

UNIVERSITÉ de CAEN BASSE-NORMANDIE

U.F.R. : Sciences

ECOLE DOCTORALE : Structures, Informations, Matière et Matériaux

T H E S E

Présentée par

Melle VREL Anne

Et soutenue

Le 10 décembre 2012

En vue de l'obtention du

DOCTORAT de l'UNIVERSITE de CAEN

Spécialité : Terres solides et Enveloppe Superficielle

Arrêté du 07 août 2006

**Reconstitution de l'historique des apports
en radionucléides et contaminants métalliques
à l'estuaire fluvial de la Seine
par l'analyse de leur enregistrement sédimentaire**



MEMBRES du JURY

M. Michel MEYBECK, Directeur de recherche CNRS, Université Paris VI, (Sisyphé, UMR CNRS 7619) (*rapporteur*)

M. Jörg SCHÄFER, Professeur de l'Université Bordeaux I, (EPOC, UMR CNRS 5805) (*rapporteur*)

M. Philippe BONTE, Conseiller scientifique CEA, Docteur d'Etat, (LSCE Gif-sur-Yvette) (*examineur*)

M. Robert LAFITE, Professeur de l'Université de Rouen, (M2C, UMR CNRS 6143) (*examineur*)

M. Jean-Marie MOUCHEL, Professeur de l'Université Université Paris VI, (Sisyphé, UMR CNRS 7619) (*examineur*)

M. Dominique BOUST, Chercheur IRSN, Docteur d'Etat, (LRC Cherbourg-Octeville) (*co-directeur de thèse*)

M. Patrick LESUEUR, Professeur de l'Université de Caen, (M2C, UMR CNRS 6143) (*directeur de thèse*)

Contexte du projet de thèse

Cette thèse a été préparée à l'Université de Caen Basse-Normandie, à l'Ecole Doctorale SIMEM (Structures, Information, Matière et Matériaux). Elle a été dirigée par Patrick LESUEUR, professeur au Laboratoire Morphodynamique Continentale et Côtière (M2C), UMR CNRS 6143 (<http://w3.unicaen.fr/recherche/m2c/>), et Dominique BOUST, chercheur au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC), laboratoire de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) (<http://www.irsn.fr/FR/Pages/Home.aspx>). Cette thèse a été financée par la Région Basse-Normandie et l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN). Une partie de cette thèse a été menée dans le cadre d'un projet du GIP Seine-Aval (<http://seine-aval.crihan.fr/web/>) : le projet RHAPSODIS (Reconstitution de l'Historique des Apports Particulaires à la Seine par l'Observation De leur Intégration Sédimentaire).

Université de Caen, Basse-Normandie



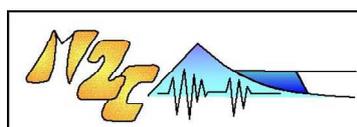
Ecole Doctorale SIMEM
(Structures, Information, Matière et Matériaux)



Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC)
Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN)



Laboratoire Morphodynamique Continentale et Côtière (M2C)
UMR CNRS 6143



Groupement d'Intérêt Public (GIP)
Seine-Aval



Région Basse-Normandie



Remerciements

Le travail que j'ai effectué pendant mes trois années de thèse a été réalisé avec l'aide et la collaboration de nombreuses personnes que je souhaite remercier.

Je tiens à adresser mes sincères remerciements à Patrick Lesueur et Dominique Boust, mes deux encadrants. Après m'avoir permis de réaliser cette thèse, ils ont suivi de près l'avancée de mes travaux au cours de ces 3 années. Ils ont été présents dans toutes les étapes de mon travail, du terrain à la rédaction en passant par l'interprétation des résultats. Leurs nombreux conseils, leurs savoirs respectifs m'ont permis d'avancer dans mon travail. Ils ont tous deux fait en sorte que cette thèse se réalise dans les meilleures conditions possibles.

