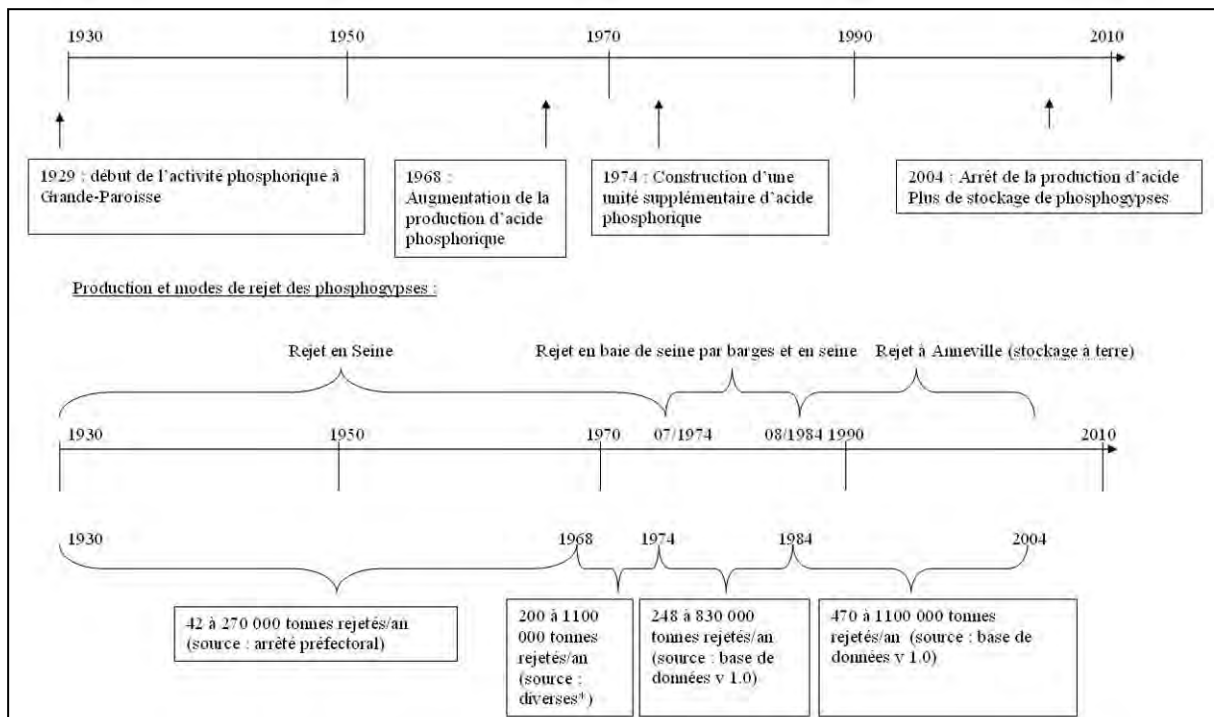


Figure 50. Historique de l'activité de l'usine Grande Paroisse

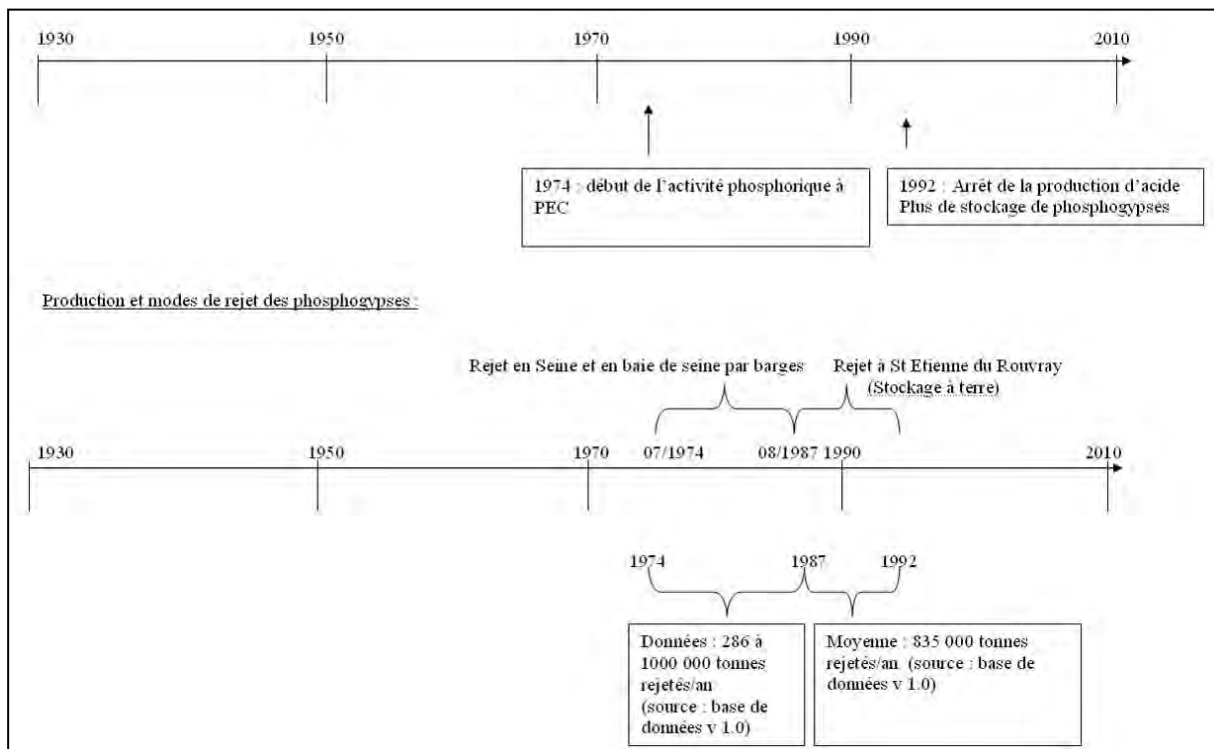


Figure 51. Historique de l'activité de l'usine Potasse et Engrais Chimiques

Une base de données retraçant les quantités de phosphogypses rejetées depuis 1974 a été créée, elle répertorie un ensemble de données recueillies auprès des industriels. Elle comporte les tonnages de phosphogypses rejetés pour chaque usine dans l'estuaire fluvial de la Seine, en baie de Seine, dans la zone de repli.

Elle comporte également les teneurs de certains composés minéraux ( $\text{SO}_4$ ,  $\text{CaO}$ ,  $\text{P}_2\text{O}_5$ ,  $\text{F}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{Cl}$ ) dans le minerai de départ, ainsi que l'origine de ce minerai et les teneurs de quelques métaux (arsenic, cadmium, cobalt, chrome, cuivre, fer, mercure, manganèse, nickel, plomb, titane, vanadium et zinc) dans les phosphogypses rejetés.

Les rejets directs dans l'estuaire de la Seine sont particulièrement importants entre 1972 et 1974 (Figure 52). Entre 1975 et 1979, ils diminuent considérablement, par contre les rejets en Baie de Seine sont très importants (Figure 53) et on estime que 15 % de ces rejets sont perdus dans l'estuaire lors de leur transport.

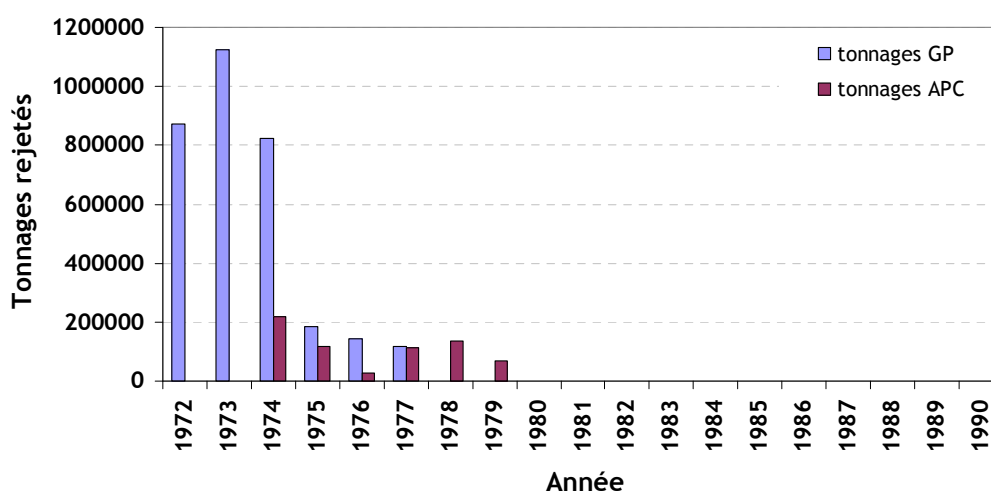


Figure 52. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés directement dans l'estuaire de la Seine (la surverse n'est pas représentée sur ce graphique)

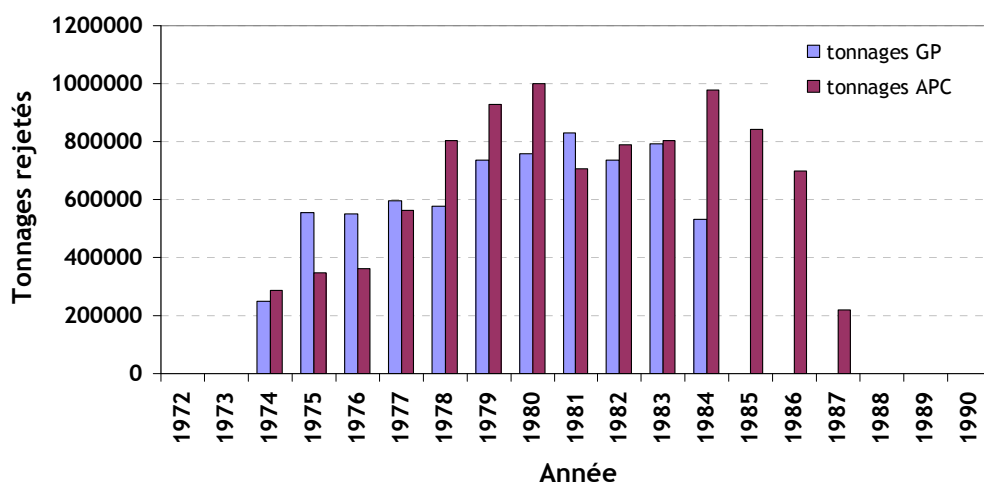


Figure 53. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés en Baie de la Seine

Le débit solide de la Seine est compris entre 100 000 et 1 700 000 tonnes de MES par an. Les rejets de phosphogypses ont un tonnage comparable au début des années 1970 avec des valeurs proches de 1 200 000 tonnes. Lors de calcul de flux de contaminants dans l'estuaire fluvial, il est important de prendre en compte ces données, puisque les



phosphogypses représentent un apport solide supplémentaire significatif par rapport aux mesures de MES effectuées à Poses.

Les teneurs en phosphore exprimées en % de  $P_2O_5$  sont relativement constantes variant entre 29,3 et 38,7 %, avec une moyenne de 33,1% et un écart-type de 2,4%. On peut donc faire l'hypothèse que les concentrations de phosphore seront également peu variables dans les phosphogypses rejetés et donc, qu'il est possible de faire une relation directe entre rejets de phosphogypses et teneurs en phosphore des sédiments carottés.

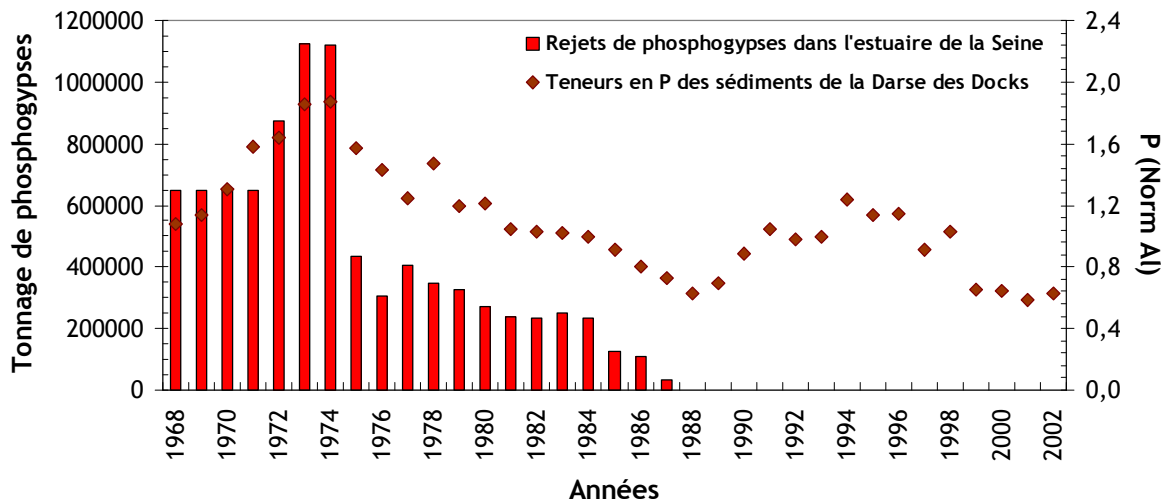


Figure 54. Rejets de phosphogypse dans l'estuaire fluvial de la Seine (rejets direct + surverse) et teneur normalisées à l'aluminium du phosphore dans les sédiments de la Darse des docks

Sur la Figure 54, la courbe représentant les rejets de phosphogypses présentent une allure similaire à celle représentant les teneurs de phosphore dans les sédiments. Cependant, les teneurs de phosphore dans les sédiments ne suivent pas immédiatement la diminution des quantités de rejets de phosphogypses entre 1974 et 1975. Cela s'explique par l'existence d'un temps de rémanence, il faut effectivement un certain temps avant qu'une contamination soit évacuée. A partir de ces données, le temps de rémanence a été estimé dans l'estuaire fluvial de la Seine comme variant entre 0,5 ans et 2 ans. Le temps de rémanence est défini comme le temps nécessaire à l'évacuation de la moitié de la quantité d'un élément donné.

#### 4.2.3 L'empreinte des contaminants métalliques

Pour chaque élément dont les teneurs ont été amplifiées par les rejets de phosphogypses, le rapport entre le FE maximal ( $FE_{max}$ ) de l'élément et le FE estimé sans contamination ( $FE_0$ ) a été calculé. Le  $FE_{max}$  correspondant à la valeur maximale lue sur le profil de

l'élément. Le  $FE_0$  correspond à la valeur de FE se trouvant sur l'axe entre le FE en 1966 et le FE en 1990 pour l'année 1974, année du maximum des rejets (Figure 55).

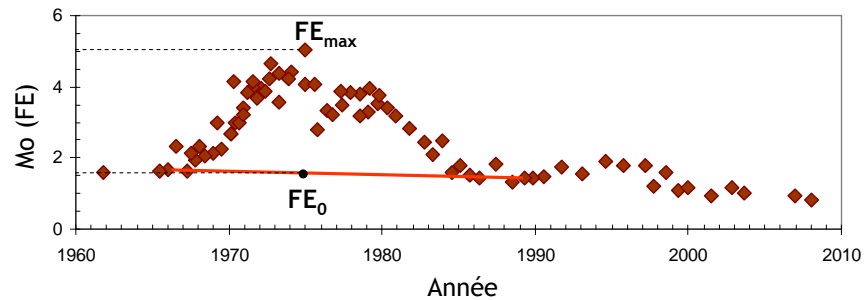


Figure 55. Identification du  $FE_{max}$  et du  $FE_0$  sur le profil du molybdène.

La Figure 56 propose un classement des éléments enrichis dans les phosphogypses selon le rapport  $FE_{max}/FE_0$ . Pour un rapport de 1,  $FE_{max} = FE_0$ , l'élément n'est pas influencé par les rejets de phosphogypses. Plus  $FE_{max}/FE_0$  est grand, plus la contamination par l'élément due aux rejets de phosphogypses est importante. Ce rapport comporte une incertitude liée principalement à la lecture du FE en 1966 ; effectivement, les valeurs sont parfois très variables à cette époque et il y a déjà des rejets de phosphogypses. Cependant, ce calcul permet de repérer les éléments les plus contaminants dans les rejets. A la lecture de ce graphique (Figure 56), on repère neuf contaminants dont le rapport est compris entre 1 et 2 : zirconium, cobalt, gallium, vanadium, cuivre, strontium, zinc, nickel, cadmium. Cinq contaminants ont un rapport compris entre 2 et 2,5 : béryllium, chrome, thorium, baryum, phosphore. Enfin cinq éléments sont particulièrement concentrés dans les phosphogypses : le bismuth et le molybdène ont un rapport  $FE_{max}/FE_0$  autour de 3, l'uranium, le lanthane (représentatif de l'ensemble des terres rares) et l'yttrium ont des rapports compris entre 5,5 et 7.

