

Evaluer la contamination de l’Orge par une approche multi-traceurs

Claire Froger^{1,2*}, Sophie Ayrault¹, Cécile Quantin², Gaël Monvoisin², Olivier Evrard¹,
Louise Bordier¹, Johnny Gaspéri³

¹ Laboratoire des Sciences du Climat et de l’Environnement (LSCE) – UMR8212, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris Saclay

² Géosciences Paris Sud (GEOPS) – UMR9848, Université Paris Sud – CNRS – Université Paris Saclay

³ Laboratoire Eau Environnement et Systèmes Urbains (LEESU) - Université Paris-Est, Ecole des Ponts ParisTech, AgroParisTech

* claire.froger@lsce.ipsl.fr ; claire.froger@u-psud.fr

Résumé

Malgré la diminution de la contamination globale de la Seine, les niveaux de pollution, notamment dans la phase particulaire, restent très élevés. Cette contamination toujours présente et diffuse met en lumière la difficulté de définir précisément les sources de micropolluants et donc de prendre des décisions réglementaires. L’étude des mécanismes de transfert de polluants des sources à l’exutoire, en particulier ceux liés à la pollution particulaire, est essentielle pour la compréhension des facteurs globaux influençant la contamination. C’est dans ce cadre qu’a émergé notre étude sur le bassin versant de l’Orge, un laboratoire de terrain pour étudier les relations entre l’utilisation des sols, l’hydrodynamique et la dynamique de la contamination. Notre objectif est de quantifier la contamination mixte, organique et inorganique, provenant des activités anthropiques en utilisant des traceurs géochimiques comme les isotopes du plomb couplés à des mesures de radionucléides, qui permettent de caractériser les temps de transfert ainsi que les compartiments réservoirs des particules. Afin de caractériser les particules du ruissellement urbain, des particules de bords de routes (Road Deposited Sediments - RDS) ont également été récoltées dans la zone urbaine la plus dense, i.e. Viry-Châtillon. Le présent rapport a pour but de détailler les résultats obtenus sur les éléments en traces.

La première étape de la démarche a été de quantifier la contamination globale de la rivière en éléments en traces, dans la phase dissoute et la phase particulaire. Les résultats mettent en évidence une relation forte entre la contamination de l’Orge et le degré d’urbanisation pour les éléments Cu, Zn, Pb et Sb pour lesquels on voit une nette augmentation des concentrations d’amont en aval. Les signatures isotopiques du plomb dans les matières en suspension de l’Orge varient entre le fond géochimique local (en accord avec celui du bassin de la Seine) et la contamination des RDS (comparables à la signature « urbaine » des eaux usées parisiennes). L’importance de la contamination urbaine est donc bien mise en évidence avec un impact visible dès l’amont du bassin. Enfin, les activités en ¹³⁷Cs des particules collectées dans la rivière indiquent que celles-ci proviennent surtout des zones cultivées ou des zones urbaines plutôt que des sols forestiers. Ces résultats ne permettent pas toutefois de différencier les sols agricoles, des sols de zones urbaines et des berges qui présentent tous des activités en ¹³⁷Cs similaires. L’Orge apparaît donc comme un bassin versant urbanisé nettement affecté par les contaminations urbaines, avec une forte contribution du trafic routier comme en témoigne le niveau élevé de Sb, et présentant des niveaux de pollution comparables à celle des grandes rivières contaminées du monde.

Introduction

Le développement des activités humaines a entraîné des modifications dans tous les compartiments des écosystèmes continentaux, côtiers et marins (Meybeck 2001 ; Vörösmarty et al., 2010). Le bassin de la Seine est ainsi fortement impacté par une urbanisation et une industrialisation croissantes depuis plus d’un siècle, ayant engendré une contamination massive en micropolluants de l’hydrosystème (Grosbois et al., 2006 ; Ayrault et al., 2012 ; Horowitz et al., 1999 ; Thévenot et al., 2007). Donner des clés de compréhension aux acteurs socio-économiques et politiques pour réduire la dégradation actuelle de l’environnement aquatique du bassin de la Seine constitue l’un des principaux objectifs des actions du PIREN Seine et des études qui en découlent.

Malgré la diminution de la contamination globale de la Seine, les niveaux de pollution en métaux, restent très élevés, notamment dans la phase particulaire (Meybeck et al., 2016). Cette contamination résiduelle toujours présente et diffuse met en lumière la difficulté de définir précisément les sources de micropolluants et donc de prendre des décisions réglementaires pertinentes pour les réduire. L’étude des mécanismes de transfert de polluants depuis leur source jusqu’à l’exutoire du bassin / dans les différents compartiments du BV, en particulier ceux qui sont liés à la pollution particulaire, est essentielle pour la compréhension des facteurs globaux influençant la contamination.

C’est dans ce cadre qu’a émergé notre étude sur le bassin versant de l’Orge, un laboratoire de terrain pour étudier les relations entre l’utilisation des sols, l’hydrodynamique et la contamination, comme l’ont montré plusieurs études antérieures (Bourgeault et al., 2010 ; Le Pape et al., 2012 ; 2013 ; 2014). L’objectif des travaux qui font l’objet de ce chapitre est de quantifier la contamination provenant des activités anthropiques en utilisant des traceurs géochimiques comme les isotopes du plomb couplés à des mesures de radionucléides, qui permettent de caractériser les temps de transfert ainsi que les compartiments réservoirs des particules. L’ensemble des résultats obtenus devrait permettre de produire un schéma global de la dynamique des contaminants historiques et émergents à l’échelle d’un bassin versant urbain. L’étude s’est plus particulièrement portée sur les éléments en traces spécifiques des contaminations urbaines (Pb, Cu, Zn, Sb) et sur les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Dans le rapport présenté ici, seuls les résultats de la contamination en éléments en traces sont détaillés.