Ce travail a débuté par le prélèvement des carottes sédimentaires. Je remercie toutes les personnes présentes lors de ces missions de terrain : Franck Lelong et Sylvain Haquin qui ont prélevé l'ensemble des carottes sédimentaires ; Julien Deloffre, Assia Kaci, Thierry Berthe et Fabienne Petit pour leur collaboration dans l'organisation ; Philippe Bonté qui nous a expliqué le fonctionnement du site de Bouafles où il avait déjà prospecté ; Bernadette Tessier pour la mission de prospection sismique ; Michel Simon aux commandes du Zodiac ; Carole Brunaud qui a photographié les carottes ; Coralie Thouroude, Marianne Rozet, Pauline Defenouillère pour l'échantillonnage des carottes ; et enfin Bastien Dieppois, Kenny Oberlé, Sanae El Janyani, Yann Ferret, Nicolas Fritier, Olivier Blanpain pour leur participation. Avant le début de ma thèse, des missions de carottages avaient déjà été effectuées : la première du projet RHAPSODIS (2008) et celle sur la Vasière Nord (2002), merci aux nombreuses personnes qui ont réalisé ces lourdes opérations de carottage.

Merci à Marianne Rozet qui s'est fortement impliquée dans le travail de laboratoire qui a suivi les campagnes de carottages. Elle m'a fait profiter de ses méthodes de travail et de son expérience. Elle m'a aidée à veiller à la bonne préservation de l'archive sédimentaire dont nous disposons maintenant.

Merci à Carole Brunaud et Coralie Thouroude pour m'avoir fait découvrir les différentes méthodes d'analyses sédimentaires, et m'avoir permis d'en réaliser. Leur nombreux conseils m'ont permis de progresser dans ces travaux d'analyse. Merci à Carole pour m'avoir aidée dans l'interprétation des analyses de cortèges argileux.

Merci à Luc Solier pour l'ensemble des analyses effectuées en spectrométrie γ , ainsi qu'à Sandrine Thomas et Catherine Cossonnet pour l'ensemble des analyses effectuées en spectrométrie α . Merci à tous les trois pour avoir pris le temps de m'expliquer la complexité de ces mesures.

Merci au Laboratoire d'analyse du SARM de Nancy pour la qualité des mesures qu'ils nous ont fournies.

Merci au laboratoire EPOC de Bordeaux pour les différentes radiographies effectuées sur les carottes sédimentaires, mais également pour leur accueil lors de notre venue.

De nombreuses personnes m'ont épaulée dans l'interprétation des résultats grâce à leurs

compétences respectives, ou m'ont transmis les informations nécessaires à l'avancée de mes travaux.

Merci à Philippe Laguionie pour m'avoir régulièrement apporté des conseils et pour les relectures qu'il a effectuées de plusieurs chapitres de ma thèse.

Merci à Laurent Garcia-Sanchez et Patrick Boyer, sans qui le travail sur la modélisation du transfert de ^{137}Cs du bassin versant vers l'estuaire de la Seine n'aurait été pas possible. Merci à Laurent pour ses corrections approfondies sur le chapitre VIII. Merci à Rodolpho Gurriaran pour m'avoir transmis les données nécessaires à ce travail de modélisation. Merci à Philippe Laguionie, Pierre Rouspard et Denis Maro pour avoir répondu à toutes mes questions sur les dépôts des particules.

Merci à Julien Deloffre qui s'est toujours intéressé à mon travail en me donnant son point de vue et ses conseils, en particulier sur l'interprétation des données de la Darse des Docks ou encore sur le phénomène de pompage tidal.

Merci aux personnes impliquées dans le projet RHAPSODIS pour leur collaboration et pour nos discussions : Dominique Boust, Patrick Lesueur, Thierry Berthe, Julien Deloffre, Assia Kaci, Fabienne Petit, Carole Dubrulle-Brunaud...

Merci au GIP Seine-Aval pour avoir permis ce projet. Et, en particulier, merci à Céline Dégremont toujours disponible pour me fournir les informations dont j'ai eu besoin.

Merci l'Agence de l'Eau Seine-Normandie et particulièrement à Rémi Dillies et Maïa Akopian pour l'enquête réalisée sur les rejets de phosphogypses.

Merci aux personnes de mon comité de suivi de thèse qui se sont réunies à deux occasions : Philippe Bonté, Michel Meybeck, Jean-Marie Mouchel, Bernadette Tessier. Les discussions issues de ces journées m'ont permis d'effectuer un bilan de mes travaux et d'avancer dans l'élaboration de ma thèse.