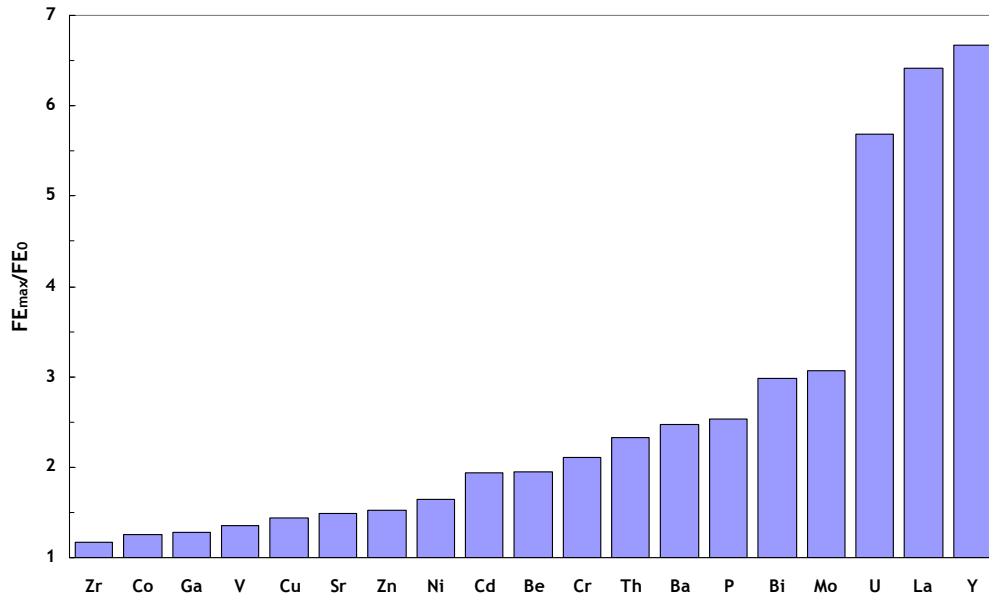


Figure 56. Rapport  $FE_{max} / FE_0$  pour différents éléments touchés par les rejets de phosphogypses

Certains éléments souvent retrouvés dans les rejets de phosphogypses ne sont pas représentés dans la Figure 56 ; il s'agit de l'argent, l'arsenic, le mercure et le plomb. L'argent, l'arsenic et le plomb présentent déjà des teneurs anormalement élevées dans les années 1960, il est donc difficile de connaître la part des phosphogypses dans l'enrichissement de ces éléments. Une étude du PIREN-Seine (Meybeck et al., 2007) indique des teneurs de plomb et d'arsenic très élevées depuis 1930 sur des sédiments carottés en amont du barrage de Poses ; les forts FE observés sur la Darse des Docks dans les années 1960 sont donc dus à des apports fluviaux. Cette étude montre également d'autres contaminations provenant de l'amont du barrage ; ainsi le cadmium, le zinc, le chrome et le cobalt, en plus d'être enrichis par les rejets de phosphogypses, le sont également dans les apports fluviaux. Les rapports  $FE_{max}/FE_0$  pour ces quatre éléments présentent donc très certainement une incertitude plus grande que pour les autres éléments.

### 4.3 La persistance des contaminants organiques

La diminution de la contamination organique mise en évidence dans ce projet résulte de politiques volontaristes et restrictives sur les usages de substances potentiellement toxiques. Ceci constitue un encouragement pour les gestionnaires en charge de la qualité des eaux et de l'environnement. Il conviendrait éventuellement de mettre en œuvre les moyens pour savoir si les diminutions observées sont à la hauteur des efforts consentis.

Les niveaux de concentrations en contaminants organiques mesurés dans les niveaux les plus profonds invitent à une évaluation rigoureuse du risque environnemental induit par d'éventuels dragages de ces matériaux, et leur destination ultime.

Les opérations de dragages et de re-immersion de sédiments portuaires dragués sont soumises à autorisation ; elle est accordée selon le niveau de contamination des matériaux à draguer en regard de valeurs seuils, les niveaux Géode N1 et N2. En dessous du niveau N1, le dragage est considéré ne présenter aucun risque pour le milieu naturel. A titre d'exemple, pour le PCB153, le niveau réglementaire actuel N1 (jugé peu sévère en regard des seuils de décision adoptés dans d'autres pays et des valeurs toxiques de référence pour ces substances, il pourrait être revu à la baisse très prochainement) est établi à  $50 \mu\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$  de sédiment sec soit près de dix fois en dessous des concentrations maximales mesurées dans les sédiments profonds datés des années 70.

Dans le domaine de la gestion des activités de dragages, les opérateurs se heurtent à la difficulté d'interpréter des mesures de substances de plus en plus nombreuses et diversifiées réclamant des analyses délicates et coûteuses pour lesquelles les critères d'évaluation environnementale ne sont pas disponibles. Par cette étude, et grâce à toutes les mesures réalisées, il paraît intéressant de rechercher l'existence d'une typologie de la contamination du sédiment contaminé sur la base des teneurs mesurées et du risque (par rapport aux valeurs toxiques de référence) et de réduire à quelques substances représentatives de la contamination chimique, substances qu'il faudrait suivre en priorité dans le cadre des procédures régissant la conduite des dragages.

#### ***4.4 Sédiments fins accumulés dans l'estuaire amont de la Seine : épuration ou rémanence***

##### **4.4.1 Résilience des communautés microbiennes en réponse à la contamination métallique et organique**

L'étude de la diversité microbienne des sédiments ne diminue pas de façon drastique en réponse à la contamination, même dans les échantillons des années 1970 pour lesquels des contaminations multiples ont été observées (HAP, PCB, métaux traces). Ces résultats suggèrent une résilience des communautés microbiennes (résilience spécifique) sans qu'il soit possible pour l'instant de savoir si une résilience fonctionnelle est également observée. Par ailleurs, le danger lié à la remobilisation de bactéries sporulantes résistantes aux métaux traces lors du remaniement de sédiments ne semble pas important.

#### 4.4.2 Persistance de gènes de résistance aux antibiotiques

Concernant les flux de gènes (virulence, résistance aux métaux lourds et antibiotiques) et du risque associé au transfert de ceux-ci vers d'autres espèces bactériennes, les résultats obtenus dans le cadre de ce projet suggèrent que les sédiments anciens ont une capacité d'auto épuration et ne semblent pas favorables au maintien de ces gènes issus de bactéries d'origine allochtone.

Le contexte semble différent pour les dépôts sédimentaires plus récents puisque ceux-ci semblent favorables au maintien de l'ADN de bactéries d'origine fécale et donc potentiellement des gènes de virulence associés et/ou des gènes de résistance aux antibiotiques. Comme suggéré par Van Elsas et Bailey (2002), les sédiments récemment déposés ainsi que les périphytons constitueraient au contraire des environnements plus favorables aux échanges génétiques par transferts génétiques horizontaux (conjugaison et transformation bactérienne) dans la mesure où les bactéries ne perdent pas leur viabilité ans ces environnements. Des éléments de réponse complémentaires seront apportés par le programme FLASH qui a évalué le flux de gènes de virulence associé aux bactéries circulant dans l'environnement aquatique le long de continuum établissement hospitalier-cours d'eau.

#### ***4.5 Constitution d'une banque de sédiments datés et de données***

Dans le cadre du projet RHAPSODIS, une sédimentothèque a été constituée au sein de l'UMR M2C 6143. Concernant la sécurisation des échantillons, ceux-ci sont stockés d'une part dans un réfrigérateur, et d'autre part, dans deux congélateurs -80°C pour lesquels un suivi continu de la température est effectué. Pour ces derniers, les enregistreurs de température associés transmettent régulièrement leurs mesures à un PC serveur. En cas de dysfonctionnement (coupure de courant, panne congélateur) et de dépassement d'une valeur seuil de température, le système bénéficie d'une sortie relais pour piloter une alarme déportée (transmetteur téléphonique vocal...). A terme les congélateurs seront associés à des groupes électrogènes prenant automatiquement le relais en cas de coupure de courant. Cette bancarisation concerne aussi les données associées aux différents échantillons (données géochimiques, contaminants organiques, espèces microbiennes).

## 5 CONCLUSIONS : LES ACQUIS DU PROJET RHAPSODIS

- Les sédiments accumulés dans la Darse des Docks représentent un enregistrement daté et conforme des concentrations en contaminants particulaires, métalliques, radioactifs et organiques qui ont circulé dans l'estuaire amont de la Seine depuis un demi-siècle ;
- Cet historique ainsi reconstitué montre une décroissance générale de la contamination, conforme à ce qui est observé à l'amont du barrage de Poses et révèle l'empreinte laissée par les rejets de phosphogypses qui se traduit par des concentrations en métaux et en radionucléides naturels élevées notamment dans les années 70 ;
- L'évolution des niveaux de concentration observée pour de nombreux contaminants ne laisse pas présager un retour à des valeurs naturelles avant des décennies ;
- Les radionucléides d'origine artificielle sont présents à des concentrations faibles mais tracent de façon très précise les retombées atmosphériques des essais nucléaires des années 60 et celles de l'accident de Tchernobyl en 1986 ( $^{137}\text{Cs}$ ), ainsi que les rejets contrôlés des installations nucléaires de la région parisienne ( $^{238}\text{Pu}$  et  $^{239, 240}\text{Pu}$ ) ;
- Les concentrations en contaminants organiques sont en diminution continue, mais à avec des cinétiques variées, sans les 50 dernières années, en réponse aux restrictions d'utilisation, mais l'imprégnation environnementale est durable ;
- La diversité spécifique des communautés microbiennes des sédiments est impactée par la contamination métallique et organique des sédiments. Cette diversité est influencée par les concentrations en HAP dans les sédiments les plus anciens de 1970, et par les contaminants métalliques dans ceux de 1971-1975 ;
- La contamination métallique peut imprégner durablement le compartiment microbien du milieu récepteur en enrichissant le patrimoine génétique des bactéries en gènes de résistance aux métaux traces. L'enrichissement observé dépend du mécanisme de résistance ciblé (cas du cadmium, zinc, cobalt) mais également du phylum étudié (cas du mercure) ;
- Il est difficile de relier l'abondance de ces gènes de résistance aux concentrations en métaux traces en raison des multiples mécanismes pouvant être développés pour un même métal (à l'exception du mercure) ;

- L'étude de la communauté sporulante de ces sédiments ne semble pas constituer un marqueur pertinent pour évaluer si ces communautés microbiennes ont été exposées à des concentrations toxiques en métaux traces ;
- L'ADN de bactéries allochtones d'origine fécale (y compris le pathogène *Salmonella*) et des gènes de résistance aux antibiotiques qui peuvent y être associés ne semblent pas se maintenir dans les sédiments les plus anciens (années 1970).

## 6 PERSPECTIVES ET QUESTIONNEMENTS NOUVEAUX

A l'issue du projet RHAPSODIS et dans son prolongement, il serait souhaitable :

- de veiller à la pérennité des banques d'échantillons secs, réfrigérés ou congelés sur lesquelles pourront s'appuyer de futures études ;
- de veiller à la pérennité de la banque de données brutes et interprétées constituée au cours du projet ;
- de poursuivre l'étude de l'impact des rejets anciens et actuels de phosphogypses (lessivage des stockages aériens) et des apports intra-estuariens diffus ;
- d'entreprendre une caractérisation des apports atmosphériques de contaminants sur les zones naturelles et urbaines ;
- de caractériser l'impact du ruissellement sur les zones urbaines aux flux de contaminants à la Seine ;
- de caractériser la diversité fonctionnelle associée aux communautés microbiennes des sédiments en relation avec la contamination métallique et organique, et relier les diversités spécifiques et fonctionnelles ;
- de caractériser le résistome (résistances aux antibiotiques) des sédiments par la construction d'une banque d'expression afin de s'affranchir des biais liés à l'amplification PCR.





## 7 LISTE DES COMMUNICATIONS ET PUBLICATIONS REALISEES PAR LES EQUIPES DANS LE CADRE DU PROJET RHAPSODIS

### Publications :

Ramond J.B., Berthe T., Duran R., Petit F., 2009. Comparative effects of mercury contamination and wastewater effluent input on Gram-negative *merA* gene abundance in mudflats of an anthropized estuary (Seine, France): a microcosm approach. *Res Microbiol* 160, 10-18.

Ramond J.B., Berthe T., Lafite R., Deloffre J., Ouddane B., Petit F., 2008. Relationships between hydrosedimentary processes and occurrence of mercury-resistant bacteria (*merA*) in estuary mudflats (Seine, France). *Mar Pollut Bull* 56, 1168-1176.

Berthe T., Touron A., Leloup J., Deloffre J., Petit, F., 2008. Faecal-indicator bacteria and sedimentary processes in estuarine mudflats (Seine, France). *Marine Pollution Bulletin* 57, 59-67.

### Communications orales/posters :

2012 (soumis) Kaci-Benaicha A., Cécillon S., Boust D., Lesueur P., Roose-Amsaleg C., Petit F., Berthe T., Effects of chemical contamination on sediment microbial diversity. ISME 14 Copenhagen.

2011 (oral) Benaicha-Kaci A., Boust D., Vrel A., Lesueur P., Deloffre J., Roose-Amsaleg C., Andremont A., Petit F., Berthe T. "Sediment cores: a valuable tool to assess the anthropological contamination of a drainage basin" Colloque 'Vulnerability of coastal ecosystems to global change and extreme events' Biarritz, 18-21 octobre 2011.

2010 (poster) Benaicha-Kaci A., Berthe T., Petit F., Lesueur P., Deloffre J., Boust D. Response of the microbial communities of the Seine estuary sediments to metal stress. 13th ISME meeting, Seattle, August 22-27 2010.

2010 (poster) Benaicha-Kaci A., Berthe T., Petit F., Lesueur P., Deloffre J., Boust D., Response of the microbial communities of the Seine estuary sediments to metal stress. 110th General Meeting of the American Society for Microbiology, 23-27 Mai 2010, San Diego (CA, USA).

2009 (poster) Vrel A., Deloffre J., Lesueur P., Massei N., Boust D., Sebag D., Application de l'analyse du signal à la sédimentologie : l'exemple de l'estuaire de Seine (France). Poster, Journées scientifiques "atelier climat et impacts" de l'université de Paris XI, Orsay, 5 et 6 novembre 2009.

2010 (poster) Larrieu, M., Sonke, J.E., Vrel, A., Zouiten, C., Chiffolleau, J.F., Boust, D., Lesueur, P., Variations temporelles de la composition isotopique du mercure dans les sédiments et les moules de l'estuaire de la Seine., 23<sup>ème</sup> Réunion des Sciences de la Terre, Bordeaux, 25 au 29 Octobre 2010.

2010 (poster) Larrieu M., Sonke J.E., Vrel, A., Zouiten C., Chiffolleau J.F., Boust D., Lesueur P., Variations temporelles de la composition isotopique du mercure dans les sédiments et les moules de l'estuaire de la Seine., Journées scientifiques "Les isotopes non-traditionnels nouvelle frontière en géochimie" de l'Observatoire Midi Pyrénées, Toulouse, 13 et 14 Octobre 2010.

2011 (oral) Vrel A., Boust D., Lesueur P., Cossonnet C., Deloffre J., Dubrulle-Brunaud C., Massei N., Rozet M., Solier L., Evolution pluriannuelle du pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine par l'analyse de radionucléides artificiels dans des carottes sédimentaires. 13<sup>ème</sup> congrès français de sédimentologie, Dijon, 14 au 15 novembre 2011.

2011 (oral) Vrel A., Boust D., Lesueur P., Cossonnet C., Deloffre J., Dubrulle-Brunaud C., Massei N., Rozet M., Solier L., Tidal pumping in the upper Seine estuary: evidence from radionuclides sediment record. 28<sup>th</sup> IAS Meeting of Sedimentology, Zaragoza, 5 au 9 juillet 2011.

2012 (poster) Vrel A., Boust D., Lesueur P., Deloffre J., Dillies R., Rozet M., Solier L., Dubrulle-Brunaud C., Cossonnet C., Thomas, S., Close deciphering of the sediment record of stable and radioactive contamination in the upper Seine estuary, over the last 50 years: a phosphogypsum legacy. European Geosciences Union General Assembly 2012, Vienna, 22 au 27 avril 2012.

## 8 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES CITEES

Avoine J., 1985. Evaluation des apports fluviaux dans l'estuaire de la Seine. La Baie de Seine (GRECO-Manche), Caen, 24-26 avril 1985, *Actes de Colloques* n°4, 117-124.

Bally G., Deloffre J., Mesnage V., Lafite R., Lesueur P., Brun-Cottan J. C., Boust D., Douville E., Rozet M., Leclerc G., Solier L., Bochet A., Leloup J., Quillet L., Petit F., Clarisse O., Ouddane B., Fischer J. C., Wartel M., Davoult D., Migne A., Lesourd S., Spilmont N., Miramand P., Fichet D., Blanchard G., Radenac G., Herman H., Guyot T., Huet V., 2002. Projet DYVA - Dynamique du fonctionnement des vasières. Rapport Seine-Aval, 134 pp.

Barns S.M., Cain E.C., Sommerville L., Kuske C.R., 2007. Acidobacteria phylum sequences in uranium-contaminated subsurface sediments greatly expand the known diversity within the phylum. *Applied and Environmental Microbiology*, 73, 3113-3116.

Bej A.K., DiCesare J.L., Haff L., Atlas R.M., 1991. Detection of *Escherichia coli* and *Shigella spp.* in water by using the polymerase chain reaction and gene probes for *uid*. *Applied and Environmental Microbiology*, 57, 1013-1017.

Berthe T., Tournon A., Leloup J., Deloffre J., Petit F., 2008. Faecal-indicator bacteria and sedimentary processes in estuarine mudflats (Seine, France). *Marine Pollution Bulletin*, 57, 59-67.

Boust, D., Lesueur, P., Rozet, M., Solier, L., Ficht, A., 2002. The dynamics of Co- labelled sediment particles in the Seine estuary. *Radioprotection* 37, C1, 749-754.