La première étape de la démarche a donc été d’évaluer la contamination globale de la rivière en éléments traces, dans la phase dissoute et la phase particulaire, dans la continuité des travaux de Pierre le Pape en 2009-2012 sur ce bassin versant en apportant une quantification des différentes contributions à la contamination. Afin de caractériser les particules issues du ruissellement urbain, des sédiments déposés sur les routes (Road Deposited Sediments - RDS) ont également été récoltés dans la zone urbaine la plus dense. La deuxième étape a été de définir les signatures isotopiques en plomb des matières en suspension de l’Orge et ainsi d’observer l’évolution des sources de contamination en fonction du gradient d’urbanisation. Une démarche similaire (dont les résultats sont trop préliminaires au moment de l’écriture de ce rapport pour être présentés) sera appliquée pour évaluer la contamination en HAP et notamment pour définir leurs sources grâce à l’étude de la contribution des différents composés.

Par la suite, l’étude des radionucléides permettra de quantifier la dynamique et l’origine des particules transitant dans la rivière. L’objectif final sera alors de coupler les radionucléides permettant d’estimer l’apport des particules provenant des zones urbaines avec les traceurs géochimiques qui indiquent les sources de contamination telles que le trafic routier. Ce couplage aura alors pour but de localiser (dans l’espace et dans le temps) et de quantifier de manière précise la contamination du ruissellement urbain, à l’échelle d’un petit bassin représentant bien la pression anthropique croissante de l’amont vers l’aval.

1 Le site d’étude et échantillonnage

1.1 Le bassin versant de l’Orge

Le bassin versant de l’Orge présente des caractéristiques d’occupation des sols et démographiques qui en font un site de choix pour l’étude des relations entre occupation des sols, hydrodynamique de la rivière et dynamique de la contamination (

Figure 1, Le Pape et al., 2012). En effet, avec une surface globale de 900 km², le bassin versant de l’Orge se caractérise par un gradient d’urbanisation très fort d’amont en aval. La population passe de 300 habitants par km² dans la ville de Dourdan en amont, à plus de 5000 habitants au km² en aval à Viry-

Châtillon. L’occupation des sols passe de 10 % de surfaces urbanisées en amont à plus de 56 % en aval. Cette spécificité en fait donc un bassin très intéressant pour l’étude des contaminations liées à l’intensification de l’urbanisation.

L’étude sur un petit bassin permet de plus d’avoir un maillage d’échantillonnage plus fin au niveau spatial avec une distance d’à peine 10-15 km entre les sites de prélèvements, ce qui permet d’échantillonner tous les sites en quelques heures. En réduisant le délai entre les échantillonnages, on limite la probabilité de rejets additionnels importants entre les sites ou des variations de débit. Les résultats obtenus permettent ainsi de caractériser plus finement l’impact d’une situation hydrologique donnée. De plus, le réseau de collecte des eaux étant séparatif sur une très grande partie du bassin, une forte proportion des eaux usées produites dans le bassin sont acheminées dans la station d’épuration Seine Amont en dehors du bassin versant (www.syndicatdelorge.fr). Seule une faible proportion des eaux usées est ainsi traitée au sein des stations d’épuration dans le bassin de l’Orge dans de petites stations d’épuration de moins de 3000 Equivalents Habitants présentes sur le bassin versant à l’amont du bassin (SAGE 2011). On a donc théoriquement une source de contamination qui est absente dans le bassin versant de l’Orge, permettant de se focaliser sur les seuls apports urbains majoritairement liés au ruissellement.

Néanmoins, ce dernier point concernant le système d’évacuation des eaux usées peut s’avérer problématique puisque les mauvais raccordements des eaux usées qui pourraient atteindre 20 % par endroits, peuvent entraîner des rejets non identifiés (Le Pape et al., 2013).

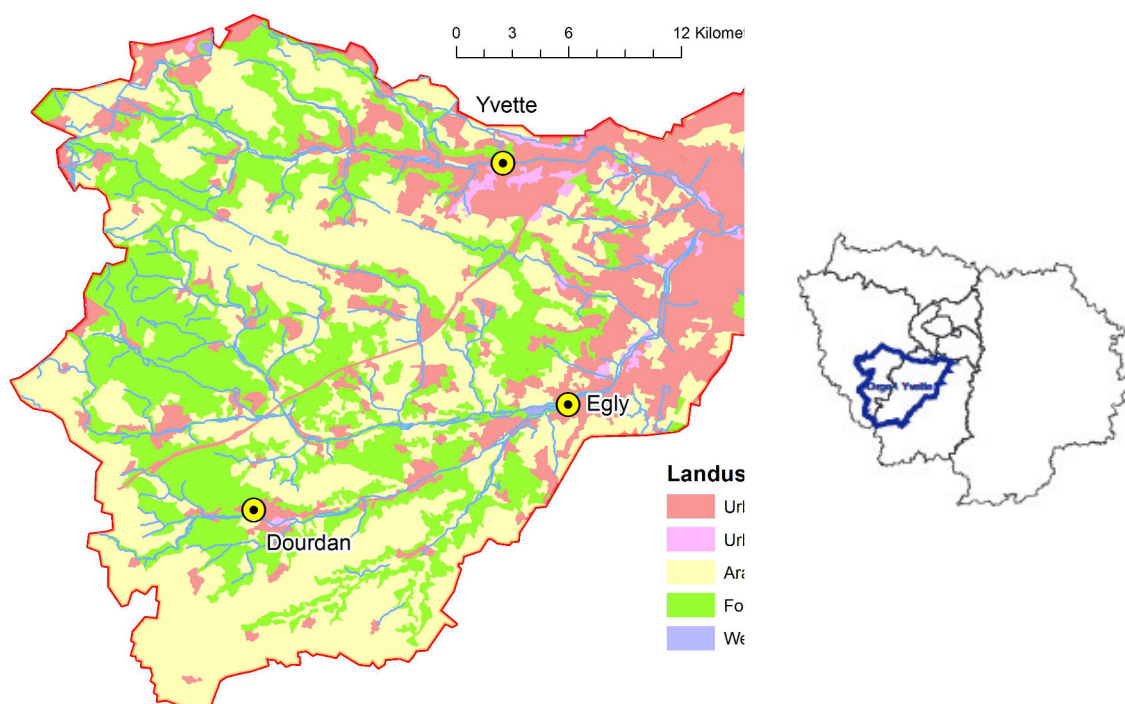


Figure 1. Le bassin versant de l’Orge et son occupation des sols (source : Corine Land Cover)

1.2 Echantillonnage

La stratégie d’échantillonnage avait pour objectif d’être représentative de la variation spatiale de l’occupation du sol, de la densité d’habitants et également du régime hydrologique de la rivière.