Merci au personnel du Grand Port Maritime de Rouen, au Service de la Navigation de la Seine et à quelques habitants de Bouafles de nous avoir fournis des informations historiques sur nos sites d'étude et/ou nous avoir permis de réaliser nos missions de terrain.

D'une façon plus générale, merci à l'ensemble du personnel des laboratoires M2C et LRC pour leurs accueils respectifs. Vous avez été nombreux à me donner des conseils tout au long de ma thèse. Merci aux nombreuses personnes qui veillent au bon fonctionnement de ces laboratoires, ce travail de thèse ne serait possible sans elles.

Enfin, merci aux différentes personnes qui ont accepté de juger mon travail : Michel Meybeck, Jörg Schäfer, Philippe Bonté, Robert Lafite et Jean-Marie Mouchel. Leurs lectures approfondies de mon manuscrit et leurs commentaires m'ont permis de prendre de la distance par rapport au travail accompli.

Merci à toutes les personnes qui m'ont soutenue pendant ces trois années, et qui, j'en suis sûre, se reconnaîtront. MERCI...

Table des matières

Liste des abréviations.....	7
-----------------------------	---

Introduction générale.....	11
----------------------------	----

CHAPITRE I : Cadre général de l'étude et stratégie adoptée.....	15
--	-----------

1. Introduction	17
2. Fonctionnement du bassin versant de la Seine.....	17
2.1. Descriptif du bassin versant de la Seine	17
2.2. Hydrologie du bassin versant de la Seine	20
2.3. Le transport des MES vers l'exutoire du bassin versant.....	21
3. Fonctionnement de l'estuaire de la Seine	21
3.1. Délimitation de l'estuaire de la Seine	21
3.2. Le phénomène de marée dans l'estuaire de la Seine.....	23
3.3. Les MES dans l'estuaire de la Seine	25
3.4. Aménagements de l'estuaire de la Seine	27
4. La contamination métallique et radioactive dans l'estuaire de la Seine	27
4.1. Un bassin versant soumis à de nombreuses contaminations.....	27
4.2. Pressions anthropiques exercées sur l'estuaire de la Seine.....	29
5. Transport des contaminants de leur source vers l'estuaire	30
5.1. Partition des contaminants entre phase dissoute et phase particulaire	30
5.2. Relation entre concentrations en contaminants et taille des particules	32
5.3. Parcours des contaminants dans l'environnement	32
6. Choix d'un élément de référence pour l'interprétation des résultats	33
7. Stratégie d'étude.....	36
7.1. Objectif de l'étude.....	36
7.2. Moyens mis en œuvre	37
7.3. Présentation sommaire des trois sites d'étude.....	38
8. Synthèse.....	38

CHAPITRE II : Enregistrement sédimentaire de la contamination dans l'estuaire fluvial de la Seine.....	41
---	-----------

1. Introduction	43
2. Choix du site.....	43
3. Description du site	44
3.1. Situation de la Darse des Docks	44
3.2. Historique de la Darse des Docks.....	44
3.3. Dragages effectués dans la Darse des Docks	46
4. Méthode et stratégie de carottage	47
5. Ouverture, description et échantillonnage des carottes	48
5.1. Ouverture des carottes	48
5.2. Premières descriptions des carottes : dessins et photographies	49
5.3. Investigations menées sur les carottes par radiographie aux rayons X (SCOPIX®)	50
6. Analyses sédimentaires : méthodes et résultats.....	51
6.1. Teneur en eau.....	51
6.2. Calcimétrie.....	52
6.3. Granulométrie.....	52
6.4. Identification et quantification des cortèges argileux.....	55
7. Analyses des éléments stables : méthodes et gammes de concentrations.....	57
7.1. Éléments analysés	57