Boust D., Brunaud C., Lesueur P., Tessier B., Sorrel P., Dugué O., Poupinet N., Thouroude C., Lafite R., Laignel B., Durand A., Raux J., Deloffre J., Simon M., Rozet M., Solier L., 2007. Projet MEDIUM - Etude de la dispersion des sédiments par l'utilisation de marqueurs particuliers dans l'estuaire de la Seine. Rapport Seine-Aval, contrat I-2004-005, 125 pp.

Boust D., Cossonnet C., Rozet M., Solier L., Thomas S., Vrel A., 2012. Détection de concentrations anormales en Pu dans des sédiments de la Seine ; identification de la source et perspectives. Rapport PRP-ENV/SERIS/2012-00001, 11 pp.

- Breivik K., Sweetman A., Pacyna J.M., Jones K.C., 2002. Towards a global historical emission inventory for selected PCB congeners - a mass balance approach. I. Global production and consumption. *Sci. Total Environ.*, 290:181-198
- Budzinski H, Jones I, Bellocq J, Pierard C, Garrigues P., 1997. Evaluation of sediment contamination by polycyclic aromatic hydrocarbons in the Gironde estuary. *Mar Chem* 58:85-97.
- Chamley H., 2004. Bases de sédimentologie. Dunod, 187 pp.
- Deloffre J., 2005. La sédimentation fine sur les vasières intertidales en estuaires macrotidaux - Processus, quantification et modélisation de l'échelle semi-diurne à l'échelle annuelle. Thèse de doctorat en dynamique sédimentaire estuarienne et côtière, Université de Rouen, 236 pp.
- Deloffre J., Lafite R., Lesueur P., Lesourd S., Verney R., Guézennec L., 2005. Sedimentary processes on an intertidal mudflat in the upper macrotidal Seine estuary, France. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 64, 4, 710-720.
- Dillies R., 2010. Historique des apports en contaminants dans l'estuaire de la Seine sur les 50 dernières années. Etude portée sur les phosphogypses. Rapport de stage de Master 2, Université de Rouen, 30 pp.
- Dubrulle-Brunaud C., 2007. Les sédiments fins dans un système macrotidal actuel (Continuum Seine-Baie de Seine) : caractérisations géochimiques et minéralogiques, identification des sources. Thèse de doctorat en géologie, Université de Rouen, 332 pp.
- Dupont J. P., Lesueur P., Guezennec L., Mouchel J. M., 1997. Hydrodynamique et transport sédimentaire. Rapport Seine-Aval,, 14 pp.
- Franke S., 2007. Microbiology of the toxic noble metal silver. *Molecular Microbiology of Heavy Metals*, 343-355.
- Garcia K., 1996. Distribution et comportement du plutonium dans les eaux de la Manche et de l'estuaire de la Seine. Thèse de Doctorat en Sciences, Université Paris XI Orsay, 307 pp.
- Gillan D., Danis B., Pernet P., Joly G., Dubois P., 2005. Structure of sediment-associated microbial communities along a heavy-metal contamination gradient in the marine environment. *Applied and Environmental Microbiology*, 71, 679.

Glaser P., 2005. Les puces à ADN vont-elles révolutionner l'identification des bactéries? *M/S: médecine sciences* 21.

Guézennec L., 1999. Hydrodynamique et transport en suspension du matériel particulaire fin dans la zone fluviale d'un estuaire macrotidal : l'exemple de l'estuaire de la Seine (France). Thèse de doctorat en géologie, Université de Rouen, 237 pp.

Holm E., Persson R.B.R., 1978. Biophysical aspects of Am-241 and Pu-241 in the environment. *Radiation and Environmental Biophysics*, 15, 261-276.

IRSN, 2006. Tchernobyl. Collection thématique, 38 pp.

Jambon A., Thomas A. J., 2009. Géochimie - Géodynamique et cycles. Dunod, 406 pp.

Jeandel C., Martin J.M. et Thomas A.J., 1980. Origine et comportement des isotopes du plutonium et du césium-137 dans l'estuaire de la Seine. *C.R. Acad. Sc. Paris*, 291, 125-128.

Jensen S., 1966. cited in "Report of a new chemical hazard". *New. Sci.* 32: 612.

Johansson I., Heas-Moisan K., Guiot N., Munschy C., Jacek Tronczynski J., 2006. Polybrominated diphenyl ethers (PBDEs) in mussels from selected French coastal sites: 1981-2003. *Chemosphere* 64: 296-305.

Johannessen S.C., Macdonald R.W., Wrigh C.A., Burd B., Shaw D.P., van Roodselear A., 2008. Joined by geochemistry, divided by history : PCBs and PBDEs in Strait of Georgia sediments. *Mar. Environ. Res.* 66: S112-S120 Georgia sediments.

Knapp C.W., Dolfig J., Ehlert P.A.I., Graham D.W., 2009. Evidence of increasing antibiotic resistance gene abundances in archived soils since 1940. *Environmental Science & Technology*, 44, 580-587.

Léauté F., 2008. Biogéochimie des contaminants organiques HAP, PCB et pesticides organochlorés dans les sédiments de l'étang de Thau ; *Thèse Univ. P. et M. Curie Paris*

LaButti K., Mayilraj S., Clum A., Lucas S., Del Rio T.G., Nolan M., Tice H., Cheng J.F., Pitluck S., Liolios K., 2010. Permanent draft genome sequence of *Dethiosulfovibrio peptidovorans* type strain (SEBR 4207T). *Standards in genomic sciences*, 3, 85.

Lesourd S., 2000. Processus d'envasement d'un estuaire macrotidal : zoom temporel du siècle à l'heure ; application à l'estuaire de la seine. Thèse de doctorat en terre solide et enveloppe superficielle, Université de Caen, 303 pp.

Lesueur P., Lesourd S., Auffret J. P., Avoine J., Bassoullet P., Brun-Cottan J. C., Dupont J. P., Guézennec L., Lafite R., Poupinet N., 1999. Sables, chenaux, vasières... : dynamique des sédiments et évolution morphologique. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°3, Ifremer (éd.), 39 pp.

Massei N., Durand A., Deloffre J., Dupont J. P., Valdes D., Laignel B., 2007. Investigating possible links between the North Atlantic Oscillation and rainfall variability in northwestern France over the past 35 years. *Journal of Geophysical Research*, 112, 1-10.

Massei N., Laignel B., Deloffre J., Mesquita J., Motelay A., Lafite R., Durand A., 2011. Long-term hydrological changes of the Seine River flow (France) and their relation to the North Atlantic Oscillation over the period 1950-2008. *International Journal of Climatology*, 30, 2146-2154.

Metzger R. J. W., Mcklveen R., Jenkins R., Mcdowell W. J., 1980. Specific activity of uranium and thorium in marketable rock phosphate as a function of particle size. *Health Physics*, 39, 69-75.

Meybeck M., Lestel L., Bonté P., Moilleron R., Colin J. L., Rousselot O., Hervé D., De Pontevès C., Grosbois C., Thévenot D. R., 2007. Historical perspective of heavy metals contamination (Cd, Cr, Cu, Hg, Pb, Zn) in the Seine River basin (France) following a DPSIR approach (1950-2005). *Science of The Total Environment* 375, 1-3, 204-231.

Migeon S., Weber O., Faugères J. C., Saint-Paul J., 1999. SCOPIX: A new X-ray imaging system for core analysis. *Geo-Marine Letters*, 18, 251-255.

Mondani L., Benzerara K., Carrière M., Christen R., Mamindy-Pajany Y., Février L., Marmier N., Achouak W., Nardoux P., Berthomieu C., 2011. Influence of Uranium on Bacterial Communities: A Comparison of Natural Uranium-Rich Soils with Controls. *PLoS One* 6, e25771.

Muyzer G., Smalla K., 1998. Application of denaturing gradient gel electrophoresis (DGGE) and temperature gradient gel electrophoresis (TGGE) in microbial ecology. *Antonie Van Leeuwenhoek* 73, 127-141.

Nies D., 2007. Molecular microbiology of heavy metals (Microbiology monographs, Vol. 6). *Recherche*, 67, 02.

Nies D.H., Nies A., Chu L., Silver S., 1989. Expression and nucleotide sequence of a plasmid-determined divalent cation efflux system from *Alcaligenes eutrophus*. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 86, 7351.

Oberlé K., Capdeville M.J., Berthe T., Budzinski H., Petit F., 2012. Evidence for a complex relationship between antibiotics and antibiotic-resistant *Escherichia coli*: from medical center patients to a receiving environment. *Environmental Science & Technology*, 46 (3), 1859-1868.

Oger C., Berthe T., Quillet L., Barray S., Chiffolleau J.F., Petit F., 2001. Estimation of the abundance of the cadmium resistance gene *cadA* in microbial communities in polluted estuary water. *Research in Microbiology*, 152, 671-678.

Oregaard G., Sørensen S.J., 2007. High diversity of bacterial mercuric reductase genes from surface and sub-surface floodplain soil (Oak Ridge, USA). *The ISME Journal*, 1, 453-467.

Poirel L., Kämpfer P., Nordmann P., 2002. Chromosome-encoded Ambler class A -lactamase of *Kluyvera georgiana*, a probable progenitor of a subgroup of CTX-M extended-spectrum -lactamases. *Antimicrobial Agents and Chemotherapy*, 46, 4038.

Poirel L., Rodriguez-Martinez J.M., Mammeri H., Liard A., Nordmann P., 2005. Origin of plasmid-mediated quinolone resistance determinant QnrA. *Antimicrobial Agents and Chemotherapy* 49, 3523.

Ramond J.B., Berthe T., Lafite R., Deloffre J., Ouddane B., Petit F., 2008. Relationships between hydrosedimentary processes and occurrence of mercury-resistant bacteria (*merA*) in estuary mudflats (Seine, France). *Mar Pollut Bull.*, 56, 1168-1176.

Renaud P., Roussel-Debet S., 2008. Les essais atmosphériques d'armes nucléaires : des retombées radioactives à l'échelle planétaire. Fiche Information, IRSN, 23 pp.

Schaefer J.K., Yagi J., Reinfelder J.R., Cardona T., Ellickson K.M., Tel-Or S., Barkay T., 2004. Role of the bacterial organomercury lyase (MerB) in controlling methylmercury accumulation in mercury-contaminated natural waters. *Environmental Science & Technology*, 38, 4304-4311.

Sebesta F., Benes P., Sedlacek J., John J., Sandrik R., 1981. Behavior of radium and barium in a system including uranium mine waste waters and adjacent surface waters. *Environmental Sciences and Technology*, 15, 71-75.



GIP Seine-Aval, 2008. Apports en eau douce à l'estuaire de la Seine. Fiche thématique du GIP Seine-Aval, 6 pp.

Servais P., Castignolles N., Petit F., George I., Buffet Janvresse C., Ficht A., 1999. L'estuaire de la Seine. Contamination bactérienne et virale. Fascicule Seine-Aval. Ifremer (eds) 27 pp.

Silver S., 2003. Bacterial silver resistance: molecular biology and uses and misuses of silver compounds. *FEMS Microbiology Reviews*, 27, 341-353.

Sommer M.O.A., Dantas G., Church G.M., 2009. Functional characterization of the antibiotic resistance reservoir in the human microflora. *Science*, 325, 1128-1131.

Thomas A. J., 1988. Géochimie des radioéléments naturels et artificiels : application à l'étude de l'interface continent-océan. Thèses de doctorat d'état en sciences, Université Pierre Marie Curie, 300 pp.

Touron A., Berthe T., Pawlak B., Petit F., 2005. Detection of *Salmonella* in environmental water and sediment by a nested-multiplex polymerase chain reaction assay. *Research in Microbiology*, 156, 541-553.

Turekian K. K., Wedepohl K. H., 1961. Distribution of the Elements in Some Major Units of the Earth's Crust. *Geological Society of America Bulletin* 72, 175-192.

Vane C.H., Chenery S. R., Harrison I., Kim A. W., Moss-Hayes V. and Jones D. G., 2011. Chemical signatures of the anthropocene in the Clyde estuary, UK: sediment-hosted Pb, 207/206 Pb total petroleum hydrocarbon, polyaromatic hydrocarbon and polychlorinated biphenyl pollution records. *Phil. Trans. R. Soc. A.*, 2011 369, 1085-1111.

Vane, C. H., Ma, Y. J., Chen, S. J., Mai, B. X., 2010. Increasing polybrominated diphenyl ether (PBDE) contamination in sediment cores from the Inner Clyde Estuary, UK. *Environ. Geochem. Health*, 32, 13-21.

Vernhet E. (2000). Comparaison du fonctionnement morphosédimentaire de vasières intertidales d'un estuaire à fortes marées. Application à la Seine. Rapport DEA 3G.S., Université de Caen, 57 pp.

Vrel A., 2009. L'enregistrement sédimentaire au cours des dernières décennies et ses forçages dans la partie fluviale de l'estuaire de la Seine : L'exemple d'une darse du port de Rouen. Rapport de stage de Master 2, Université de Rouen, 41 pp.

Vrel A., Boust D., Lesueur P., Cossonnet C., Deloffre J., Dubrulle-Brunaud C., Massei N., Rozet M., Solier L., 2011. Tidal pumping in the upper Seine estuary : evidence from radionuclides sediment record. 28<sup>th</sup> IAS Meeting of Sedimentology, Zaragoza, Spain, 5 au 9 juillet 2011.

Wright G.D., 2007. The antibiotic resistome: the nexus of chemical and genetic diversity. *Nature Reviews Microbiology*, 5, 175-186.

Zeng J., Yang L., Li J., Liang Y., Xiao L., Jiang L., Zhao D., 2009. Vertical distribution of bacterial community structure in the sediments of two eutrophic lakes revealed by denaturing gradient gel electrophoresis (DGGE) and multivariate analysis techniques. *World Journal of Microbiology and Biotechnology*, 25, 225-233.

Yunker, M. B., Macdonald, R. W., Vingarzan, R., Mitchell, R. H., Goyette, D. & Sylvestre, S., 2002. PAHs in the Fraser River basin: a critical appraisal of PAH ratios as indicators of PAH source and composition. *Org. Geochem.*, 33:489-515.

Zwart G., Hiorns W.D., Methé B.A., van Agterveld M.P., Huismans R., Nold S.C., Zehr J.P., Laanbroek H.J., 1998. Nearly identical 16S rRNA sequences recovered from lakes in North America and Europe indicate the existence of clades of globally distributed freshwater bacteria. *Systematic and applied microbiology*, 21, 546-556.



## 9 LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Données bathymétriques relevées sur les cartes au site 2 et taux de sédimentation associés .....	30
Tableau 2. Repères chronologiques sur le profil reconstitué de la Darse des Docks.....	32
Tableau 3. Caractéristiques des tendances évolutives de la contamination en PCB des sédiments ; k : constante de vitesse de décroissance ; $T_{1/2}$ : période de décontamination en années.....	66
Tableau 4. Caractéristiques des tendances évolutives de la contamination en HAP des sédiments ; k : constante de vitesse de décroissance ; $r^2$ : coefficient de corrélation ; $T_{1/2}$ : période de décontamination en années. ....	69
Tableau 5. Rapports isomériques des PAH dans les sédiments de la Darse des Docks (d'après Vane <i>et al.</i> , 2012 ; moyenne des rapports pour chacune des périodes données. A : anthracène ; Ph : phénanthrène ; Fa : fluoranthène ; P : pyrène ; BaA : benzo-a-anthracène ; C : chrysène ; IP : indéno-pyrène ; BP : benzo-ghi-pérylène). ....	70
Tableau 6. Comparaison de purifications des acides nucléiques de deux échantillons (Ech A et Ech B) de la carotte sédimentaire. ....	74
Tableau 7. Similarité au niveau des séquences protéiques partielles CzcA détectées dans deux échantillons de sédiments de la carotte RHAPSODIS présentant des concentrations contrastées en (cobalt, zinc et cadmium). Sédiments de 1974,9. ....	90
Tableau 8. Similarité au niveau des séquences protéiques partielles CzcA détectées dans deux échantillons de sédiments de la carotte RHAPSODIS présentant des concentrations contrastées en (cobalt, zinc et cadmium). Sédiments de 2002,8. ....	91
Tableau 9. Dénombrement des bactéries hétérotrophes sporulantes (aérobies et anaérobies) résistantes au cadmium et mercure dans quatre échantillons de la carotte RHAPSODIS. ....	93
Tableau 10. Détection des gènes <i>uidA</i> , <i>fliC</i> et <i>bla</i> -TEM, <i>bla</i> -CTX-M, <i>mecA</i> et <i>tet(A)</i> le long de la carotte sédimentaire. (+) et (-) indiquent respectivement la présence et l'absence des gènes recherchés, (NA) indique les échantillons qui n'ont pas été analysés.....	96