Une démarche similaire avait été développée lors des travaux de thèse de Pierre Le Pape (2009-2012). Ses sites d’études étaient répartis sur l’ensemble du bassin versant et de ses affluents (Le Pape et al., 2012). Pour cette étude, nous avons conservé 4 des 7 points de prélèvements de son travail. Ces sites ont été choisis puisqu’ils couvrent de manière efficace le gradient d’urbanisation. Ce choix de 4 sites, qui n’aurait pas été possible sans l’étude de Pierre Le Pape, a permis l’investigation de paramètres plus nombreux (radionucléides, HAP, etc.), permettant ainsi d’investir de nouveaux champs de connaissance. Trois sites

sont placés sur la rivière Orge (Dourdan, Egly et Viry-Châtillon), et un site l’est au niveau de l’Yvette, un affluent important en termes de flux de particules et de contamination (Le Pape et al., 2012).

L’échantillonnage a été organisé de manière à être le plus robuste possible, en intégrant le court/moyen terme, et les contraintes liées aux analyses des polluants organiques et inorganiques et celle des radionucléides (conditionnement, quantité de matériel nécessaire). Aussi, pour chaque campagne, un set de flacons en PET est utilisé pour la mesure des éléments traces et un second set de flacons en aluminium et de bouteilles en verre est utilisé pour récolter les échantillons pour lesquels les HAP seront mesurés.

Ainsi, la collecte pour chaque campagne s’est faite en deux temps. La première étape a consisté en la collecte d’échantillons dissous et particulaires ponctuels. Environ 10 L d’eau de rivière ont été prélevés pour chaque site dans des flacons préalablement nettoyés (au HNO₃ 5% pour les éléments traces et à l’acétone pour les HAP). De retour au laboratoire, ces échantillons ont ensuite été filtrés sur des filtres en nitrate de cellulose à 0,45µm de porosité, la fraction dissoute a été récupérée puis une aliquote a été acidifiée pour le dosage des cations majeurs et traces. Dans le cas des HAP, la phase d’extraction liquide a été faite le lendemain de la collecte, après filtration sur des filtres en quartz (GFF à 0,45µm de porosité) préalablement grillés.

La deuxième étape a été l’échantillonnage des matières en suspension en utilisant des systèmes de trappes à sédiments (Figure 2). L’objectif a été d’atteindre une meilleure représentativité des particules transitant dans l’Orge en collectant les matières en suspension (MES) sur plusieurs jours. Les trappes ont été disposées dans la rivière entre deux prélèvements ponctuels espacés d’environ 5 jours. Ces trappes avaient été lestées et percées à leur base au préalable afin de récolter les matières en suspension par sédimentation.

En parallèle des collectes des échantillons, des mesures de pH, conductivité et température ont été effectuées systématiquement sur le terrain.



Figure 2. Trappes à sédiments

Ainsi, lors de chaque campagne, on a donc récolté pour chacun des sites et pour chaque type de contaminants : deux échantillons ponctuels de dissous, deux échantillons ponctuels de MES et un échantillon de MES des trappes à sédiments.



Le second objectif de l’échantillonnage a été la représentativité temporelle des échantillons. C’est pourquoi les campagnes ont été effectuées durant l’année 2015-2016 à différentes périodes hydrologiques et diverses saisons (Figure 3). Durant l’étude, on a donc couvert des périodes de basses eaux (juin 2015 et août 2016), de moyennes eaux (janvier et novembre 2016), de hautes eaux (septembre 2015 et avril 2016) et un événement extrême (crue de juin 2016).