7.2.	<i>Gamme des concentrations des éléments stables dans les sédiments prélevés</i>	57
8.	Analyse des radionucléides : méthodes et gammes d'activités	59
8.1.	<i>Éléments analysés</i>	59
8.2.	<i>Gammes d'activités observées</i>	60
9.	Datation des carottes	62
9.1.	<i>Raccordement des différentes carottes</i>	62
9.2.	<i>Méthodes de datation</i>	64
9.3.	<i>Obtention des profils datés</i>	70
10.	Dynamique sédimentaire du site	71
10.1.	<i>Rappels méthodologiques</i>	71
10.2.	<i>Evolution de la dynamique sédimentaire à court terme (inférieure à l'année)</i>	71
10.3.	<i>Evolution de la dynamique sédimentaire à long terme (quelques dizaines d'années)</i>	73
10.4.	<i>Conclusion partielle</i>	74
11.	Séries temporelles des éléments stables	74
11.1.	<i>Evolutions temporelles des concentrations en éléments majeurs</i>	74
11.2.	<i>Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des éléments-traces</i>	76
11.3.	<i>Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des terres rares</i>	79
12.	Evolution temporelle des activités des radionucléides	82
12.1.	<i>Radionucléides d'origine artificielle</i>	82
12.2.	<i>Radionucléides d'origine naturelle</i>	85
13.	Conclusion	87

CHAPITRE III : Enregistrement sédimentaire de la contamination en amont de l'estuaire de la Seine..... 89

1.	Introduction	91
2.	Choix du site de Bouafles	91
3.	Evolution du remplissage sédimentaire du site de Bouafles	92
4.	Prélèvement des carottes sédimentaires	94
5.	Ouverture, description et échantillonnage des carottes	96
6.	Caractéristiques des sédiments déposés dans le bras mort de Bouafles	98
6.1.	<i>Evolution de la distribution des paramètres granulométriques dans les sédiments de Bouafles</i>	98
6.2.	<i>Identification et quantification des cortèges argileux</i>	99
7.	Analyses des éléments stables : méthodes et gammes de concentrations	100
8.	Analyses des radionucléides : méthodes et gammes de concentrations	103
9.	Datation de la carotte	104
9.1.	<i>Mise en évidence de repères chronologiques</i>	104
9.2.	<i>Relations entre les débits et les hauteurs d'eau de la Seine</i>	106
9.3.	<i>Définition de l'altitude du seuil d'inondation du site</i>	107
9.4.	<i>Altitude du seuil d'inondation correspondant à chaque année</i>	110
9.5.	<i>Dénombrement des jours d'inondation du site chaque année</i>	111
9.6.	<i>Quantité de sédiment déposée chaque année</i>	111
9.7.	<i>Construction du modèle d'âge pour la carotte BOUA-01-2010</i>	113
9.8.	<i>Conclusion partielle</i>	115
10.	Reconstitution de l'historique du remplissage sédimentaire du site	115
11.	Séries temporelles des éléments stables	115
11.1.	<i>Evolutions temporelles des concentrations en éléments majeurs</i>	116
11.2.	<i>Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des éléments-traces</i>	117
11.3.	<i>Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des terres rares</i>	120
12.	Evolution temporelle des activités des radionucléides	122
12.1.	<i>Radionucléides d'origine artificielle</i>	122
12.2.	<i>Radionucléides d'origine naturelle</i>	126
13.	Conclusion	128

CHAPITRE IV : Enregistrement sédimentaire de la contamination à l'embouchure de la Seine..... 131

1.	Introduction	133
-----------	---------------------------	------------

2.	Choix du site.....	133
3.	Description de la Vasière Nord.....	134
3.1.	Localisation du site.....	134
3.2.	Evolution récente de l'embouchure de la Seine.....	134
3.3.	Dynamique du site.....	135
4.	Prélèvement et ouverture, description et échantillonnage de la carotte VKVN01.....	137
4.1.	Prélèvement et ouverture.....	137
4.2.	Description lithologique.....	137
4.3.	Echantillonnage.....	140
5.	Caractéristiques des sédiments déposés sur la Vasière Nord.....	140
5.1.	Evolution de la distribution des paramètres granulométriques dans les sédiments de la Vasière Nord.....	140
5.2.	Identification et quantification des minéraux argileux.....	141
6.	Analyses des éléments stables : gammes de concentrations.....	143
7.	Analyses des radionucléides.....	144
8.	Datation de la carotte étudiée.....	147
9.	Séries temporelles des éléments stables analysés dans les sédiments de la carotte VKVN01.....	149
9.1.	Evolution temporelle des concentrations en éléments majeurs.....	149
9.2.	Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des éléments-traces.....	151
9.3.	Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des terres rares.....	154
10.	Evolution temporelle des activités des radionucléides.....	155
10.1.	Radionucléides d'origine artificielle.....	156
10.2.	Radionucléides d'origine naturelle.....	161
11.	Conclusion.....	163