## 10 LISTE DES FIGURES

Figure 1. L'estuaire de la Seine (PK = Point Kilométrique).....	11
Figure 2. Courbes de marée à Petit Couronne par différents coefficients. Heures et hauteurs référencées par rapport à la basse mer au Havre et au 0 des cartes marines du Havre (données Grand Port Maritime de Rouen, annuaire des marées 2010).....	15
Figure 3. Vitesses de courant dans le chenal de la Seine à Rouen par différents coefficients (données Grand Port Maritime de Rouen, annuaire des marées 2010).....	16
Figure 4. Carte de localisation de la Darse des Docks (Photo : Géoportail).....	17
Figure 5. Carte de la Darse des Docks de 1929 (Source : GPMR).....	18
Figure 6. Carte bathymétrique de la Darse des Docks d'après des relevés effectués en 2008 (la légende en couleur est exprimée en m CMH) .....	19
Figure 7. Photo de la barge Lamatrans I utilisée pour la campagne de carottage en 2008 (C. Dubrulle-Brunaud).....	20
Figure 8. Localisation des sites de carottages des campagnes de 2008 (site 2 retenu) et de 2010 (site3).....	21
Figure 9. Photo de la barge Lamatrans II utilisée pour la campagne de carottage en 2010 (C. Dubrulle-Brunaud).....	21
Figure 10. Log descriptif de la carotte 2VC2 effectué lors de l'ouverture de la carotte ...	23
Figure 11. Diagramme ternaire des textures pour deux types d'échantillonnage réalisé sur les carottes 2VC1 et 2VC2 .....	25
Figure 12. Extraits représentatifs du profil SCOPIX® de la carotte 2VC2 (les profondeurs sont indiquées en cm).....	26
Figure 13. Teneur en eau des carottes 2VM1, 2VC1 et 3VC2 après corrections de la profondeur sur la carotte 2VC1 et 3VC2.....	28
Figure 14. Biais lié à la résolution verticale de sous échantillonnage pour la mise en correspondance des carottes 2VM1 et 2VC1. ....	29
Figure 15. Schéma illustrant les ruptures (hiatus) dans la sédimentation sur le site de la Darse des Docks. ....	33
Figure 16. Evolution de la sédimentation au cours du temps sur le site de la Darse des Docks .....	34
Figure 17. Analyse en ondelettes effectuée sur les niveaux de gris de la carotte 2VC2 après traitement des données par un filtre de Savitzky-Golay.....	36
Figure 18. Teneur en aluminium des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps. ....	37
Figure 19. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments majeurs des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps - l'échelle des ordonnées est variable en fonction des éléments.....	39
Figure 20. Corrélation entre la teneur de silicium (%) et la perte au feu (%) dans les sédiments carottés de la Darse des Docks. ....	40
Figure 21. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments traces des sédiments de la Darse des Docks présentant peu de variations au cours du temps.....	41
Figure 22. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments traces des sédiments de la Darse des Docks en diminution constante au cours du temps .....	42

Figure 23. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) des éléments mineurs influencés par les rejets de phosphogypses des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps .	43
Figure 24. Evolution des Facteurs d'Enrichissement (FE) de 4 terres rares dans les sédiments de la Darse des Docks au cours du temps .....	44
Figure 25. Teneurs en aluminium au cours du temps dans les MES prélevées à la Bouille (en orange) et dans les sédiments des carottes datées prélevées dans la Darse des Docks (en marron) .....	45
Figure 26. Teneurs normalisées à l'aluminium de 12 éléments au cours du temps mesurées dans les MES prélevées à la Bouille (en orange) et dans les sédiments des carottes datées prélevées dans la Darse des Docks (en marron) .....	47
Figure 27. Evolution temporelle des concentrations en $^{137}\text{Cs}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt (notées $^{137}\text{Cs}^*$ ), exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .	52
Figure 28. Evolution temporelle des concentrations en $^{238}\text{Pu}$ et $^{239, 240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date de 2010 exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .	52
Figure 29. Evolution temporelle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu} / ^{239, 240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance du $^{238}\text{Pu}$ depuis le dépôt, notées *. La barre horizontale représente la valeur caractéristique des retombées des essais nucléaires atmosphériques. ....	53
Figure 30. Evolution temporelle des concentrations en $^{241}\text{Am}$ et $^{244}\text{Cm}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées * pour le $^{244}\text{Cm}$ , exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .	54
Figure 31. Evolution temporelle des concentrations en phosphore dans les sédiments de la Darse des Docks. ....	55
Figure 32. Evolution temporelle des concentrations des radionucléides émetteurs gamma de la chaîne du $^{232}\text{Th}$ : $^{228}\text{Ac}$ , $^{212}\text{Pb}$ , $^{208}\text{Tl}$ ; les activités en $^{232}\text{Th}$ ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en $^{208}\text{Tl}$ ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les concentrations en $^{212}\text{Bi}$ , très voisines de celles en $^{212}\text{Pb}$ , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ .	56
Figure 33. Evolution temporelle des concentrations en $^{235}\text{U}$ et $^{227}\text{Th}$ ; valeurs en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ .	57
Figure 34. Evolution temporelle des concentrations des radionucléides émetteurs gamma de la chaîne de l' $^{238}\text{U}$ : $^{234}\text{Th}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^{214}\text{Pb}$ , $^{210}\text{Pb}$ ; les activités en $^{238}\text{U}$ ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en $^{214}\text{Bi}$ , très voisines de celles en $^{214}\text{Pb}$ , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}}$ .	57
Figure 35. Comparaison entre les concentrations en radionucléides mesurées dans les matières en suspension de la Seine entre 1979 et 2000 (d'après Thomas, 1988 ; Garcia, 1997 ; Jeandel <i>et al.</i> , 1980 ; IRSN, données non publiées) et les concentrations déduites aux mêmes dates de l'enregistrement sédimentaire daté de la Darse des Docks ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$ .	58
Figure 36. Evolution temporelle de la contamination en PCB des sédiments de la Darse des Docks. ....	65

Figure 37. Evolution de la composition des PCB entre 1970 et 2010. Il s'agit de la composition pour chacun des PCB (%C <sub>Bi</sub> = 100* PCB <sub>i</sub> /Somme 7PCB) et ce sont les valeurs moyennes calculées tous les 5 ans qui sont représentées. ....	66
Figure 38. Evolution temporelle de la contamination en HAP des sédiments de la Darse des Docks. ....	68
Figure 39. Evolution temporelle de la contamination en HAP alkylés des sédiments de la Darse des Docks. ....	69
Figure 40. Evolution temporelle de la contamination par le PBDE47 et quelques pesticides organochlorés dans les sédiments de la Darse des Docks. ....	71
Figure 41. Evolution de la contamination en PCB mesurés dans les moules de Villerville sur la période 1980-2005. Les concentrations en PCB sont recalculées en utilisant un coefficient correctif pour tenir compte du changement du mode d'analyse des PCB et de l'expression des concentrations, d'équivalent de mélanges techniques au composé individuel en 1992. ....	72
Figure 42. Rendement d'extraction de l'ADN génomique en utilisant deux kits FastDNA (BIO 101) et PowerSoil (MO BIO). M, marqueur de taille Smartladder (Eurogentec) ; 1 et 2, ADN génomiques des échantillons 1 et 2 extraits par le protocole BIO 101 ; 3 et 4, ADN génomiques des échantillons 1 et 2 extraits par le protocole MO BIO. ....	73
Figure 43: Amplification de l'ADNr 16S à partir des acides nucléiques purifiés selon trois différents protocoles. M, marqueur de taille Smartladder (Eurogentec); T+, ADN génomique d'une souche bactérienne; T-, témoin négatif ; puits 1, 10 ng échantillon 1 AllPrep ; puits 2, 1 ng échantillon 1 AllPrep ; puits 3, 0.1 ng échantillon 1 AllPrep ; puits 4, 10 ng échantillon 1 Elutip-D; puits 5, 1 ng échantillon 1 Elutip-D ; puits 6, 0.1 ng échantillon 1 Elutip-D; puit 7, 10 ng échantillon 1 QIAamp DNA stool ; puits 8, 1 ng échantillon 1 QIAamp DNA stool.....	74
Figure 44. Détermination de l'abondance de (A) bactéries et (B) d'Archées (exprimé en nombre de copies d'ADNr 16S/g sédiment sec) dans les sédiments de la carotte RHAPSODIS. ....	75
Figure 45. Classification ascendante hiérarchique des profils DGGE obtenus à partir de l'ADNr 16S des Bactéries (A) et des Archées (B) dans les sédiments de la carotte. ....	77
Figure 46. Abondance relative de chaque phylum (Bactéries et d'Archées) obtenus au sein de la communauté microbienne des sédiments de la carotte RHAPSODIS. L'intensité des signaux de fluorescence obtenus par la puce phylogénétique (Phylochips, exprimés en Unité Relative de Fluorescence) est proportionnelle à l'abondance des phylums ciblés. ..	81
Figure 47. Analyse de co-inertie associée aux deux jeux de données (chimiques et espèces microbiennes). La datation des sédiments pour les différents échantillons correspond respectivement à : VM001, 2008 ; VM009, 2003,7 ; VCA008, 1998,6 ; VCA014, 1994,6 ; VCA017, 1993 ; VCA023, 1990,5 ; VCA027, 1898,3; VB005, 1985,7 ; VCC011, 1974,9 ; VCC014, 1974,1 ; VCC017, 1973,2 ; VCC019, 1972,7 ; VCC023, 1971,5 ; VCC025, 1971 ; VCC027, 1970,4 ; VCC028, 1970,1.....	83
Figure 48. Détection moléculaire des gènes (A) <i>merA</i> , (B) <i>silA</i> et <i>silP</i> et (C) <i>czcA</i> dans les sédiments de la carotte Rhapsodis. (■) présence et (■) absence du gène cible.....	86
Figure 49. Evolution du nombre de copies du gène <i>silA</i> /g de sédiment sec le long d'un gradient de contamination en Ag <sup>+</sup> .....	89
Figure 50. Historique de l'activité de l'usine Grande Paroisse .....	102
Figure 51. Historique de l'activité de l'usine Potasse et Engrais Chimiques.....	102



Figure 52. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés directement dans l'estuaire de la Seine (la surverse n'est pas représentée sur ce graphique).....	103
Figure 53. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés en Baie de la Seine .....	103
Figure 54. Rejets de phosphogypse dans l'estuaire fluvial de la Seine (rejets direct + surverse) et teneur normalisées à l'aluminium du phosphore dans les sédiments de la Darse des docks.....	104
Figure 55. Identification du $FE_{max}$ et du $Fe_0$ sur le profil du molybdène.....	105
Figure 56. Rapport $FE_{max} / FE_0$ pour différents éléments touchés par les rejets de phosphogypses .....	106

## 11 TABLE DES MATIERES

SOMMAIRE.....	5
CONTEXTE ET QUESTIONNEMENTS A L'ORIGINE DU PROJET .....	7
CONTEXTE ET QUESTIONNEMENTS A L'ORIGINE DU PROJET .....	7
1 STRUCTURE DU DOCUMENT.....	9
2 L'ESTUAIRE AMONT DE LA SEINE : CONTEXTE HYDROLOGIQUE ET HYDRODYNAMIQUE. 11	
2.1 Introduction.....	11
2.2 La morphologie et les sédiments de l'estuaire amont.....	12
2.3 Les forçages .....	13
2.3.1 Le forçage amont : le débit fluvial.....	13
2.3.2 Le forçage aval : le rôle de la marée .....	14
3 RESULTATS SCIENTIFIQUES .....	17
3.1 La Darse des Docks : éléments de justification du choix du site.....	17
3.1.1 Eléments contextuels : histoire de l'exploitation du site .....	18
3.1.2 Eléments disponibles avant le projet RHAPSODIS et études préliminaires ..	18
3.2 La Darse des Docks : dynamique de remplissage et validation du site .....	19
3.2.1 Campagnes de carottages : brève description des opérations .....	19
3.2.2 Description du matériel de remplissage .....	22
3.2.3 Assemblage des tronçons carottés.....	26
3.2.3.1 Calage des carottes 2VM1 et 2VC1.....	27
3.2.3.2 Calage des carottes 2VC1 et 3VC2.....	29
3.2.4 Construction d'un modèle d'âge.....	29
3.2.4.1 Evolution de la bathymétrie au point de carottage par l'étude de cartes bathymétriques .....	30
3.2.4.2 Mise en évidence de repères chronologiques .....	31
3.2.4.3 Etude des cyclicités présentes dans la sédimentation par l'analyse du signal	32
3.2.4.4 Datation de la partie inférieure de la carotte de la Darse des Docks en utilisant le rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ enregistré dans la carotte de Bouafles33	
3.2.4.5 Modèle d'âge du profil de la Darse des Docks .....	34
3.2.5 Conclusion : validation du modèle d'âge .....	35
3.3 La Darse des Docks : quantification de la contribution des forçages par traitement du signal des images SCOPIX® .....	35
3.3.1 Rappels méthodologiques.....	35
3.3.2 Forçages naturels .....	36

3.3.3	Forçages anthropiques .....	37
3.4	Reconstitution des apports en contaminants métalliques .....	37
3.4.1	Evolution temporelle des concentrations enregistrées dans les sédiments .	38
3.4.1.1	Eléments majeurs .....	38
3.4.1.2	Eléments traces .....	40
3.4.1.3	Terres rares .....	44
3.4.2	Les concentrations mesurées dans les carottes sont-elles représentatives de celles mesurées dans les matières en suspension ? .....	44
3.4.2.1	Comparaison des sédiments de la Darse des Docks avec les MES analysées par la Cellule Anti-pollution pour 12 des éléments analysés.....	44
3.4.2.2	Cas des autres éléments non analysés dans le cadre du suivi des MES....	48
3.5	Reconstitution des apports en radionucléides .....	48
3.5.1	Rappel sur les radionucléides analysés dans les carottes .....	48
3.5.1.1	Radionucléides d'origine artificielle .....	48
3.5.1.2	Radionucléides d'origine naturelle .....	49
3.5.2	Evolution temporelle des concentrations enregistrées dans les sédiments .	50
3.5.2.1	Radionucléides d'origine artificielle .....	50
3.5.2.2	Radionucléides d'origine naturelle .....	54
3.5.3	Les concentrations mesurées dans les carottes sont-elles représentatives de celles mesurées dans les matières en suspension ? .....	57
3.5.4	Conclusions .....	58
3.6	Reconstitution des apports en contaminants organiques .....	59
3.6.1	Nature, origine et caractéristiques générales des contaminants organiques analysés	59
3.6.2	Evolution temporelle des concentrations enregistrées dans les sédiments .	63
3.6.2.1	Les polychloro-biphényles (PCB) .....	63
3.6.2.2	Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP).....	67
3.6.2.3	Les polybromodiphényléthers (PBDE) et les pesticides organochlorés. ...	70
3.6.3	Les concentrations mesurées dans les carottes sont-elles représentatives de celles mesurées dans les matières en suspension ? .....	71
3.6.3.1	Comparaison des concentrations en contaminants organiques dans les sédiments RHAPSODIS avec celles mesurées par la Cellule Anti-Pollution dans les matières en suspension. ....	71
3.6.3.2	Comparaison avec d'autres séries .....	72
3.7	Existe-t-il une relation entre la diversité microbienne et le niveau de contamination chimique le long de la carotte ?.....	72

3.7.1	Optimisation de l'extraction des acides nucléiques .....	73
3.7.2	Estimation de l'abondance bactérienne en fonction de l'âge des sédiments	74
3.7.3	Etude de la structure des communautés microbiennes par empreinte moléculaire .....	75
3.7.4	Etude de la diversité des communautés microbiennes par puces phylogénétiques (Phylochips) .....	78
3.8	Impact de la contamination métallique des sédiments sur la communauté microbienne résistante aux métaux traces .....	84
3.8.1	Existe-t-il une relation entre l'occurrence de gènes de résistance en métaux traces et la contamination chimique ?.....	85
3.8.1.1	Occurrence du gène de résistance au mercure (merA).....	85
3.8.1.2	Occurrence des gènes de résistance à l'argent (silA et silP) .....	87
3.8.1.3	Occurrence des gènes de résistance au cadmium (cadA et czcA).....	88
3.8.2	Existe-il une relation entre l'abondance des gènes de résistance aux métaux traces et la contamination métallique des sédiments ?.....	88
3.8.3	Impact de la contamination en cadmium, zinc et cobalt sur la diversité du gène czcA .....	89
3.8.4	Etude des bactéries sporulantes résistantes aux métaux traces.....	92
3.9	Persistance des gènes de résistance aux antibiotiques et des bactéries d'origine fécale	94
3.9.1	Persistance de gènes de bactéries fécales dans les sédiments.....	94
3.9.2	Persistance de gènes de résistance aux antibiotiques dans les sédiments estuariens. ....	96
4	RETOMBÉES OPERATIONNELLES DIRECTES ET INDIRECTES .....	99
4.1	Historique de la contamination du haut estuaire de la Seine et éléments prédictifs.....	99
4.1.1	Calcul des flux de contaminants au haut estuaire de la Seine .....	99
4.1.2	Caractérisation des sédiments de la Darse des Docks et risque écotoxicologique.....	99
4.1.3	Réponse des niveaux de contamination à la réduction de l'usage et/ou des rejets	100
4.2	L'héritage des phosphogypses .....	100
4.2.1	Généralités sur les phosphogypses .....	100
4.2.2	Constitution d'une base de données sur les phosphogypses .....	101
4.2.3	L'empreinte des contaminants métalliques.....	104
4.3	La persistance des contaminants organiques .....	106

4.4	Sédiments fins accumulés dans l'estuaire amont de la Seine : épuration ou rémanence .....	107
4.4.1	Résilience des communautés microbiennes en réponse à la contamination métallique et organique .....	107
4.4.2	Persistence de gènes de résistance aux antibiotiques.....	108
4.5	Constitution d'une banque de sédiments datés et de données .....	108
5	CONCLUSIONS : LES ACQUIS DU PROJET RHAPSODIS .....	109
6	PERSPECTIVES ET QUESTIONNEMENTS NOUVEAUX .....	111
7	LISTE DES COMMUNICATIONS ET PUBLICATIONS REALISEES PAR LES EQUIPES DANS LE CADRE DU PROJET RHAPSODIS .....	113
8	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES CITEES .....	115
9	LISTE DES TABLEAUX .....	123
10	LISTE DES FIGURES.....	125
11	TABLE DES MATIERES .....	129
12	Annexes .....	133
	Annexe 1 : Caractéristiques des radionucléides mesurés dans cette étude.....	133
	Annexe 2 : Compte rendu de la campagne de carottage 2008 .....	135
	Annexe 3 : Compte rendu de la campagne de carottage 2010.....	151

## 12 Annexes

### Annexe 1 : Caractéristiques des radionucléides mesurés dans cette étude

Tableau A1. Caractéristiques des radionucléides artificiels mesurés dans cette étude.