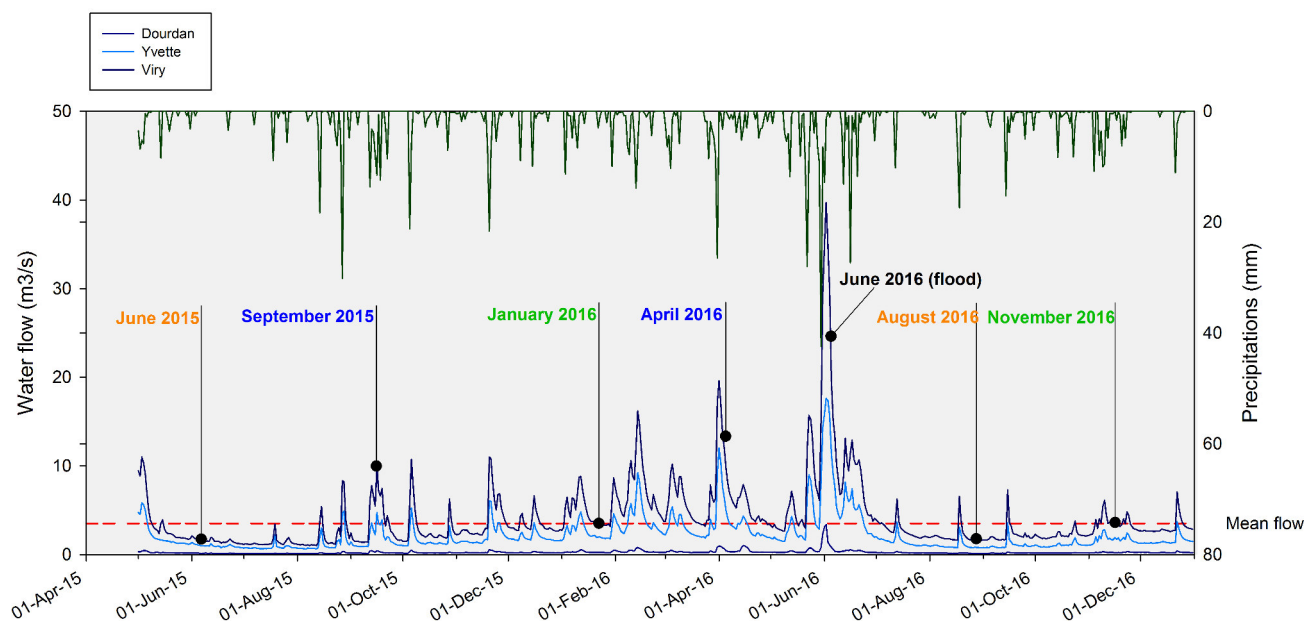


Figure 3. Hydrogramme de l'Orge et l'Yvette, et précipitations

1.3 Analyses géochimiques des éléments traces

1.3.1 Minéralisation des matières en suspension

Les matières en suspension provenant des échantillonnages ponctuels et des trappes à sédiments ont été lyophilisées puis broyées dans un mortier en agate. Environ 100 mg d'échantillon ont ensuite été minéralisés dans des bombes en Teflon. Pour chaque échantillon, trois réplicats ont été effectués.

La digestion s'est déroulée en trois étapes. Une première étape de digestion a été faite avec 4 mL de HF (30 %) et 2 mL de HClO₄ (67 %) chauffés après 2 h de repos à 150°C pendant 1 h. La seconde étape de l'attaque a été effectuée avec de l'eau régale soit 3,75 mL d'HCl (30 %) et 1,25 mL d'HNO₃ (67 %) à laisser reposer durant 8 heures avant un chauffage à 120°C durant 3h20. Enfin, trois reprises nitriques avec 1mL d'HNO₃ (67 %) chauffées 1 h à 110°C ont terminé le processus de minéralisation. Les solutions des matières en suspension minéralisées ont été transférées dans des tubes Falcon de 50mL ajustées avec du HNO₃ 0,5N. Les minéralisations ont toutes été effectuées avec un matériau de référence, le SL1 AIEA (Lake Sediment), et un blanc.

1.3.2 Analyses élémentaires

Les concentrations des éléments traces des matières en suspension minéralisées et des échantillons d'eau acidifiés ont été mesurées par ICP-MS quadropolaire (ICP-QMS, X-Series, CCT II & Thermoelectron, France). Une eau de rivière de référence (SRM 1640a, NIST, USA) a été utilisée pour contrôler la justesse de mesure de l'ICP-QMS et des étalons internes (Re, Rh, In) ont été utilisés afin de corriger la dérive machine. Afin de limiter les interférences isobariques (notamment dans la gamme de masse 40-80 qui concerne beaucoup d'éléments d'intérêt), un mode appelé *Collision Cell Technology* a été utilisé, faisant intervenir un mélange de gaz (H₂ (7 %) et He (93 %)). À partir des mesures du standard SL1, la mesure la plus juste des deux séries (avec et sans CCT) est choisie. La répétition des analyses du matériau de référence SL-1 ainsi que les réplicats permettent d'évaluer la précision de la mesure.

Les éléments majeurs (Ca, Na, Mg, K) ont été déterminés par Absorption Atomique dans les phases dissoutes et les solutions d'attaque des MES en utilisant un AAS240FS (VARIAN). Les anions (Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- , F^-) ont été mesurés dans les eaux filtrées non acidifiées par chromatographie ionique d'échange anionique (DIONEX ICS-1000, colonne AS14, éluant $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$, 1,2 ml/min)

Enfin, les concentrations en C, N et S des matières en suspension brutes ont été mesurées en utilisant un CHNSO Flash 2000 OEA après combustion sèche.

1.4 Mesure des radionucléides

Les radionucléides ont été mesurés sur les MES brutes provenant des trappes à sédiments dans la semaine suivant les échantillonnages. Les échantillons lyophilisés ont été placés dans les boîtes de polyéthylène d'une capacité de 15 à 60m L et scellés avant comptage au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) à Gif-sur-Yvette. Les activités en ^7Be , ^{210}Pb et ^{137}Cs présentant des temps de demi-vie respectifs de 53 jours, 22 ans et 30 ans ont été quantifiées à partir de la détection des pics caractéristiques des émissions gamma de ces radionucléides à 447,6 keV, 46,5 keV et 661,5 keV avec un spectromètre gamma de type GeHP à très bas bruit de fond (Ortec ou Canberra). Le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ provenant du dépôt atmosphérique est ensuite recalculé en soustrayant le ^{210}Pb issu de la désintégration de l'uranium. Les activités sont exprimées en Bq.kg^{-1} et sont corrigées de la décroissance radioactive pour les trois radionucléides mesurés à la date de prélèvement.

2 Résultats

2.1 Contamination en éléments traces

Les teneurs en éléments traces des MES sont présentées Figure 4 pour Cu, Zn, Pb, Sb, Cr et Co. Elles varient de 20 à 132 mg.kg⁻¹ pour le Cu, 85 à 666 mg.kg⁻¹ pour le Zn, 1 à 3,8 mg.kg⁻¹ pour le Sb, 29 à 120 mg.kg⁻¹ pour le Pb. A l’inverse, les concentrations en Cr, Co et Ni sont stables avec des concentrations respectives de 43 à 54 mg.kg⁻¹, 8,9 à 9,8 mg.kg⁻¹ et 20 à 25 mg.kg⁻¹.

La moyenne mondiale des concentrations en éléments traces de matières en suspension prélevées dans les grands fleuves (Viers et al., 2008), les éléments traces des MES de la Seine à l’aval de Paris à Bougival (Ayrault et al., 2012) et les concentrations du fond géochimique local défini dans cette étude sont également reportées sur les graphiques.

Le fond géochimique local correspond aux teneurs mesurées entre 110 et 130 cm de profondeur dans un profil de sol (Luvisol de loess), prélevé sur le plateau de Saclay proche de l’Yvette. Ils sont en accord avec les concentrations du fond géochimique du bassin de la Seine déjà établi par Thévenot et al. (2002).