CHAPITRE V : Détermination des flux de contaminants particulières à partir des séries temporelles acquises sur les sites de la Darse des Docks et de Bouafles..... 165

1.	Introduction.....	167
2.	Données disponibles.....	167
3.	Comparaison des données des concentrations en éléments stables dans les MES et dans les sédiments carottés.....	169
3.1.	Méthodologie.....	169
3.2.	Présentation des séries temporelles des éléments stables.....	170
3.3.	Bilan de la comparaison des séries temporelles des concentrations des éléments stables dans les MES et dans les sédiments carottés.....	178
4.	Comparaison des activités de radionucléides dans les MES et dans les sédiments carottés.....	179
5.	Flux d'éléments stables et radioactifs dans la Seine fluviale et dans l'estuaire fluvial de la Seine... 180	180
5.1.	Méthodes de calcul des flux à partir des débits solides.....	180
5.2.	Flux élémentaires dans la Seine fluviale et dans l'estuaire fluvial de la Seine.....	181
6.	Conclusion.....	197

CHAPITRE VI : Détermination de la contribution respective des apports amont et intra-estuariens à la contamination de l'estuaire fluvial de la Seine..... 199

1.	Introduction.....	201
2.	Détermination de la contribution respective des apports amont et intra-estuariens à la contamination de l'estuaire fluvial de la Seine.....	201
2.1.	Méthodologie.....	201
2.2.	Comparaison des séries temporelles de concentration des éléments stables entre les sites de Bouafles et de la Darse des Docks.....	202
2.3.	Comparaison des séries temporelles des activités des radionucléides entre les sites de Bouafles et de la Darse des Docks.....	208
3.	Identification des principales sources des contaminants en provenance de l'amont.....	210
3.1.	Les éléments stables.....	211
3.2.	Les radionucléides.....	212
4.	Identification des principales sources intra-estuariennes de contaminants.....	215
4.1.	Introduction.....	215

4.2.	<i>L'industrie des phosphates.....</i>	215
4.3.	<i>Les rejets de phosphogypses dans l'estuaire de la Seine</i>	216
4.4.	<i>Autres contaminations intra-estuariennes</i>	218
4.5.	<i>Quantification de la contamination par les phosphogypses.....</i>	219
5.	Evaluation du temps de résidence des particules dans l'estuaire fluvial de la Seine	223
5.1.	<i>Éléments de comparaison entre les rejets de phosphogypses et les concentrations des éléments mesurés dans les carottes de la Darse des Docks.....</i>	223
5.2.	<i>Détermination du temps de résidence à partir des concentrations d'yttrium mesurées dans les carottes</i>	224
5.3.	<i>Bilan sur le temps de résidence des particules</i>	226
6.	Conclusion.....	227

CHAPITRE VII : Identification du pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine ; essai de quantification entre 1980 et 2000

1.	Introduction	231
2.	Caractérisation des apports marins à la Vasière Nord	231
2.1.	<i>Origine des radionucléides associés aux sédiments du site de la Vasière Nord.....</i>	231
2.2.	<i>Quantification des apports marins à la vasière Nord</i>	233
3.	Le pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine.....	234
3.1.	<i>Définition du pompage tidal</i>	234
3.2.	<i>Le pompage tidal dans quelques estuaires.....</i>	236
3.3.	<i>Le pompage tidal dans l'estuaire de la Seine</i>	236
4.	Identification et quantification du pompage tidal au niveau de Rouen entre 1980 et 2000 : méthode et résultats.....	237
4.1.	<i>Utilisation des radionucléides ^{239,240}Pu et ²⁴¹Am.....</i>	237
4.2.	<i>Evolution au cours du temps du rapport d'activité ^{239,240}Pu/²⁴¹Am en chaque site et comparaison inter-sites.....</i>	238
4.3.	<i>Quantification du phénomène de pompage tidal au cours du temps.....</i>	240
5.	Quel lien entre pompage tidal, débit et marée ?	243
5.1.	<i>Pompage tidal et débit de la Seine.....</i>	243
5.2.	<i>Pompage tidal / débit / marée.....</i>	245
6.	Conclusion.....	248