Symbole	Nom	Période
<sup>137</sup> Cs	Césium	30,2 ans
<sup>238</sup> Pu	Plutonium	87,7 ans
<sup>239</sup> Pu	Plutonium	24110 ans
<sup>240</sup> Pu	Plutonium	6563 ans
<sup>241</sup> Am	Américium	432,7 ans
<sup>244</sup> Cm	Curium	18,1 ans

Tableau A2. Caractéristiques des radionucléides naturels mesurés dans cette étude.

Symbole	Nom	Période
<sup>40</sup> K	Potassium	1,3 10 <sup>9</sup> ans
	<i>Famille du <sup>232</sup>Th</i>	
<sup>228</sup> Ac	Actinium	6,2 heures
<sup>212</sup> Pb	Plomb	10,6 heures
<sup>212</sup> Bi	Bismuth	60,6 min
<sup>208</sup> Tl	Thallium	3,1 min
	<i>Famille du <sup>235</sup>U</i>	
<sup>235</sup> U	Uranium	7,0 10 <sup>8</sup> ans
<sup>227</sup> Th	Thorium	18,7jours
	<i>Famille du <sup>238</sup>U</i>	
<sup>234</sup> Th	Thorium	24,1 jours
<sup>226</sup> Ra	Radium	1600 ans
<sup>214</sup> Pb	Plomb	26,8 min
<sup>212</sup> Bi	Bismuth	19,9 min
<sup>210</sup> Pb	Plomb	22,2 ans



***Annexe 2 : Compte rendu de la campagne de carottage 2008***





# PROJET RHAPSODIS

## Seine Aval 4

### RAPPORT DE CAMPAGNE

**Référence :** RHAPS 01

**Date :** 7, 8 et 9 avril 2008

**Lieu :** Darse des Docks

**Objectif :** Prélever des carottes longues dans la Darse des Docks

#### Participants :

##### *RHAPSODIS*

T. BERTHE, maître de conférences, microbiologie	M2C-Univ. Rouen
D. BOUST, ingénieur, géochimiste	IRSN-LRC
J. BRETAUDEAU-SANJUAN, technicienne, microbiologie	M2C-Univ. Rouen
C. BRUNAUD, ingénieur CNRS	M2C-Univ. Caen
O. CONNAN, ingénieur, chimiste	IRSN-LRC
J. DELOFFRE, maître de Conférences, Sédimentologie	M2C-Univ. Rouen
S. HAQUIN, technicien	M2C-Univ. Caen
F. LELONG, technicien	M2C-Univ. Caen
P. LESUEUR, professeur, sédimentologie	M2C-Univ. Caen
F. PETIT, professeur, microbiologie	M2C-Univ. Rouen
L. QUILLET, maître de conférences, microbiologie	M2C-Univ. Rouen
M. ROZET, technicienne	IRSN-LRC
M. SIMON, technicien	M2C-Univ. Rouen
C. THOUROUDE, technicienne	M2C-Univ. Caen
A. BENAICHA, stagiaire Master 1, microbiologie	M2C-Univ. Rouen
Y. FERRET, étudiant,	M2C-Univ. Rouen
G. HANIN, étudiant, sédimentologie	M2C-Univ. Rouen
G. HERMIER, étudiant,	M2C-Univ. Rouen
K. OBERLE, stagiaire Master 1, microbiologie	M2C-Univ. Rouen
J. RAUX, étudiant,	M2C-Univ. Rouen
I. SAHKO, étudiant,	M2C-Univ. Rouen

##### *ISOMET*

D. AUGER, ingénieur, chimiste	IFREMER, Nantes
-------------------------------	-----------------

##### *TOXSEINE*

F. LEBOULENGER, professeur, écotoxicologie	LERMA-Univ. Le Havre
--	----------------------

#### Diffusion :

Participants	S. SAMSON	PAR
R. LAFITE	A. DELOUIS	PAR
A. MOTTELAY	J. CACHOT	TOXSEINE
J. Y. DERANSI	J.F. CHIFFOLEAU	ISOMET
C. PARIS	L. GUEZENEC	GIPSA
M. PHALEMPIN	C. LEVEQUE	GIPSA
D. TOURNOUX	C. DEGREMONT	GIPSA

#### Rédacteurs :

T. BERTHE, D. BOUST, C. BRUNAUD, J. DELOFFRE,

14/06/2008

#### Vérificateurs :

D. BOUST, P. LESUEUR,

16/06/2008

## **1. Contexte général**

La réalisation de carottages longs et non perturbés dans le bassin des Docks est une étape clé du projet RHAPSODIS. La stratégie générale a consisté à prélever sur deux sites du bassin, soigneusement sélectionnés grâce aux documents d'archives fournis par le Port Autonome de Rouen, plusieurs carottes avec des carottiers adaptés aux vases molles et consolidées, de façon à augmenter les chances d'obtenir un enregistrement sédimentaire de la qualité requise pour atteindre les objectifs du projet.

Le défi à relever était d'abord d'ordre technologique : il a fallu construire une plate-forme capable de recevoir les deux carottiers et adaptable en débord sur une barge de lamanage. Au plan logistique, il a fallu assurer le positionnement et la stabilité de l'embarcation sur le site pendant la durée d'un carottage, en tenant compte des courants de flot, et opérer avec des hauteurs d'eau optimales pour les deux types de carottiers.

Une tente en vinyle a été construite pour garantir la non-contamination des échantillons au cours des différentes manipulations. Les contraintes de hauteur d'eau et de sous-échantillonnage ont conduit à réaliser l'opération sur 3 jours. 23 opérateurs sur le terrain, et 6 opérateurs en laboratoire pour le conditionnement des sous-échantillons les plus exigeants en termes d'archivage se sont relayés pour produire une collection d'échantillons de qualité optimale au regard des analyses auxquelles ils sont destinés : analyses sédimentologiques, analyses de contaminants métalliques, organiques, de radionucléides, analyses microbiologiques.

Outre la présentation des opérations réalisées et le détails des échantillons produits, ce rapport a pour but de conserver la trace des problèmes rencontrés et des solutions mises en oeuvre pour les résoudre.

## **2. Supports logistiques**

La campagne RHAPSODIS a nécessité le recours à plusieurs supports logistiques : le GIP Seine Aval pour la mise à disposition d'un zodiac ; le Port Autonome de Rouen pour la mise à disposition d'une barge "Lamatrans" du Service de Lamanage ; le Service de l'Outillage du Port Autonome de Rouen pour la mise à disposition du hangar 141 ; la Capitainerie du Port de Rouen-Vallée de Seine pour les autorisations d'accès à la zone portuaire ; le Département Géologie Océanographie de l'Université de Bordeaux I pour le prêt du carottier d'interface dit Amaury ; les techniciens de l'équipe M2C de Caen pour l'aménagement d'une plate-forme de carottage sur la barge Lamatrans.

Nous leur exprimons ici nos plus vifs remerciements.

## **3. Prélèvements des carottes**

### **3.1. Introduction**

Au cours de la mission RHAPSODIS (du 7 au 9 avril 2008), dix carottes ont été échantillonnées dans la darse du bassin des docks : 9 carottes ont été prélevées pour les programmes RHAPSODIS et ISOMET, 1 carotte a été spécifiquement prélevée pour le programme TOXSEINE. L'échantillonnage de ces carottes a été effectué depuis la barge du service de lamanage du Port de Rouen. Afin de minimiser les mouvements de la barge, et ainsi rendre possible le carottage, la barge a été amarrée au niveau des coffres présents dans la darse (Fig. 1). La mise en place d'une plate-forme en débord de la barge a été réalisée par les techniciens de l'équipe M2C de Caen (le 1/04/08) pour permettre le carottage. Le transport des échantillons depuis la barge opérant dans la darse des docks vers le hangar 141 (lieu d'ouverture et d'échantillonnage des carottes) a été assuré par le zodiac Seine-Aval (Fig. 1)



Figure 1. Dispositif de prélèvement au cours de la campagne RHAPSODIS dans la darse des docks.

Suite à la mission de pré-campagne RHAPSODIS, deux sites de prélèvement ont été choisis. Sur chacun de ces sites, quatre carottes (deux carottes "vase molle" et deux carottes "vase fluide") étaient prévues. Au final, dix carottes ont été prélevées, cinq sur chacun des sites. Cette stratégie d'échantillonnage avait pour but d'obtenir des enregistrements comparables sur chacun des deux sites ; ces deux sites sont donc relativement proches (Fig. 2). Ces deux sites ont été choisis sur la base des données du PAR, et correspondent, a priori, aux zones les moins perturbées par l'activité humaine dans le bassin des Docks.



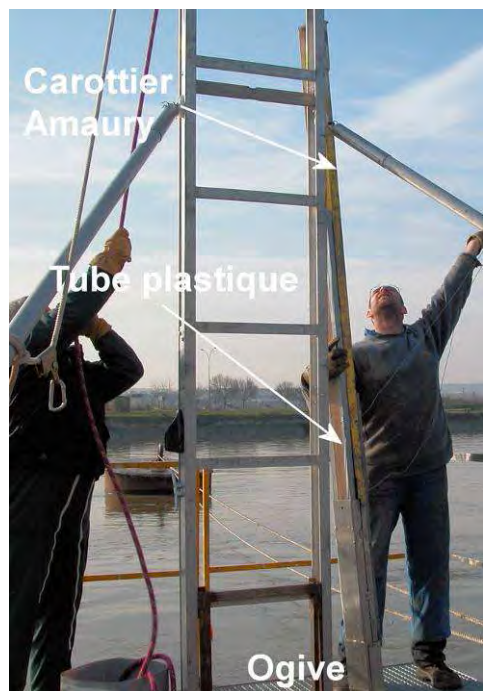
Figure 2. Localisation des deux sites de prélèvement de la mission RHAPSODIS : site 1 en bleu et site 2 en rouge

### 3.2. Technologie des carottages

La présence de sédiment de type "vase molle" en surface de la darse (0 à 1,5 m de profondeur) a été vérifiée au cours de la mission de pré-campagne RHAPSODIS. Cette vase molle est relayée par une vase consolidée en profondeur. Pour cette raison, deux techniques

de carottage ont dues être mises en place : l'une pour prélever la vase molle de surface et l'autre pour prélever la vase consolidée.

### 3.2.1. Le carottier vase molle dit "Amaury".



Le carottier utilisé pour le prélèvement de la vase molle (carottier "Amaury"), du prénom de son compteur, a été prêté par le Département de Géologie et d'Océanographie (DGO) de l'Université de Bordeaux I (Fig. 3). Des tubes de carottage rectangulaires en plastique (10x7 cm) d'une longueur de 2,5 m ont été utilisés afin de prélever la vase molle et une partie de la vase consolidée (Fig. 4). Ce carottier, dit gravitaire, peut être utilisé quelle que soit la profondeur d'eau sur site. Toutefois, afin de prélever l'épaisseur de vase maximale, le carottier a été utilisé lorsque la hauteur d'eau sur le site était importante (i.e. le carottier s'enfonce alors plus profondément dans le sédiment), c'est-à-dire autour de la haute-mer. La partie sommitale des sédiments dans le tube de carottage est alors composée par de la vase molle, relayée en profondeur par de la vase consolidée.

Figure 3. Dispositif de mise à l'eau du carottier Amaury

Six carottes de vase molle (notés par la suite VM) ont été prélevées dans la darse des Docks (5 concernant le projet RHAPSODIS et ISOMET et 1 spécifique pour le projet TOXSEINE). Le premier type de tube est un tube ordinaire de 10x7 cm. Il a servi à prélever les sédiments de vase molle qui seront analysés par l'équipe de Sédimentologie du programme RHAPSODIS (granulométrie, faciès sédimentaire, imagerie par rayons X...). Ces carottes prélevées ont été acheminées puis stockées au hangar 141. Ces tubes seront ouverts et échantillonnés à l'Université de Caen. Le second type de tube rectangulaire possède une face amovible (Fig. 4) : un côté du tube est fixé par du scotch au moment du prélèvement. Par la suite, ce système de fixation est enlevé, permettant de retirer un côté du tube : les sédiments à l'intérieur de la carotte, accessibles, ont alors été échantillonnés suivant la procédure présentée ci-dessous. L'organisation et l'ordre des prélèvements devaient prendre en compte le fait qu'un seul tube de ce type était disponible, donc ce type de prélèvement était prioritaire.

Le tube plastique est positionné dans la chemise du carottier Amaury (Fig. 3), la partie inférieure du tube possède une ogive en position ouverte. Le carottier lesté est lâché depuis la barge et s'enfonce, par le fait de son propre poids dans l'eau puis dans le sédiment. L'ogive située à la base du carottier (i.e. la base du tube) est alors refermée depuis la barge, la carotte peut alors être remontée à la surface (Fig. 3).

Dans la partie inférieure de la carotte (base du tube), l'ogive est retirée et le sédiment présent dans cette ogive a été échantillonné. Afin de refermer la partie inférieure du tube, un bouchon rectangulaire est mis en place, puis scotché. Pour ce qui concerne la partie sommitale du tube, il est nécessaire de positionner l'interface entre l'eau (qui doit être retirée du tube avant le transport) et le sédiment fluide. Afin de repérer la position de cette interface (qui varie d'une carotte à l'autre en fonction de la profondeur d'enfoncement dans le sédiment), des trous ont été faits à la perceuse tous les 2 à 3 cm dans le tube (du haut vers

le bas). Ces trous permettent la vidange de l'eau contenue au-dessus du sédiment. Le perçage de plus en plus bas atteint alors la limite eau/sédiment : une eau très chargée en MES est expulsée hors du tube. On considère alors que la limite eau/sédiment est atteinte. Ce trou (correspondant à l'interface) est alors bouché à l'aide d'un scotch étanche (Fig. 4). Un bouchon en mousse est alors introduit par le haut du tube jusqu'à l'interface. La carotte ainsi obturée en haut et en bas, elle peut alors être transportée en zodiac vers le hangar.

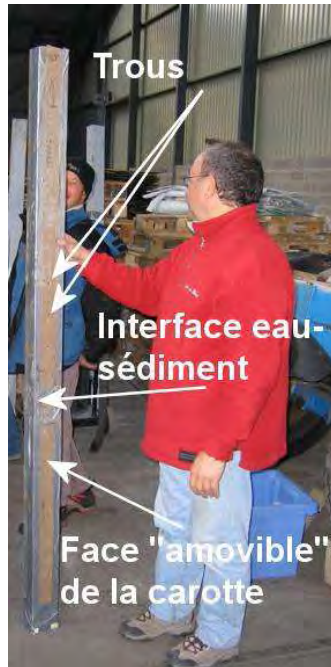
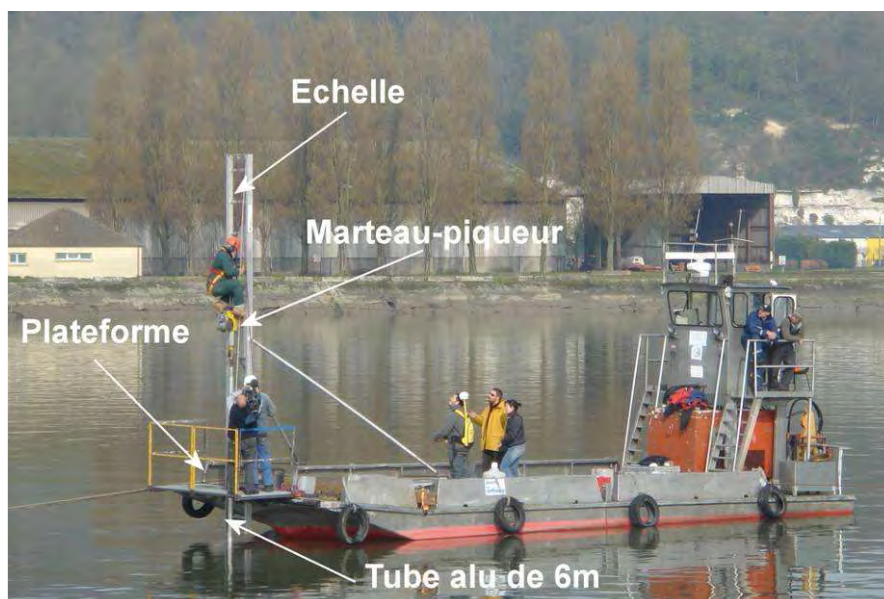


Figure 4. Exemple de carotte de type "Amaury" dans sa gaine PVC.

### 3.2.2. Le carottier à percussion pour la "vase consolidée"

Le carottier utilisé pour le prélèvement de la vase consolidée appartient à l'équipe M2C de Caen (Fig. 5). Les carottages sont réalisés dans des tubes en aluminium d'une longueur de 6m et de 8cm de diamètre. Ce carottier nécessite d'être utilisé lorsque la hauteur d'eau sur le site est minimale. En effet, plus la tranche d'eau est faible et plus l'épaisseur de sédiment est importante dans le tube. Les prélèvements de vase consolidée ont donc été effectués autour de la basse mer.