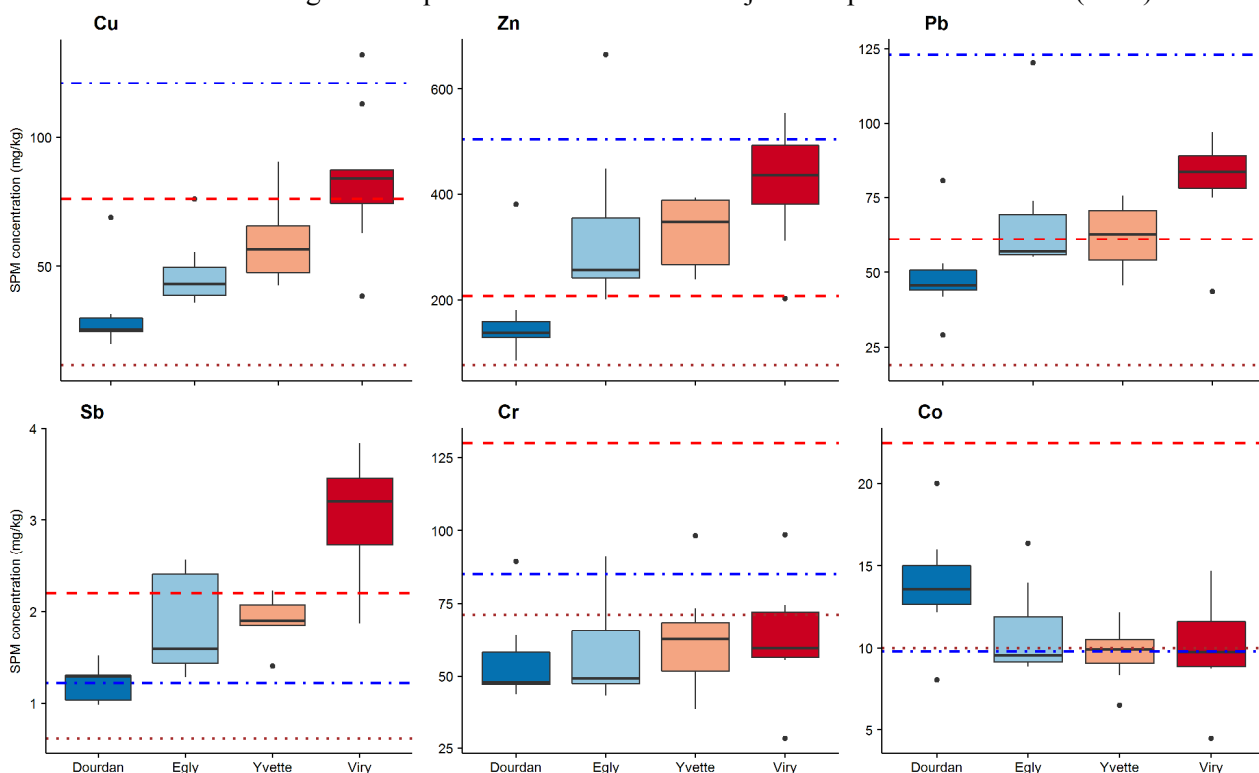


Figure 4. Concentrations en éléments traces des Matières en Suspension. Ligne rouge : moyenne mondiale (Viers et al., 2008). Ligne bleue : MES de la Seine (Priadi et al., 2011 ; Ayrault et al., 2012). Ligne brune : fond géochimique local.

L’ensemble des résultats de contamination particulaire en éléments traces de l’Orge montre les niveaux de contamination importants qui prévalent dans le bassin. On distingue deux groupes d’éléments. Le premier groupe associe Cu, Zn, Pb et Sb pour lesquels on voit une nette augmentation des concentrations d’amont en aval. Ces éléments sont considérés dans la littérature comme des contaminants urbains, particulièrement dans le bassin de la Seine (Thévenot et al., 2007 ; Meybeck et al., 2007). Dans le cas de l’Orge, on constate une contamination supérieure à la moyenne mondiale et également à celle des MES de la Seine de 2010 pour Zn et Sb. Les concentrations en Cu et Pb des MES sont supérieures aux moyennes mondiales mais restent néanmoins inférieures à celles des MES de la Seine. On est donc en présence d’un bassin versant urbanisé nettement affecté par les contaminations urbaines, avec une forte contribution du trafic routier comme en témoigne le niveau élevé de Sb, et présentant des niveaux de pollution comparables à celui des grandes rivières contaminées (Viers et al., 2008).

Le second groupe est constitué de Cr, Co et Ni qui atteignent, dans les MES, des concentrations équivalentes au fond géochimique local. Ces éléments stables d’amont en aval ne sont donc pas liés à l’urbanisation et aux rejets anthropiques dans le cas de l’Orge.

2.2 Traçage de la contamination en plomb

Les rapports isotopiques $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ en fonction du facteur d’enrichissement (calculé en utilisant les teneurs du fond géochimique local et l’aluminium comme élément de référence, Ayrault et al., 2012) sont présentés à la Figure 5. Les signatures des *Road Deposited Sediments* (RDS) collectés le long de la route à Viry-Châtillon, près du site d’échantillonnage en rivière, ainsi que le fond géochimique local, sont également représentées.