CHAPITRE VIII : Transfert des radionucléides issus de retombées atmosphériques vers l'estuaire de la Seine.....

1.	Introduction	251
1.1.	<i>Problématique générale.....</i>	251
1.2.	<i>Problématique particulière</i>	251
1.3.	<i>Question spécifique de ce chapitre</i>	252
2.	Matériel et méthodes	253
2.1.	<i>Les deux exutoires.....</i>	253
2.2.	<i>Activités mesurées dans les MES : $C_{MES}(t)$.....</i>	253
2.3.	<i>Densité de flux de dépôt atmosphérique $d(t)$.....</i>	254
2.4.	<i>Les trois options de modélisation de la fonction de transfert f.....</i>	256
2.5.	<i>Calcul du flux particulaire théorique $F_{BV}(t)$</i>	256
2.6.	<i>Activité théorique des MES ($C_{theo}(t)$).....</i>	256
2.7.	<i>Ajustement des paramètres de transfert.....</i>	257
3.	Résultats et discussion.....	257
3.1.	<i>Ajustements pour Bouafles (1960-1981).....</i>	257
3.2.	<i>Ajustements pour la Darse des Docks (1967-2008).....</i>	259
3.3.	<i>Validation croisée et comparaison des ajustements.....</i>	261
4.	Discussion	263
4.1.	<i>Incertitudes des données</i>	263
4.2.	<i>Limite des ajustements</i>	263
4.3.	<i>Paramètres de lessivage estimés.....</i>	264
5.	Conclusion.....	265

Conclusions générales et perspectives	267
Bibliographie	275
Liste des figures et tableaux	289
Annexes	305

Liste des abréviations

CMH	Cote Marine au Havre
FE	Facteur d'Enrichissement
GIP Seine-Aval	Groupement d'Intérêt Public Seine-Aval
GPMR	Grand Port Maritime de Rouen
GPMH	Grand Port Maritime du Havre
MES	Matières En Suspension
PIREN-Seine	Programme Interdisciplinaire de Recherche sur l'Environnement de la Seine
PK	Point Kilométrique
RHAPSODIS	Reconstitution de l'Historique des Apports Particulaires à la Seine par l'Observation De leur Intégration Sédimentaire

Liste des symboles des différents éléments mesurés :

Eléments stables :

Al	Aluminium	Ge	Germanium	Rb	Rubidium
Ag	Argent	Hf	Hafnium	Sb	Antimoine
As	Arsenic	Hg	Mercure	Si	Silicium
Ba	Baryum	Ho	Holmium	Sm	Samarium
Be	Béryllium	In	Indium	Sn	Etain
Bi	Bismuth	K	Potassium	Sr	Strontium
Ca	Calcium	La	Lanthane	Ta	Tantale
Cd	Cadmium	Li	Lithium	Tb	Terbium
Ce	Cérium	Lu	Lutétium	Th	Thorium
Co	Cobalt	Mg	Magnésium	Ti	Titane
Cr	Chrome	Mn	Manganèse	Tm	Thulium
Cs	Césium	Mo	Molybdène	U	Uranium
Cu	Cuivre	Na	Sodium	V	Vanadium
Dy	Dysprosium	Nb	Niobium	W	Tungstène
Er	Erbium	Nd	Néodyme	Y	Yttrium
Eu	Europium	Ni	Nickel	Yb	Ytterbium
Fe	Fer	P	Phosphore	Zn	Zinc
Ga	Gallium	Pb	Plomb	Zr	Zirconium
Gd	Gadolinium	Pr	Praséodyme		

Radioéléments :