**Figure 5. Photo au cours d'un carottage avec le vibrocarottier (carotte de type VC).**

Quatre carottes de vase consolidée (notés par la suite VC) ont été prélevées dans la darse des Docks. La partie sommitale du sédiment correspond alors à la vase molle jusque ~ 1 m, tandis que la partie basale correspond à la vase consolidée. Une corrélation entre les carottes de vase molle et de vase consolidée pourra donc être effectuée afin de reconstruire une colonne sédimentaire complète (de 0 à ~4 m de profondeur).

Le tube en aluminium de 6 m est positionné le long de l'échelle, son enfoncement progressif est assuré par un système de percussion de type marteau-piqueur. Afin de maintenir le sédiment à la base de la carotte, une "peau d'orange" a été préalablement positionnée à la base du tube en aluminium. Une fois enfoncé, le tube est remonté à l'aide d'un système de poulie.

Le tube est alors décroché de l'échelle, la carotte est alors soulevée et la partie basale peut être fermée à l'aide d'un bouchon plastique. Concernant la partie sommitale, des trous sont percés tous les 2 à 3 cm afin de vider la carotte de l'eau surnageante et de déterminer l'interface eau-sédiment. Lorsque cette interface est repérée, une mousse en polyuréthane expansive est introduite par les trous percés ; cette procédure est destructive pour la partie supérieure (étudiée via les carottes VM), mais permet une bonne stabilisation du sédiment en profondeur). Après séchage, la partie sommitale de la carotte est parfaitement stabilisée et peut être basculée en position horizontale. Dans cette position, le bouchon de la partie basale est retiré afin d'extraire la peau d'orange. Une fois la peau d'orange extraite, la carotte est rebouchée. La carotte est découpée (à l'aide d'une scie égoïne) en tronçons de 1,5 m à partir de la base jusque l'interface, tronçons qui sont bouchés à chaque extrémité (Fig. 6). Bien que les zones tronçonnées doivent être traitées avec attention, notamment d'un point de vue contamination, le sédiment est très consolidé, et aucune perte de matériel significative n'a été observée. De plus, le choix de couper les carottes en tronçons de 1,5 m était justifié par le fait que le banc d'ouverture dans le hangar 141 est limité à cette longueur de découpe.



**Figure 6. Découpage du tube aluminium de 6 m (carotte type VC).**

### 3.2.3. Préconditionnement des tubes

Les cylindres en aluminium (carotte vase consolidée) ont été préalablement nettoyés avec un désinfectant (Desguard 20) en respectant les recommandations du fournisseur. Les tubes ont été rincés avec de l'eau distillée stérile. Cette étape a été réalisée également pour le piston et les peaux d'orange (ogives). Le carottier Amaury a également été nettoyé avec le même désinfectant au niveau du cylindre et au niveau de l'ogive.

### 3.2.4. Transport des carottes

Le transport des carottes de la darse des Docks vers le hangar 141 a été effectué par le zodiac Seine-Aval (Fig. 1). Afin de minimiser le nombre de déplacements du zodiac, les carottes destinées à l'analyse sédimentaire ont été stockées sur la barge (carottes ouvertes

à Caen). Les mouvements de zodiac ont été effectués dès qu'une carotte (VM ou VC) destinée à être ouverte et échantillonnée sur place (au hangar) était prélevée. Lors de ce transport, les carottes destinées à l'analyse sédimentaire ont été également placées dans le zodiac pour stockage. La hauteur d'eau au niveau du hangar 141 à marée haute permettait de débarquer directement les échantillons sur le quai. Si le transport était effectué à basse mer, une partie de l'équipe travaillant au hangar 141 récupérait les carottes au niveau du ponton, à l'aide d'un berceau spécifique fabriqué pour cette opération (Fig. 7).



Figure 7. Berceau de manipulation des tronçons pour le transfert entre barge et hangar.

#### 4. Caractéristiques des carottes prélevées

Les conditions de prélèvement sont résumées dans le tableau 1. La référence des carottes est commune à chacune des équipes RHAPSODIS et ISOMET. Les lettres VM et VC signifient respectivement "vase molle" et "vase consolidée"; la première est prélevée au carottier Amaury, la seconde au carottier à percussion. Le chiffre précédant ces lettres fait référence au site (1 ou 2). Le chiffre suivant ces lettres fait référence au numéro d'ordre de la carotte prélevée sur le site ; les carottes numérotées 1 ont été ouvertes dès après prélèvement ; les autres sont destinées à une ouverture ultérieure notamment pour les analyses en radiographie X. Pour les carottes VC, les lettres A à D font référence au numéro du tronçon de la carotte : A, en haut ; C ou D en bas.

Ex : 1VC2 : seconde carotte de vase consolidée du site 1 (carottage à percussion) ;  
2VM3 : troisième carotte de vase molle du site 2 (carottage Amaury)



**Tableau 1. Principales caractéristiques des carottes prélevées au cours de la campagne RHAPSODIS ; les coordonnées sont données en Lambert II étendu.**

Référence	Tronçon*	Date	Hauteur d'eau (m)	Epaisseur utile (cm)	Longitude (E)		Latitude (N)	
					X	Y		
1VC1	1VC1A	07/04/2008	1,2	197	504190	2489703		
	1VC1B			152				
	1VC1C			140				
1VM1	1VM1	07/04/2008	2,5	92	504196	2489692		
1VM2	1VM2	07/04/2008	3,0	115	504198	2489692		
1VM3	1VM3	07/04/2008	3,2	115	504198	2489692		
2VM2	2VM2	08/04/2008	2,5	120	504208	2489749		
2VC1	2VC1A	08/04/2008	1,7	150	504210	2489745		
	2VC1B			150				
	2VC1C			141				
2VC2	2VC2A	08/04/2008	1,2	60	504210	2489745		
	2VC2B			150				
	2VC2C			150				
	2VC2D			150				
2VM1	2VM1	08/04/2008	3,0	105	504208	248749		
1VC2	1VC2A	09/04/2008	~ 2	115	504190	2489703		
	1VC2B			150				
	1VC2C			150				
Toxseine	Toxseine	08/04/2008	3,2	104	504189	2489702		

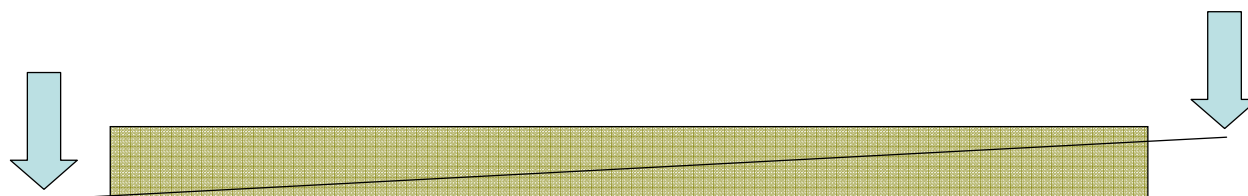
Les coordonnées GPS ont été obtenues à l'aide d'un GPS différentiel (DGPS). La hauteur d'eau a été estimée à partir du sondeur du zodiac Seine Aval. L'épaisseur totale de sédiment présent dans la carotte a été reportée. La limite entre l'interface vase molle - vase consolidée étant difficile à mesurer avant l'analyse sédimentaire, elle n'a pas été reportée dans le tableau 1.

## 5. Sous-échantillonnage

### 5.1. Ouverture des carottes

Les tubes en plastique du carottier ont été simplement ouverts en retirant la partie amovible du tube, scotchée avant le prélèvement. Le tronçon ainsi découvert a été recouvert d'un film plastique et conduit sous la tente vinyle pour sous-échantillonnage.

Les tubes aluminium du carottier à percussion ont été ouverts longitudinalement sur banc de découpe. A l'aide d'un fil de nylon d'1,5 m de long, les deux demi-tronçons ont été séparés en faisant circuler le fil de nylon perpendiculairement à l'axe vertical de la carotte (Fig. 8).



**Figure 8. Parcours du fil à couper le beurre pour l'ouverture de la carotte pour éviter toute contamination entre niveaux.**

Un berceau spécifique a permis de séparer en même temps que la découpe les deux demi-tronçons. L'un d'eux a été recouvert d'un film plastique et conduit sous la tente vinyle pour sous-échantillonnage. L'autre a fait l'objet d'un levé de log avec charte Munsell ; il a également été acheminé sous la tente vinyle.

Les tronçons ainsi présentés ont été photographiés grâce un dispositif installé sur le plafond de la tente vinyle, portant un appareil photo numérique connecté à un PC portable.

Pour les tronçons de vase molle, des cloisons en Plexiglas ont été enfoncées dans le sédiment pour délimiter des tranches de 5 cm et éviter les mélanges lors des prélèvements dans les différents niveaux (Fig. 9).

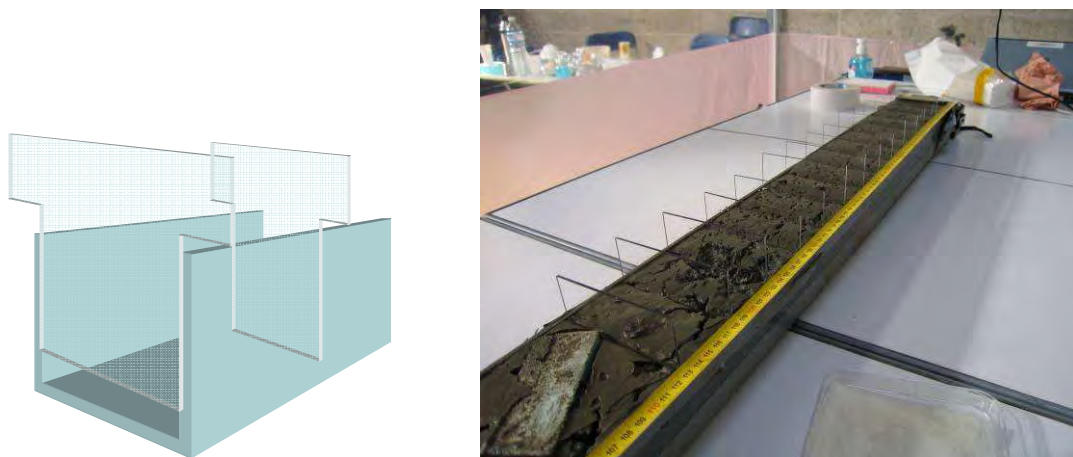


Figure 9. Principe des cloisons de séparation en Plexiglas entre les niveaux

## 5.2. Méthodologie générique de prélèvement dans les carottes

Tous les sous-échantillons ont été réalisés sous une tente de vinyle spécialement construite à cet effet (Fig. 10). Les prélèvements pour la microbiologie, pour le dosage des contaminants organiques ont été successivement réalisés, puis le reste du sédiment a été récupéré pour les analyses géochimiques et sédimentologiques. La figure 11 montre la localisation des prélèvements dans chaque tranche et leur destination dans les différents types de carottes.



Figure 10. Tente vinyle mise en œuvre pour la réalisation des échantillonnages.

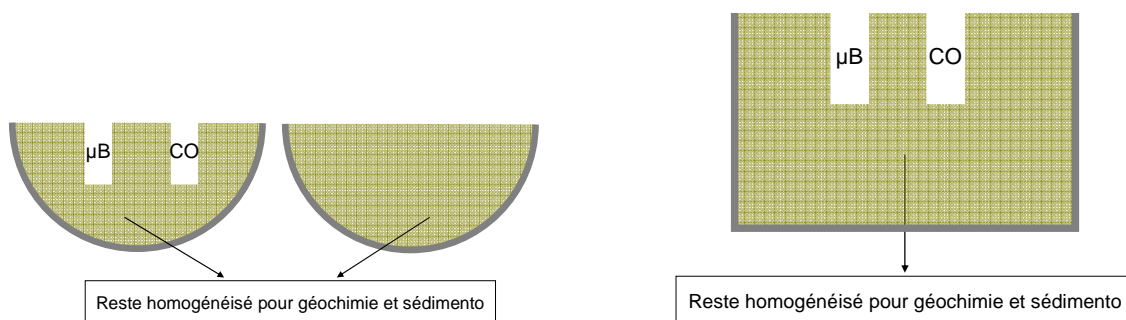


Figure 11. Localisation des prélèvements microbiologiques ( $\mu\text{B}$ ) et contaminants organiques (CO) dans chaque demi-carotte ; le reste est homogénéisé et séché.

### 5.2.1. Prélèvements pour la microbiologie

Chaque échantillon a été prélevé à l'aide d'une seringue stérile qui avait été préalablement découpée à son extrémité à l'aide d'un scalpel stérile (support = boîte de Pétri stérile). Les microbiologistes ont toujours prélevé les premiers au niveau de la carotte en prenant les précautions suivantes :

- élimination de la partie supérieure du sédiment (susceptible d'être contaminée lors de la préparation de la carotte) à l'aide d'une spatule qui avait été préalablement désinfectée avec de l'alcool 70% ;
- avant chaque prélèvement, l'extrémité du piston a également été mise en contact avec une solution d'éthanol à 70% (v/v) ;
- prélèvement à l'aide de la seringue stérile en remontant le piston simultanément à l'enfoncement du tube.

L'échantillonnage a été réalisé en prenant soin de ne pas prélever du sédiment qui ait été en contact avec la partie externe du cylindre. Les parties suspectées d'avoir été en contact avec le tube ont été éliminées à l'aide de la spatule métallique désinfectée à l'alcool.

Sur la longueur de la tranche (5 cm), les échantillons ont été prélevés l'un en dessous de l'autre de telle façon que les deux prélèvements couvrent l'intervalle de 5 cm. Sur la première carotte (1V1C du lundi 7 avril), les prélèvements à la seringue ont quelquefois été réalisés l'un à côté de l'autre mais ceci a été abandonné car cela perturbait l'échantillonnage pour le dosage des contaminants organiques (les quelques échantillons prélevés de cette façon sont indiqués dans le tableau 2).

**Tableau 2. Bilan des échantillons préparés par les microbiologistes.**

Référence carotte	Nb de niveaux	Stockage	Remarques
<b>1VM1</b>	18	Sédiment homogénéisé. Répartition dans 16 tubes Eppendorf avec 0,5 à 0,7 g de sédiment puis excédent dans tube Corning	La fraction 1VM1-001 correspond à 20 ml de vase fluide prélevé directement au Corning au dessus du bouchon. La fraction 1VM1-002 correspond à 20 ml de vase fluide prélevée à la seringue à côté du bouchon (prélèvement des deux côtés du bouchon).
<b>1VC1A</b>	35	Idem	Trois prélèvements à la seringue ont été effectués sur la tranche 1VC1-035.
<b>1VC1B</b>	30	Idem	
<b>1VC1C</b>	28	Idem	Les prélèvements à la seringue ont été effectués l'un en dessous de l'autre dans le sens de la hauteur pour les fractions allant de 1VC1-001 à 1VC1-005 puis 1VC1-013 à 1VC1-028. Les prélèvements à la seringue ont été effectués au milieu de la tranche l'un à côté de l'autre dans le sens de la hauteur pour les fractions allant de 1VC1-006 à 1VC1-012. Les sédiments n'ont pas été homogénéisés avant sous échantillonnage pour les fractions suivantes : 1VC1-001, 002, 003 et 020 à 028.
<b>2VM1</b>	21	Tube Corning (1 prélèvement non homogénéisé)	
<b>2VC1A</b>	30	Tube Corning (2 prélèvements non homogénéisés)	
<b>2VC1B</b>	30	Tube Corning (2 prélèvements non homogénéisés)	
<b>2VC1C</b>	28	Tube Corning (2 prélèvements non homogénéisés)	

### 5.2.2. Prélèvements pour les autres analyses géochimiques et sédimentologiques

Chaque échantillon a été prélevé à l'aide d'une spatule plastique et conditionné en sacs plastique. Ils ont été stockés à -20°C à M2C Rouen.

### 5.2.3. Prélèvements pour les autres analyses géochimiques et sédimentologiques.

Le reste de l'échantillon laissé par les prélèvements précédents a été récupéré dans des sacs plastique, en prenant soin de ne pas prélevés les parties ayant été en contact du tube : ils ont été stockés à 4°C à M2C Caen.

### 5.3. Conditionnement spécifique des échantillons pour la microbiologie en vue de l'archivage.

#### 5.3.1. Première série de carottes : 1VC1 (A, B et C) et 1VM1

Chaque fraction a été mélangée/homogénéisée dans une boîte de Pétri dans des conditions stériles avant sous échantillonnage sous bec Bunsen. Cette étape n'a pas été réalisée pour quelques échantillons de la première carotte (Tab. 2).

Environ 0,5 à 0,7 g de sédiments ont été sous aliquotés dans 2 fois 8 microtubes de 1,5 mL à l'aide d'une spatule stérile (nettoyée à l'alcool 70% entre chaque fraction). L'excédent de sédiment a été stocké dans un tube Corning (sauf pour quelques fractions, car le volume prélevé était insuffisant). L'ensemble a été stocké le soir-même à -80°C.

#### 5.3.2. Deuxième série de carottes : 2VC1 (A, B et C) et 2VM1

Aucune répartition en microtubes n'a été effectuée pour cette carotte en raison d'une sous estimation du temps nécessaire à cette opération. En conséquence, nous n'avons pour chaque fraction qu'un tube Corning contenant les deux mini-carottes. L'ensemble a été stocké le soir-même à -80°C.