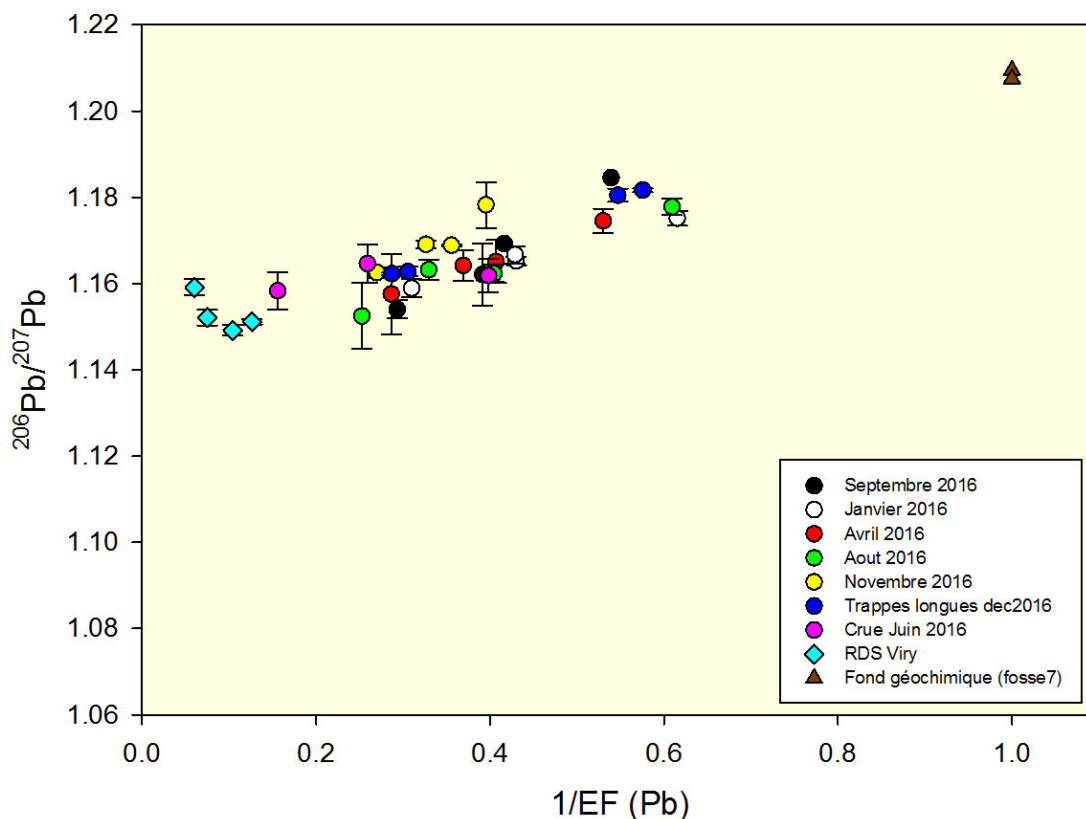


Figure 5. Signatures isotopiques en $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ des MES de l'Orge en fonction de $1/EF_{\text{Pb}}$

On constate que les signatures des matières en suspension de l’Orge s’étendent entre le fond géochimique local à $1,2085 \pm 0.0014$ et les RDS de Viry qui vont de $1,1591 \pm 0.0019$ à $1,1491 \pm 0.0012$ en $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$. Le fond géochimique local est en accord avec celui du bassin de la Seine à $1,2007$ en $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ mesuré dans des sédiments de la Seine non-impacts par l’activité anthropique (Elbaz-Poulichet et al., 1986). Les signatures des RDS s’avèrent similaires aux signatures industrielles provenant des mesures des émissions d’incinérateurs qui vont de $1,1576$ à $1,1427$ (Monna et al., 1997 ; Carignan et al., 2005). De plus, elles sont comparables à une signature dite « urbaine » de $1,154 \pm 0.002$ qui a émergé dans les eaux usées parisiennes suite à l’interdiction des additifs plombés de l’essence (Ayrault et al., 2012).

L’importance de la contribution de la contamination urbaine est donc bien mise en évidence ici avec un changement de la signature isotopique du plomb des MES de l’Orge d’amont en aval, qui passe d’une signature correspondant au fond géochimique local à une signature urbaine. De plus, on constate que les signatures de l’ensemble des MES se trouvent globalement plus proches de celle des RDS que de celle du bruit de fond géochimique local. Cette observation suggère que l’on a déjà une influence de l’urbain au niveau du site le plus en amont à Dourdan, qui n’est pas visible au regard des concentrations. Ceci peut s’expliquer par le fait que l’ajout d’une faible quantité de plomb contaminé mais très marqué en $^{206}\text{Pb}/^{207}\text{Pb}$ peut considérablement modifier la signature sans augmenter drastiquement les concentrations, et démontre une fois de plus la performance des outils isotopiques dans l’identification des sources environnementales de contamination en plomb (Komárek et al., 2008).

2.3 Les radionucléides dans les MES

L’analyse des radionucléides a pour but d’apporter des informations sur l’origine des particules érodées des sols (surface / profondeur) avec le ^{237}Cs et leur dynamique temporelle avec le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$. Le ^{137}Cs a été produit artificiellement lors des essais nucléaires atmosphériques commencés dans les années 1950 et qui ont culminé en 1963 juste avant l’entrée en vigueur du traité les interdisant. Ces essais ont entraîné des retombées globales de ^{137}Cs à la surface des sols. La forte affinité de ce radionucléide pour les particules fines et sa faible migration verticale dans les sols (Bunzl et al., 1995) ont conduit à son utilisation très fréquente pour le traçage des sources de particules érodées, en particulier dans des contextes agricoles (Walling & Quine 1991 ; Wallbrink & Murray 1993 ; Mabit et al., 2008 ; Le Gall et al., 2015). Il permet essentiellement de discriminer les particules provenant de la surface des sols (marquée en ^{137}Cs) ou de la subsurface (non marquée) et ainsi de mettre en évidence la contribution des ravines et des berges des cours d’eau aux particules transitant dans les rivières (Evrard et al., 2010).

Les mesures de radionucléides ont été réalisées sur les MES mais également sur des sols du bassin versant de l’Orge prélevés en 2014. Ces échantillons étaient au nombre de 8 pour les sols forestiers, 5 pour les sols agricoles, 7 pour les sols urbains, 3 pour les berges. Les MES et RDS collectés en 2016 étaient au nombre de 24 et 4, respectivement.