Ac	Actinium	^{228}Ac
Am	Américium	^{241}Am
Bi	Bismuth	^{212}Bi , ^{214}Bi
Cm	Curium	^{244}Cm
Co	Cobalt	^{60}Co
Cs	Césium	^{137}Cs
K	Potassium	^{40}K
Pa	Protactinium	$^{234\text{m}}\text{Pa}$
Pb	Plomb	^{210}Pb , ^{212}Pb , ^{214}Pb
Pu	Plutonium	^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$
Ra	Radium	^{226}Ra
Th	Thorium	^{227}Th , ^{232}Th , ^{234}Th
Tl	Thallium	^{208}Tl
U	Uranium	^{235}U , ^{238}U

Introduction générale

Le bassin versant de la Seine est le siège de nombreuses activités anthropiques. Plusieurs grandes agglomérations, dont l'agglomération parisienne, y sont installées. L'agriculture y est très développée, ainsi que l'industrie. De nombreux contaminants sont issus de ces diverses activités, et migrent par lessivage vers les cours d'eau, puis le fleuve Seine, pour enfin arriver à l'estuaire.

L'estuaire de la Seine, comme beaucoup d'estuaires, présente des écosystèmes typiques et précieux, telles les zones humides et vasières. En plus de recevoir les contaminants issus du bassin versant, il est soumis à un fort trafic fluvial et comporte de nombreux pôles industriels, qui impactent ces écosystèmes. En réponse à cette forte pression, la qualité environnementale de l'estuaire s'est dégradée. Des mesures ont été prises pour réduire l'impact des activités humaines sur leur milieu, telle que les lois sur l'eau de 1964 ou 1992. Pour évaluer l'évolution de la contamination dans l'estuaire et l'efficacité des nouvelles réglementations mises progressivement en place, des mesures de contaminants ont été régulièrement effectuées sur les sédiments de surface ou sur les MES en différents endroits de l'estuaire à partir de 1980 (Cellule Anti-pollution de Rouen, A. Ficht). Cependant, ces mesures précieuses ne concernent qu'une part restreinte d'éléments contaminants. La présente étude vise à élargir l'historique déjà constitué :

- En s'intéressant à une période de temps plus longue (1960-2010),
- En analysant un plus grand nombre d'éléments métalliques, mais également des radionucléides.

L'estuaire de la Seine est un domaine très vaste, qui s'étend sur 160 km. Nous focaliserons notre intérêt sur sa partie amont, dite estuaire fluvial, où circulent des eaux douces soumises au débit fluvial et à la marée dynamique.

Le but de notre étude est de reconstituer l'historique de la contamination en métaux et en radionucléides dans l'estuaire fluvial de la Seine. Nous chercherons également à identifier les sources de ces contaminants et tenterons d'estimer leurs flux d'export (Figure 1).

Pour répondre à ces objectifs, il est nécessaire d'identifier les zones où la sédimentation est la plus continue possible dans l'estuaire fluvial. Les sédiments sont les seuls témoins de l'évolution de la contamination particulière qui a transité dans l'estuaire au cours du temps ; le prélèvement de carottes sédimentaires doit donc permettre d'accéder à cet historique. Pour identifier les sources de contaminants internes à l'estuaire fluvial, il est nécessaire de prélever également des carottes, en amont de l'estuaire et à son embouchure, afin d'effectuer une comparaison avec notre site principal. Toutes ces carottes seront échantillonnées, afin d'analyser les éléments métalliques et les radionucléides. Leur datation permettra d'interpréter les données et d'effectuer des comparaisons entre les sites.