Ces opérations ont demandé 6 heures à une équipe de 5 personnes pour une carotte de 30 niveaux.

### 5.4. Bilan des échantillons préparés et archivés

Le tableau 3 donne le bilan des échantillons disponibles en archives.

**Tableau 3. Bilan des échantillons préparés et archivés pour RHAPSODIS.**

Date	Référence carotte	Référence tronçon	Longueur tronçon (cm)	Longueur totale (cm)	Référence échantillon haut du tronçon	Référence échantillon bas du tronçon	Nombre d'échantillons	Nombre d'échantillons
07/04/2008	1VM1	-	-	192	1VM1 - 001	1VM1 - 018	18	18
07/04/2008	1VC1	A	197	491	1VC1A - 001	1VC1A - 035	35	93
		B	152		1VC1B - 001	1VC1B - 030	30	
		C	142		1VC1C - 001	1VC1C - 028	28	
		OGIVE	-	-	1VC1-OGIVE		1	1
08/04/2008	2VM1	-	-	105	2VM1 - 001	2VM1 - 021	21	21
08/04/2008	2VC1	A	150	442	2VC1A - 001	2VC1A - 030	30	88
		B	150		2VC1B - 001	2VC1B - 030	30	
		C	142		2VC1C - 001	2VC1C - 028	28	
		OGIVE	-	-	2VC1-OGIVE		1	1

Nous disposons donc de 112 échantillons sur le site 1 et de 110 échantillons sur le site 2. Une réflexion est en cours pour choisir le site sur lequel sera porté l'essentiel de l'effort analytique.

## **6. Archives**

### **6.1. Echantillons**

A l'issue de cette campagne, nous disposons de plusieurs types d'échantillons :

- des échantillons et sous-échantillons de sédiment brut, conservés à -80°C à M2C Rouen pour les études de microbiologie et de biologie moléculaire ;
- des échantillons de sédiment brut, conservés à -20°C à M2C Rouen pour l'analyse des contaminants organiques ;
- des échantillons de sédiment brut, homogénéisés conservés à 4°C à M2C Caen pour les analyses d'éléments stables et de radionucléides, et mesures de paramètres connexes ;
- des carottes Amaury ouvertes (VM) et des carottes obtenues par percussion (VC) ouvertes en deux demi-carottes.

### **6.2. Images et logs**

A l'issue de cette campagne, nous disposons de plusieurs types d'images et des logs :

- des images de reportage montrant les différents matériels mis en œuvre et opérations réalisées ;
- des images des carottes ouvertes au cours de la campagne et les logs sédimentologiques correspondants ;
- des images des carottes ouvertes après la campagne à M2C Caen et les logs sédimentologiques correspondants.

## **7. Charte d'utilisation des échantillons et des données**

Les laboratoires engagés dans le projet RHAPSODIS ont souhaité que toute utilisation d'échantillons, d'images, de données soit soumise à des conditions qui seront décrites dans une charte d'utilisation qui sera prochainement rédigée.

## **8. Communication**

Cette campagne a donné lieu à un communiqué de presse du GIP Seine Aval diffusé le 7 avril à la presse écrite, parlée et télévisée. Ce communiqué a conduit à :

- un article de presse paru dans *Fil Fax* le 8 avril ;
- un reportage télévisé sur France 3 Régional diffusé le midi (court extrait), le soir à 19h et vers 19h50 (mini reportage) ; le reportage (long) est disponible sur la plateforme interne du GIP Seine Aval qui n'a pas les droits pour le diffuser sur le site internet.

Des images d'un reportage réalisé par C. Dégremont sont également disponibles sur le site du GIP Seine Aval : <http://seine-aval.crihan.fr/silverpeas/Publication/5331>



***Annexe 3 : Compte rendu de la campagne de carottage 2010***





# PROJET RHAPSODIS II

## Seine Aval 4

<b>RAPPORT DE CAMPAGNE</b>		
<b>Référence :</b>		<b>Date :</b> 14 juin 2010
<b>Lieu :</b> Darse des Docks		
<b>Objectif :</b> Prélever deux carottes longues dans la Darse des Docks		
<b>Participants :</b>		
T. BERTHE, maître de conférences, microbiologie		M2C-Univ. Rouen
C. BRUNAUD, ingénieur CNRS		M2C-Univ. Caen
P. DEFENOUILLE, technicienne		IRSN-LRC
J. DELOFFRE, maître de Conférences, sédimentologie		M2C-Univ. Rouen
S. HAQUIN, technicien		M2C-Univ. Caen
F. LELONG, technicien		M2C-Univ. Caen
P. LESUEUR, professeur, sédimentologie		M2C-Univ. Caen
F. PETIT, professeur, microbiologie		M2C-Univ. Rouen
M. ROZET, technicienne		IRSN-LRC
M. SIMON, technicien		M2C-Univ. Rouen
C. THOUROUDE, technicienne		M2C-Univ. Caen
A. BENAICHA-KACI, étudiante, microbiologie		M2C-Univ. Rouen
B. DIEPPOIS, étudiant, climatologie		M2C-Univ. Rouen
S. EL JANYANI, étudiante, hydrogéologie		M2C-Univ. Rouen
Y. FERRET, étudiant, sédimentologie		M2C-Univ. Rouen
K. OBERLE, étudiant, microbiologie		M2C-Univ. Rouen
A. VREL, étudiante, sédimentologie/géochimie		IRSN-LRC/M2C-Univ. Caen
<b>Diffusion :</b>		
Participants		
D. BOUST		IRSN-LRC
N. BACQ		GIPSA
C. DEGREMONT		GIPSA
C. FISSON		GIPSA
L. GUEZENNEC		GIPSA
J. Y. DERANSI		GPMR-Capitainerie
A. GALLICHER-LAVANNE		GPMR
P. GUILLAUME		GPMR-Capitainerie
C. PARIS		GPMR
S. SAMSON		GPMR
<b>Rédacteurs :</b>		
A. BENAICHA-KACI, A. VREL		28/06/2010
<b>Vérificateurs :</b>		
T. BERTHE, D. BOUST, J. DELOFFRE, P. LESUEUR.		

Tous les participants sont vivement remerciés.

## **I. Contexte général**

Le projet RHAPSODIS a pour objectifs : (1) l'identification des processus de transfert et de dépôt du matériel sédimentaire fin dans l'estuaire amont à une échelle pluri-décennale, (2) la reconstitution de l'historique des apports de contaminants (organiques, radioactifs, métalliques et microbiologiques) associés aux dépôts de particules fines (<63 µm). Afin d'atteindre ces objectifs, différents carottages sédimentaires ont été effectués en avril 2008 dans la Darse des Docks (Petit-Couronne). L'étude des carottes prélevées en 2008, a déjà fourni des résultats très intéressants quant à la contamination passée. Cependant, la plus longue des carottes (2VC2, 483 cm) ne nous a pas permis d'atteindre le début de la période envisagée, marquée par le maximum des retombées des essais nucléaires de 1963. Afin d'obtenir un historique plus complet et mieux daté, nous avons réalisé un carottage plus profond lors d'une mission complémentaire le 14 juin 2010. Dans le but d'effectuer un bon calage entre les carottes de 2008 et celles de 2010, et donc d'éviter des analyses supplémentaires, nous avons tenté d'approcher au mieux le point de carottage de 2008.

Outre la présentation des opérations réalisées et le détail des échantillons produits, ce rapport a pour but de conserver la trace des problèmes rencontrés et des solutions mises en oeuvre pour les résoudre.

## **II. Supports logistiques**

La campagne RHAPSODIS a nécessité le recours à plusieurs supports logistiques : un zodiac mis à disposition par l'Université de Rouen ; la barge "Lamatrans II" mis à disposition par la Coopérative Ouvrière du lamanage de Rouen ; les autorisations de navigation sur la Seine données par la Capitainerie du Grand Port Maritime de Rouen ; les autorisations d'accès à la zone portuaire données la Société Coopérative Interface Céréales ; l'adaptation d'une plate-forme de carottage sur la barge Lamatrans II et la mise en oeuvre du carottier faites par les techniciens de l'équipe M2C de Caen, F. Lelong et S. Haquin ; la mise à disposition des ateliers et des salles de laboratoires par le laboratoire M2C-Rouen ; la construction d'un deuxième support à carotte effectuée par M. Simon ; la mise à disposition de matériel photographique utilisé pour l'archivage des carottes par D. Mouazé et C. Brunaud (M2C Caen).

Nous leur exprimons ici nos plus vifs remerciements.

Il est important de noter l'indisponibilité pour cette mission de la barge déjà utilisée pour la mission d'avril 2008 (barge Lamatrans I). L'utilisation de la barge Lamatrans II a imposé de nouvelles contraintes : (1) nécessité de construire une nouvelle armature de plate-forme en débord latéral du pont, (2) tirant d'eau et prise au vent plus importants (conditions d'accès réduites et dérive plus forte au mouillage).

## **III. Prélèvements des carottes**

### **1. Introduction**

Au cours de la mission RHAPSODIS II (le 14 juin 2010), deux carottes ont été extraites dans la darse du bassin des docks. Afin de minimiser les mouvements de la barge, et ainsi rendre possible le carottage, la barge a été amarrée à l'aide du zodiac au niveau des coffres présents dans la darse (Fig. 1).



Figure 1. Dispositif de prélèvement au cours de la campagne RHAPSODIS dans la darse des docks

Le premier carottage a été effectué vers 17h ; la stabilisation de la barge a été rendue impossible par le vent soufflant à ce moment là. Le tube de carottage a alors été plié à l'interface eau/sédiment une fois le tube enfoncé, et la carotte a du être remontée plus vite que prévu. Le deuxième carottage s'est effectué sans aucun souci. Les 2 carottes ont été coupées en tronçons de 150 cm sur la barge LAMATRANS II. L'une d'entre elles (3VC1) a été ramenée à quai par l'intermédiaire du zodiac, la seconde (3VC2) a été découpée sur la barge lors du trajet de retour entre la Darse et le bassin Saint Gervais et donc débarquée à quai directement au bassin Saint Gervais.

Le site de carottage avait été choisi en 2008 sur la base des données du GPMR, correspondant, a priori, aux zones les moins perturbées par l'activité humaine directe (navigation, dragage) dans le bassin des Docks. Nous avons tenté de nous approcher le plus possible des coordonnées des carottes 2VC1 et 2VC2 prélevées en 2008 (Fig. 2) ; le positionnement de la barge étant délicat, nous obtenons tout de même un écart d'une cinquantaine de mètres.



Figure 2. Localisation du site de prélèvement de la mission RHAPSODIS II

## 2. Technique utilisée pour les carottages

En 2008, deux techniques de carottage avaient été mises en oeuvre : l'une pour prélever la vase molle de surface (carottier vase molle dit "Amaury") et l'autre pour prélever la vase consolidée (carottier à percussion). Cette année, notre but étant de compléter notre historique, et donc de nous intéresser à la partie la plus profonde des sédiments, seul le carottier à percussion a été utilisé.

Ce carottier appartient à l'équipe M2C de Caen (Fig. 3). Les carottages ont été réalisés dans des tubes en aluminium d'une longueur de 9m (contre 6m en 2008) et de 8cm de diamètre.

Les tubes de prélèvement en aluminium ont été préalablement nettoyés avec un désinfectant (Desguard 20) en respectant les recommandations du fournisseur. Les tubes ont été abondamment rincés avec de l'eau du robinet et ensuite, avec de l'eau distillée stérile. Cette étape a été réalisée également pour le piston, les peaux d'orange, les ogives, et les bouchons utilisés pour la carotte servant aux prélèvements microbiologiques.

La hauteur d'eau dans le bassin au moment du prélèvement était un paramètre très important. En effet, les tubes de prélèvement qui mesuraient 9 mètres ne devaient pas dépasser l'échelle installée en débord sur la barge qui, elle, mesure 6 mètres. Le pont du bateau se trouvant à 1 mètre au-dessus de l'eau, il fallait donc 2 mètres d'eau au minimum au dessus de la vasière pour loger ce tube de 9 mètres, sans toutefois avoir des hauteurs d'eau trop grandes pour ne pas limiter la longueur utile de la carotte. Pour cela, un coefficient de marée intermédiaire avait été choisi (coeff. 91), compromis permettant à la fois d'être au-dessus des 2 mètres d'eau et d'avoir suffisamment de temps pour effectuer le carottage, sans atteindre des hauteurs d'eau toutefois trop importantes.



Figure 3. Carottier à percussion installé au bord de la barge LAMATRANS II.

Deux problèmes ont perturbé le déroulement de ce carottage :

1. D'après la courbe de marée de référence la plus proche (Fig. 4) l'heure optimale de carottage était 16h, avec une plage d'intervention entre 16h et 19h30 (calculs de hauteurs d'eau prévisionnels à partir de l'annuaire des marées et des courbes marégraphiques à Petit-Couronne). Malgré les précautions prises pour la réservation de la barge, des raisons d'indisponibilité du personnel de lamanage ont contraint la manipulation dans un intervalle de temps très court, retardant l'heure d'arrivée sur zone (16h30 au lieu de 16h) et précipitant le départ de la barge de la darse après seulement deux carottages (fin à 18h).

2. La hauteur d'eau dans la darse au moment du carottage n'était pas celle que nous avons estimée. La pleine mer est survenue 40 minutes plus tôt que prévu d'après les horaires aux lieux de référence de Petit Couronne et de Rouen. Cela suggère que l'onde de marée dans le bassin des Docks est différente de celle se propageant dans le chenal de la Seine au même lieu.

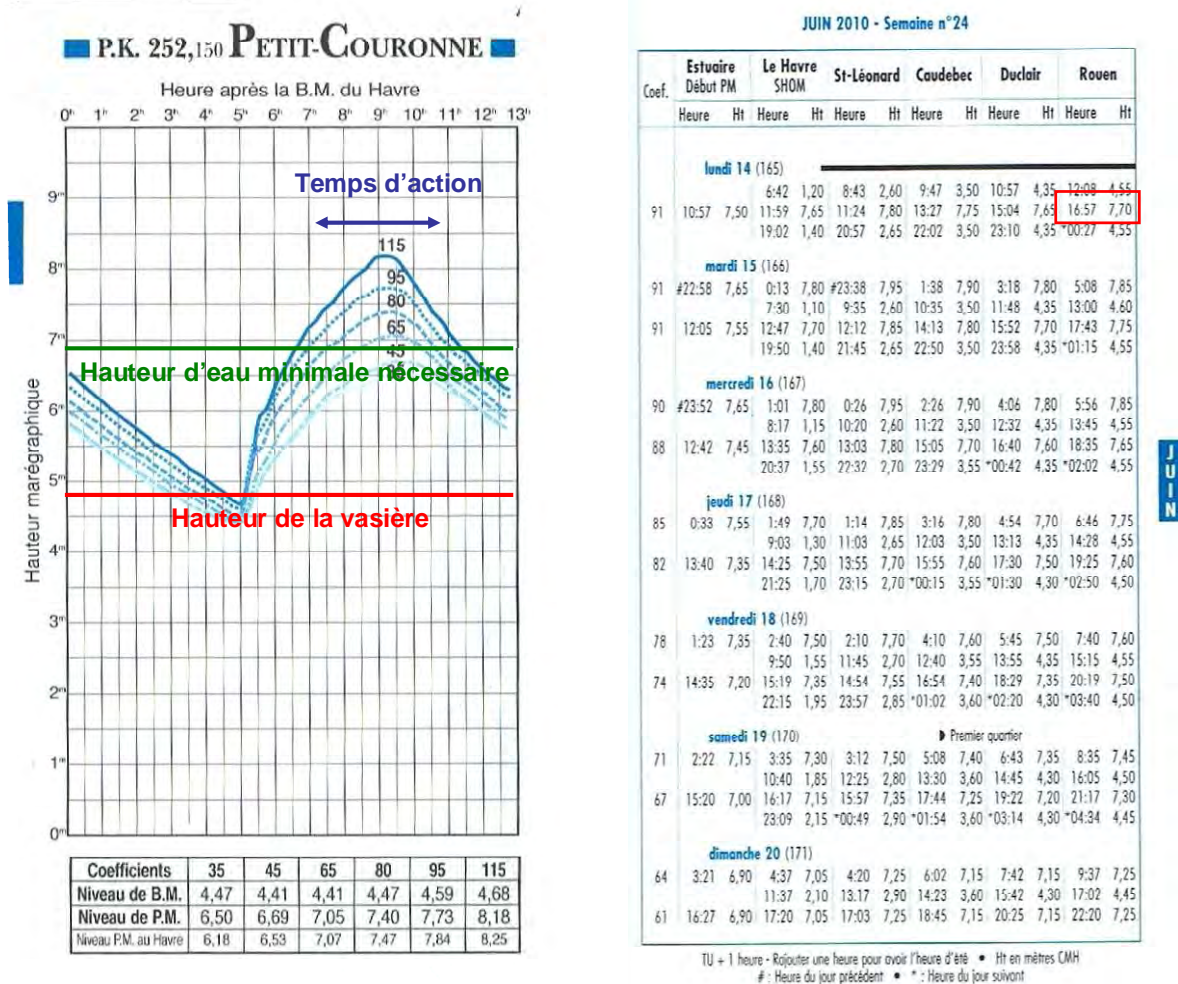


Figure 4 : Courbe marégraphique de Petit-Couronne et horaire des marées les 14 et 15 juin 2010.

(extrait de l'annuaire des marées 2010 du Port de Rouen, heures d'hiver).