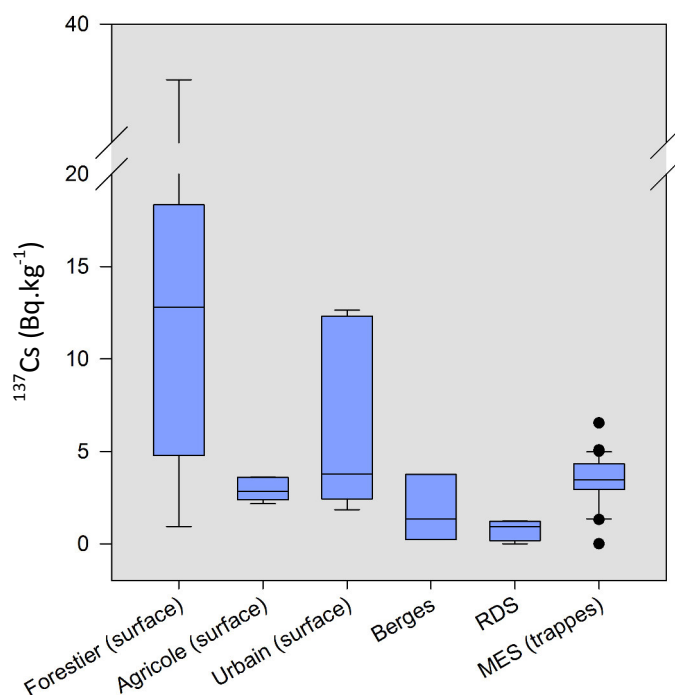


Figure 6. Activités en ^{137}Cs (Bq.kg^{-1}) pour des sols de l’Orge (forestier, agricole et urbain), les Road Deposited Sediments, les Berges et les MES

Les activités en ^{137}Cs des différents sols du bassin versant de l’Orge et des matières en suspension sont présentées à la Figure 6. On constate que les gammes de variations diffèrent suivant l’occupation des sols considérée. Ainsi, les sols de forêts présentent les activités les plus importantes allant de 2 à 36 Bq.kg^{-1} avec une médiane à 12 Bq.kg^{-1} . Ces résultats mettent en avant l’absence d’érosion de ces sols forestiers (Gateuille et al 2014). A l’inverse, les sols agricoles présentent des activités beaucoup plus faibles en ^{137}Cs allant de 2.2 à 3.6 Bq.kg^{-1} , certaines valeurs sont même plus faibles que celles qui ont été mesurées dans les sols agricoles du bassin de l’Orgeval (Gateuille et al., 2014), témoignant ainsi de l’intensité des processus d’érosion de surface subis par ces sols avec une perte des particules marquées. Les sols urbains sont, eux, plus hétérogènes avec des valeurs allant de 1.8 à 12.6 Bq.kg^{-1} mais avec une médiane autour de 3.8 Bq.kg^{-1} . Deux sites présentent une valeur supérieure à 12 Bq.kg^{-1} , les autres sont associés à des activités inférieures à 4 Bq.kg^{-1} . Dans l’ensemble, l’activité en ^{137}Cs des sols urbains est assez faible, soulignant une érosion importante ou un lessivage rapide des surfaces urbaines. En effet, une étude des temps de résidence des particules sur les sols du bassin de la Seine a montré que ce temps était court (1 à 2 ans) pour les surfaces très urbanisées (Le Cloarec et al., 2007). Néanmoins l’historique de ces sols doit aussi être pris en compte dans les hypothèses. En effet, les sols situés aujourd’hui dans un contexte urbain ont pu être utilisés pour

l’agriculture précédemment, ce qui expliquerait la faible activité en radionucléides. A l’inverse, les sols avec de fortes activités ont pu être préservés de l’érosion, ou bien il peut s’agir de terres remaniées. En ce qui concerne les berges, les signatures sont très variables, entre 0.2 et 3.8 Bq.kg⁻¹ ce qui correspond, pour les valeurs faibles, à des sols de subsurface, et pour les valeurs fortes, a, peut-être, des dépôts de sédiment dragué. Enfin, les Road Deposited Sediments prélevés en contexte urbain ne présentent presque aucune activité en ¹³⁷Cs, entre 0.7 et 1.2 Bq.kg⁻¹ avec un échantillon sous la limite de détection. Ces résultats soulignent la particularité de ces particules collectées en zone urbaine, qui ne proviennent pas de surfaces marquées en ¹³⁷Cs. Ce résultat pourrait exclure les sols urbains comme source majoritaire de particules de ruissellement. Enfin, les matières en suspension présentent des activités en ¹³⁷Cs allant de 1.3 à 6.5 Bq.kg⁻¹, la majorité étant autour de 3 Bq.kg⁻¹.

Les données en ¹³⁷Cs nous informent ainsi que les sols de forêt ne sont pas une source significative de MES pour la rivière. Néanmoins, ces résultats d’activités en ¹³⁷Cs ne permettent pas de conclure sur la source des MES au vu des signatures similaires pour les sols agricoles, urbains et les berges. De plus, les RDS présentent une très faible signature en ¹³⁷Cs, ce qui ne nous permettrait pas de distinguer un apport de cette source en ne considérant que le ¹³⁷Cs. Par contre, ces données nous montrent que les sols agricoles du bassin de l’Orge ont subi une érosion significative depuis le milieu des années 1960.

3 Conclusions et perspectives

Les résultats présentés ici nous ont permis de mettre en évidence que la contamination de l’Orge, en particulier dans la phase particulaire, est forte et liée au gradient d’urbanisation. De plus, l’isotopie du plomb nous a permis de distinguer une modification de la signature en ²⁰⁶Pb/²⁰⁷Pb d’amont en aval, indiquant un apport croissant de contamination provenant des zones urbaines. Les *sédiments routiers* collectés dans la zone urbaine la plus dense, présentent des signatures isotopiques proches de la signature « urbaine » de la littérature. Ils semblent donc être des échantillons prometteurs pour caractériser les particules provenant du ruissellement urbain. Enfin, les activités en ¹³⁷Cs montrent que les particules collectées dans la rivière ne proviennent pas des sols forestiers. Néanmoins, l’érosion importante des sols, qu’ils soient agricoles ou urbains, indiquée par les faibles activités en ¹³⁷Cs, rend difficile une interprétation plus poussée sur l’origine des particules en terme de surface/berge.