Le tube en aluminium de 9 m est positionné le long de l'échelle ; sa pénétration progressive est assurée par un système de percussion (marteau-piqueur). Afin de maintenir le sédiment à la base de la carotte, une peau d'orange a été préalablement positionnée à la base du tube en aluminium. Une fois enfoncé, le tube est remonté à l'aide d'un système de palan à chaîne.

Le tube est alors décroché de l'échelle, la carotte est soulevée et la partie basale peut être fermée à l'aide d'un bouchon plastique. Concernant la partie sommitale, des trous sont percés tous les 2 à 3 cm afin de vider la carotte de l'eau surnageante et de déterminer l'interface eau-sédiment. Lorsque cette interface est repérée ; une mousse en polyuréthane expansive est introduite par les trous percés ; cette procédure qui bloque le sédiment est perturbatrice pour sa partie supérieure, mais celle-ci avait déjà été étudiée avec les carottes VM de 2008. Après durcissement de la mousse, la partie sommitale de la carotte est

parfaitement stabilisée ; la carotte peut être basculée en position horizontale. Dans cette position, le bouchon de la partie basale est retiré afin d'extraire la peau d'orange, puis la carotte est rebouchée. La carotte est ensuite découpée (à l'aide d'une scie à métaux) en tronçons de 1,5 m à partir de l'interface jusqu'à la base (la procédure a été inversée par rapport à 2008) (Fig. 5). Les tronçons sont ensuite bouchés à chaque extrémité. Le choix de découper les carottes en cette longueur était justifié à la fois par le fait que le banc d'ouverture est limité à cette longueur de découpe et qu'elle est maximale pour une étude radiographique. A noter que du fait de la consolidation du sédiment, aucune perte de sédiment n'a eu lieu. Pour la carotte utilisée par la suite pour les prélèvements microbiologiques, l'opérateur a pris soin de mettre des gants et d'utiliser les bouchons préalablement désinfectés.



Figure 5. Découpe du tube aluminium de la carotte 3VC1.

Deux carottes de vase consolidée (notées VC) ont été prélevées dans la darse des Docks. Une corrélation entre les carottes de 2008 et celle de 2010 sera par la suite effectuée afin de reconstruire une colonne sédimentaire complète (de 0 à ~6 m de profondeur).

Le transport des carottes de la darse des Docks vers le laboratoire M2C à Mont Saint Aignan a été effectué :

- par le zodiac jusqu'au quai de la Darse (utilisation d'un berceau pour remonter les tronçons), puis en voiture pour la carotte 3VC1.
- par la barge jusqu'au bassin Saint Gervais, puis en voiture pour la carotte 3VC2.

#### **IV. Caractéristiques des carottes prélevées**

Les conditions de prélèvement sont résumées dans le [tableau 1](#). Les lettres VC signifient "vase consolidée". Le chiffre précédant ces lettres fait référence au site (3). Le chiffre suivant ces lettres fait référence au numéro d'ordre de la carotte prélevée sur le site. Pour les carottes VC, les lettres A à E font référence au nom du tronçon (ou section) de la carotte : A, en haut ; E en bas.

**Tableau 1. Caractéristiques des carottes prélevées (coordonnées en Lambert II étendu).**

Nom de la carotte		3VC1	3VC2
Date de prélèvement		14-juin-10	14-juin-10
Localisation	x	504204,07 E	504198,82 E
	y	489698,92 N	489693,36 N
Heures	Début du prélèvement	16h43	17h58
	Mise en place de la rallonge	16h47	18h00
	Tube enfoncé	16h58	18h04
	Fin	17h27	18h25
Hauteur d'eau au moment quand le tube est enfoncé en mètres (mesure zodiac)		2,9	2,2
Remarques		La barge a eu du mal à se stabiliser entre les 2 pontons a cause d'un petit vent. De ce fait le tube de la carotte a été plié à l'interface eau/sédiment une fois enfoncé. Le carottage a donc été interrompu. La carotte doit comporter approximativement 5 mètres de sédiments.	Le deuxième carottage s'est parfaitement déroulé. La carotte récupérée fait environ 585 cm soit un mètre de plus qu'en 2008.

Les coordonnées GPS ont été obtenues à l'aide d'un GPS différentiel (DGPS). La hauteur d'eau a été estimée à partir du sondeur du zodiac. L'épaisseur totale de sédiment dans la carotte a été reportée.

Il était convenu d'échantillonner la première carotte prélevée afin de gagner du temps. Cette carotte n'ayant pas atteint la longueur souhaitée, nous avons choisi d'attendre la seconde pour nos échantillonnages, celle-ci ayant atteint une longueur proche des 6 mètres. Nous aurions souhaité réaliser un troisième carottage mais cela n'était plus possible en particulier à cause d'une hauteur d'eau insuffisante (dixit le pilote de la barge). De plus, la barge du lamanage n'étant arrivée qu'à 16h30 (au lieu de 15h30 prévu initialement), notre temps de carottage a été réduit.

#### **V. Plan d'échantillonnage**

N'ayant obtenu qu'une carotte de la longueur souhaitée sur les 2 prélevées, nous avons dû revoir notre scénario d'échantillonnage afin de faire l'ensemble des analyses sur une seule et même carotte. Au final, après découpage longitudinal, un demi-tronçon a fait l'objet d'une description, a été photographié, puis conservé pour les SCOPIX. L'autre demi-tronçon de chaque section a été échantillonné de la façon suivante :

- Tronçons A et B (supérieurs) : prélèvement d'1 tranche de 5 cm d'épaisseur sur 3 pour les analyses microbiologiques (le reste de la carotte est conditionné sous gaine plastique).
- Tronçon C, D et E (inférieurs) : prélèvement de tous les niveaux pour les analyses microbiologiques, prélèvement d'1 tranche sur 2 pour les analyses de contaminants organiques, récupération de l'ensemble du sédiment restant sur chaque tranche de 5 cm pour les analyses sédimentologiques et géochimiques.

L'échantillonnage des contaminants organiques a donc été réduit dans le but de récupérer plus de sédiment pour les analyses géochimiques et sédimentologiques sur ce demi tronçon, faute de pouvoir les récupérer sur le demi tronçon réservé aux analyses SCOPIX.



## VI. Sous-échantillonnage

### 1. Ouverture des carottes

Les tubes d'aluminium ont été ouverts longitudinalement sur le banc de découpe. A l'aide d'un fil de nylon d'1,5 m de long, les deux demi-tronçons ont été séparés en faisant circuler le fil de nylon perpendiculairement à l'axe vertical de la carotte (Fig. 6).

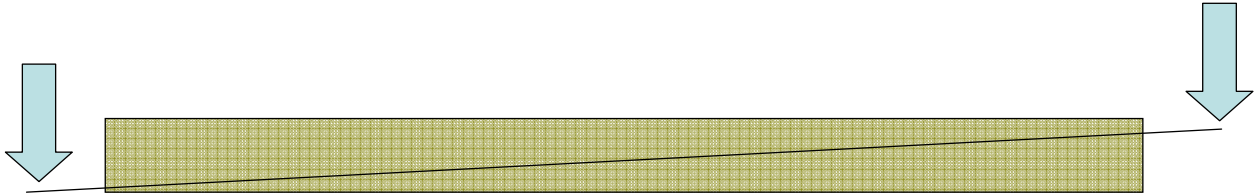


Figure 6. Parcours du fil à découper pour l'ouverture de la carotte pour éviter toute contamination entre niveaux.

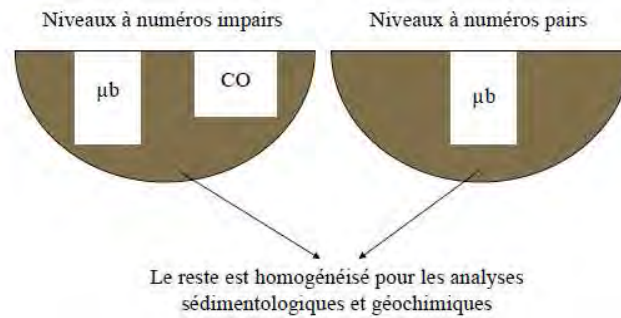
Un berceau spécifique a permis de séparer aussitôt après la découpe les deux demi-tronçons (Fig. 7). Ceux-ci ont été gradués, puis l'un d'eux a été recouvert d'un film plastique et conduit vers le laboratoire de microbiologie pour sous-échantillonnage. L'autre a fait l'objet de photos et d'un levé de log avec charte Munsell. Il a ensuite été conditionné sous gaine plastique dans l'attente de la radiographie SCOPIX qui devrait être réalisée en juillet.



Figure 7. Ouverture du tronçon A de la carotte 3VC2

### 2. Méthodologie de prélèvement dans les carottes

Le sous-échantillonnage a été réalisé dans la salle de l'IRESE B (EP237, laboratoire de conditionnement des échantillons). Sur les tronçons A et B de la carotte 3VC2, un des demi-tronçons a été photographié et décrit ; l'autre a subi un échantillonnage pour les analyses microbiologiques uniquement, à raison d'un prélèvement tous les 3 niveaux (le restant de ce demi-tronçon a été conditionné sous gaine plastique après les prélèvements). Sur les tronçons C, D et E, les prélèvements pour la microbiologie, et le dosage des contaminants organiques ont été successivement réalisés à raison d'un prélèvement sur chaque niveau pour la microbiologie et d'un prélèvement tous les 2 niveaux pour les contaminants organiques (les derniers niveaux des tronçons C et D, soit les niveaux 31, n'ont pas été échantillonnés pour les contaminants organiques, faute de matériel). Le reste du sédiment a été récupéré pour les analyses géochimiques et sédimentologiques. La figure 8 montre la localisation des prélèvements en section dans chaque tranche et leur destination.

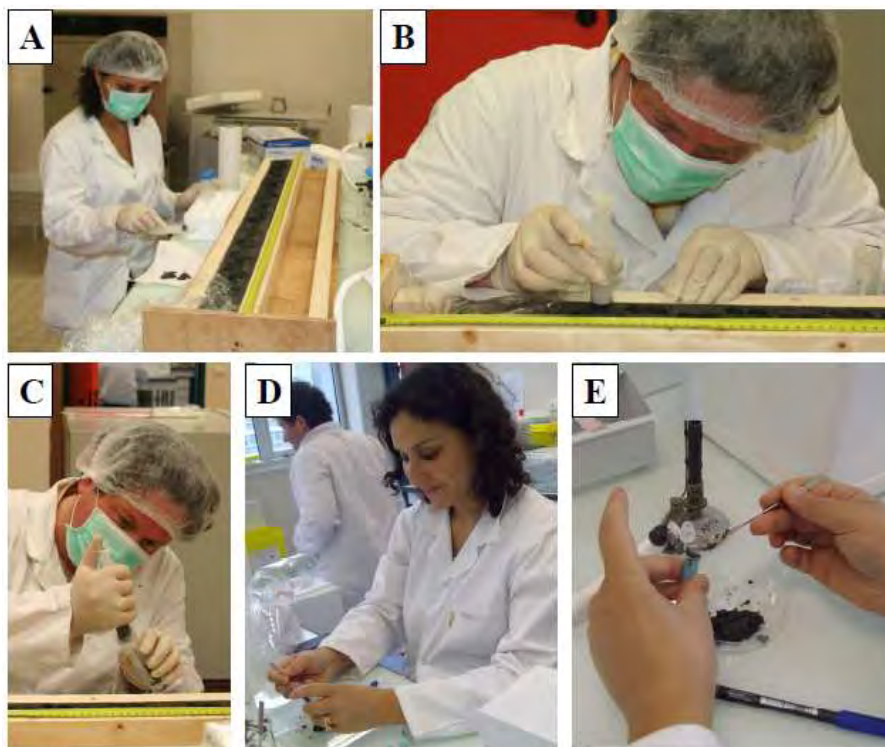


**Figure 8. Localisation des prélèvements microbiologiques ( $\mu\text{b}$ ) et contaminants organiques (CO) dans chaque demi-carotte pour les tronçons C, D et E de la carotte 3VC2 ; le reste est homogénéisé et séché.**

### 2.1. Prélèvements pour la microbiologie

Chaque échantillon a été prélevé à l'aide d'une seringue stérile qui avait été préalablement découpée à son extrémité sous un poste de sécurité microbiologique à l'aide d'un scalpel stérile (support = boîte de Petri stérile). Les microbiologistes ont toujours prélevé en premier au niveau de la carotte en prenant les précautions suivantes (Fig. 9) :

- Elimination de la partie supérieure du sédiment (susceptible d'être contaminée lors du découpage de la carotte) à l'aide d'une spatule stérile.
- Prélèvement à l'aide de la seringue stérile en remontant le piston simultanément à l'enfoncement du tube (2 prélèvements par seringue sur chaque tranche de 5 cm).
- Conservation des échantillons dans des tubes Corning, eux-mêmes dans un bac de glace jusqu'au moment du sous échantillonnage.



**Figure 9. Prélèvement des échantillons pour les analyses microbiologiques (A, B et C) et conditionnement des échantillons en tubes Eppendorf (D et E).**

L'échantillonnage a été réalisé en prenant soin de ne pas prélever du sédiment qui ait été en contact avec la partie externe du cylindre. Les parties suspectées d'avoir été en contact avec le tube ont été éliminées à l'aide de la spatule métallique stérile.

Sur la longueur de la tranche (5 cm), les échantillons ont été prélevés l'un en dessous de l'autre de telle façon que les deux prélèvements couvrent l'intervalle de 5 cm.

### 2.2. Prélèvements pour les analyses de contaminants organiques

Chaque échantillon a été prélevé à l'aide d'une spatule en aluminium et conditionné dans des barquettes en aluminium placées en sacs plastiques. Les échantillons ont ensuite été placés dans une glacière tapissée de glace, elle-même placée en chambre froide. Les échantillons ont été emmenés dans la glacière à l'IRSN de Cherbourg-Octeville le lendemain, puis ont été stockés à -20°C



Figure 10. Prélèvement des échantillons pour les analyses de contaminants organiques.

### 2.3. Prélèvements pour les analyses géochimiques et sédimentologiques

Après avoir pris soin de retirer les limailles d'aluminium éventuellement présentes sur les bords des tubes suite au découpage, le reste de l'échantillon laissé par les prélèvements précédents a été récupéré dans des sacs plastiques : ils ont été stockés à 4°C à M2C Caen.

### 2.4. Bilan des niveaux prélevés

Le nombre d'échantillons prélevés sur chaque tronçon pour chaque type d'analyse est indiqué dans le [tableau 2](#).

Tableau 2. Ensemble des échantillons prélevés après l'ouverture de la carotte 3VC2.

Echantillonnage de la carotte 3VC2 - 586,5 cm								
	Longueur (cm)	Nombre de niveaux	Référence échantillon en haut de tronçon	Référence échantillon en bas de tronçon	Photos + Description	prélèvement microbiologie	Prélèvement contaminants organiques	Prélèvements géochimie + sédimentologie
Tronçon A	113	23	3VC2A-001	3VC2A-023	oui	1 niveau sur 3	0	0
Tronçon B	151	31	3VC2B-001	3VC2B-031	oui	1 niveau sur 3	0	0
Tronçon C	152	31	3VC2C-001	3VC2C-031	oui	31	15	31
Tronçon D	152	31	3VC2D-001	3VC2D-031	oui	30	15	31
Tronçon E	18,5	4	3VC2E-001	3VC2E-004	oui	4	2	4

### 3. Conditionnement spécifique des échantillons pour la microbiologie

Chaque fraction échantillonnée des tronçons C, D et E de la carotte 3VC2 a été mélangée/homogénéisée dans une boîte de Pétri dans des conditions stériles avant sous échantillonnage sous bec Bunsen.

Chaque échantillon a ensuite été réparti dans 14 à 20 micros tubes (Eppendorf) de 1,5 mL à l'aide d'une spatule stérile (nettoyée à l'alcool 70% et flambée entre chaque fraction). L'ensemble a été stocké dans des boîtes le soir même à -80°C au bâtiment IRESE A. Aucune répartition en tubes Eppendorf n'a été effectuée pour les échantillons du tronçon A (8) et B (11) ; ils ont été conservés à - 80°C juste après l'échantillonnage dans des tubes Corning.

## **VII. Archives**

### **1. Echantillons**

A l'issue de cette campagne, nous disposons de plusieurs types d'échantillons :

- des échantillons et sous-échantillons de sédiment brut, conservés à -80°C à M2C Rouen pour les études de microbiologie et de biologie moléculaire.
- des échantillons de sédiment brut, conservés à -20°C à l'IRSN de Cherbourg-Octeville pour l'analyse des contaminants organiques.
- des échantillons de sédiment brut, homogénéisés et conservés à 4°C à M2C Caen pour les analyses d'éléments stables et de radionucléides, et mesures de paramètres connexes.

### **2. Images et logs**

A l'issue de cette campagne, nous disposons de plusieurs types d'images et des logs :

- des images de reportage montrant les différents matériels mis en œuvre et opérations réalisées.
- des images des carottes ouvertes au cours de la campagne et les logs sédimentologiques correspondants.

Crédit photo couverture : GIP Seine-Aval, C. Dégremont  
Pour tout renseignement, veuillez contacter la coordination scientifique : [cdegremont@seine-aval.fr](mailto:cdegremont@seine-aval.fr)

Le GIP Seine-Aval ne saurait être tenu responsable d'évènements pouvant résulter de l'utilisation et de l'interprétation des informations mises à disposition.

Le GIP Seine-Aval est financé par :