Les perspectives pour la suite de l’étude sont d’étudier les activités en ⁷Be et ²¹⁰Pb_{xs} qui sont des marqueurs temporels de la dynamique de transfert des particules. L’évolution de leur activité au sein des matières en suspension devrait nous permettre de quantifier l’apport de particules par les zones urbaines. Le couplage avec les signatures isotopiques du plomb nous permettra ensuite de pouvoir estimer des contributions provenant du ruissellement urbain. Enfin, l’analyse des concentrations en HAP aura pour but d’évaluer de la même manière les niveaux de contamination organique, son évolution et sa relation avec le gradient d’urbanisation. L’un des buts de cette étude est de pouvoir réaliser un bilan de masse de la contamination en HAP au sein du bassin versant et de pouvoir quantifier, en particulier, la part provenant du ruissellement urbain. L’objectif final est de pouvoir évaluer la relation entre les caractéristiques de l’urbanisation (imperméabilité, population) et la contamination de la rivière. L’évaluation de l’influence de différents paramètres liés au fonctionnement de la rivière (débit) et à l’urbanisation (population, imperméabilisation) permettra alors d’améliorer notre compréhension de la dynamique globale de la contamination dans le bassin versant de l’Orge, qui est représentatif des bassins urbains fortement anthropisés dès la fin du XIX^{ème} siècle.

Bibliographie

- Ayrault, S. et al., 2012. Lead contamination of the Seine River, France: Geochemical implications of a historical perspective. *Chemosphere*, 87(8), pp.902–910.
- Bourgeault, A. et al., 2010. Lessons from a transplantation of zebra mussels into a small urban river: an integrated ecotoxicological assessment. *Environmental Toxicology*, 25(5), pp.468-478.
- Bunzl, K. et al., 1995. Migration of fallout ²³⁹+²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in the various horizons of a forest soil under pine. *Journal of Environmental Radioactivity*, 28(1), pp.17–34.
- Carignan, J. et al., 2005. Lead isotopic composition of fly ash and flue gas residues from municipal solid

- waste combustors in France: Implications for atmospheric lead source tracing. *Environmental Science and Technology*, 39(7), pp.2018–2024.
- Elbaz-Poulichet, F. et al., 1986. Stable lead isotopes ratios in major french rivers and estuaries. *Science of the Total Environment*, 54(C), pp.61–76.
- Evrard, O. et al., 2010. Sediment dynamics during the rainy season in tropical highland catchments of central Mexico using fallout radionuclides. *Geomorphology*, 124(1–2), pp.42–54.
- Le Cloarec, M.-F. et al., 2007. Distribution of ⁷Be, ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs in watersheds of different scales in the Seine River basin: inventories and residence times. *Science of the Total Environment*, 375(1), p. 125-139.
- Le Gall, M. et al., 2015. Tracing sediment sources using strontium isotopes in a pond draining an agricultural catchment (Loire River basin , France). *Procedia Earth and Planetary Science*, 13, pp.30–34.
- Gateuille, D., et al., 2014. Combining measurements and modelling to quantify the contribution of atmospheric fallout, local industry and road traffic to PAH stocks in contrasting catchments. *Environmental Pollution*, 189, 152-160.
- Grosbois, C. et al., 2006. The spatial and temporal trends of Cd , Cu , Hg , Pb and Zn in Seine River floodplain deposits (1994 – 2000). *Science of the Total Environment*, 356, pp.22–37.
- Komárek, M. et al., 2008. Lead isotopes in environmental sciences: A review. *Environment International*, 34(4), pp.562–577.
- Mabit, L., Benmansour, M. & Walling, D.E., 2008. Comparative advantages and limitations of the fallout radionuclides ¹³⁷Cs, ²¹⁰Pbex and ⁷Be for assessing soil erosion and sedimentation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(12), pp.1799–1807.
- Meybeck, M. et al., 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), pp.204–231.
- Meybeck, M. et al., 2016. Trajectories of river chemical quality issues over the Longue Durée : the Seine River (1900S – 2010). *Environmental Science and Pollution Research*, (Umr 7533).
- Meybeck, M.H., 2001. Global alteration of riverine geochemistry under human pressure. In T. Ehlers, E and Krafft, ed. *Understanding the Earth System: compartments, processes and interactions*. Heidelberger Platz 3, D-14197 Berlin, Germany: Springer-Verlag Berlin, pp. 97–113.
- Monna, F. et al., 1997. Pb Isotopic Composition of Airborne Particulate Material from France and the Southern United Kingdom : Implications for Pb Pollution Sources in Urban Areas. *Environmental science & technology*, 31(8), pp.2277–2286.
- Le Pape, P., Ayrault, S. & Quantin, C., 2012. Trace element behavior and partition versus urbanization gradient in an urban river (Orge River, France). *Journal of Hydrology*, 472–473(0), pp.99–110.
- Priadi, C. et al., 2011. Urbanization impact on metals mobility in riverine suspended sediment: Role of metal oxides. *International Journal of Environmental Science and Technology*, 8(1), pp.1–18.
- SAGE, O.-Y., 2011. *Actualisation de l'état des lieux et du diagnostic*,
- Thévenot, D.R. et al., 2007. Critical budget of metal sources and pathways in the Seine River basin (1994-2003) for Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb and Zn. *Science of the Total Environment*, 375(1–3), pp.180–203.
- Thévenot, D.R., Meybeck, M. & Lestel, L., 2002. *Métaux lourds : des bilans en mutation*,
- Viers, J., Dupré, B. & Gaillardet, J., 2008. Chemical composition of suspended sediments in World Rivers : New insights from a new database. *Science of the Total Environment*, 407(2), pp.853–868.
- Vörösmarty, C.J. et al., 2010. Global threats to human water security and river biodiversity. *Nature*, 468(7321), p.334. Available at: <http://dx.doi.org/10.1038/nature09549>.
- Wallbrink, P.J. & Murray, A.S., 1993. Use of fallout radionuclides as indicators of erosion processes. *Hydrological Processes*, 7(3), pp.297–304.
- Walling, D.E. & Quine, T.A., 1991. Use of ¹³⁷Cs measurements to investigate soil erosion on arable fields in the UK: potential applications and limitations. *Journal of Soil Science*, 42(1), pp.147–165.