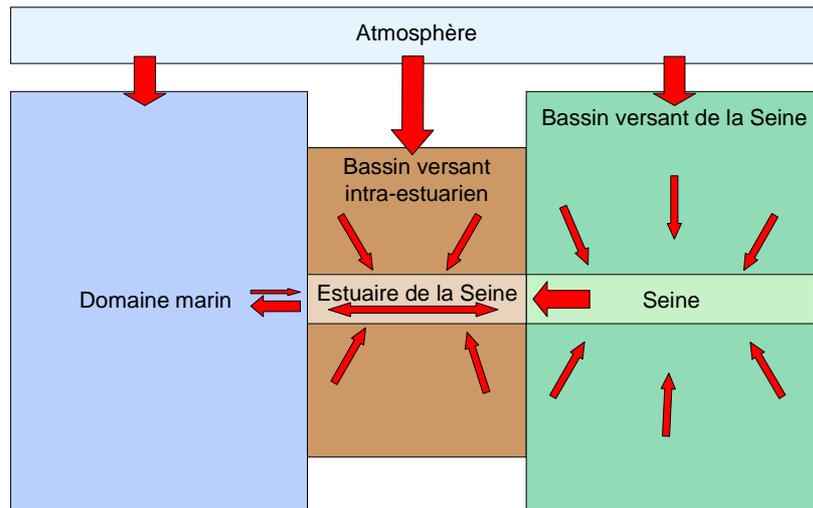


Figure 1 : Sources et transferts des contaminants vers l'estuaire de la Seine.
Les flèches représentent les transferts particuliers.

Ce mémoire est découpé en 8 chapitres. Le premier rappelle le fonctionnement hydrologique du bassin versant, du fleuve et de son estuaire, ainsi que le transfert des contaminants d'un compartiment à un autre. Il donne également les objectifs de l'étude et les moyens mis en œuvre pour y parvenir. Les chapitres II, III et IV présentent chacun, un des trois sites d'étude où des carottes sédimentaires ont été prélevées : estuaire amont, Seine fluviale, estuaire aval. Après datation des carottes, les résultats des analyses géochimiques sont présentés sous forme de séries temporelles de concentrations. Dans le chapitre V, une comparaison est menée entre les résultats d'analyses de quelques métaux obtenus sur les carottes sédimentaires prélevées et ceux obtenus sur des prélèvements de matières en suspension effectués depuis plus de 25 ans. Après cette comparaison, les flux de contaminants particuliers sont déterminés à partir des séries temporelles acquises sur deux des sites d'étude. Le chapitre VI a pour objectifs de distinguer les sources de contaminants originaires de l'amont ou du bassin intra-estuarien, puis de quantifier les apports respectifs de chaque source. Le chapitre VII est consacré à la question de la pénétration de particules marines jusqu'à l'estuaire fluvial de la Seine ; les radionucléides analysés dans les carottes sont ici utilisés comme traceurs de sédiments. Enfin, dans le chapitre VIII, nous proposons un modèle de transfert du ^{137}Cs d'origine atmosphérique, depuis son dépôt sur le bassin versant jusqu'à son arrivée dans les sédiments estuariens. Le modèle proposé doit permettre de prévoir la contamination de la Seine à partir de dépôts atmosphériques sur son bassin versant, en donnant les cinétiques de transfert.

Ce manuscrit vise donc à obtenir un historique de nombreux éléments métalliques et radionucléides ayant transité par la phase solide dans l'estuaire fluvial de la Seine, mais également de déterminer les différentes sources de ces contaminants et les flux correspondants.

CHAPITRE I :
Cadre général de l'étude
et stratégie adoptée

1. Introduction

Les estuaires, zones de transition entre continent et océan, sont souvent très anthropisés et par conséquent soumis à de fortes contaminations. Leur étude permet de rendre compte de l'état de la contamination de l'ensemble du bassin versant qui les alimente. Les études portant sur la contamination métallique dans les estuaires sont abondantes (e.g. Audry et al., 2007 ; Berry and Plater, 1997 ; Díaz-Asencio et al., 2009 ; Kelly et al., 1991 ; Rees et al., 1999 ; Zonta et al., 2005), tout comme celles concernant leur contamination par les radionucléides (Díaz-Asencio et al., 2009 ; Kelly et al., 1991 ; San Miguel et al., 2004).

Les estuaires sont des milieux complexes. Différents facteurs y contrôlent l'hydrologie du milieu, et donc les transports des matières en suspension (MES) qui y transitent. Il est important de connaître les processus de transport des MES, puisqu'elles constituent un vecteur important de la contamination.

Le bassin versant de la Seine a été, et est encore, le siège d'un grand nombre d'activités anthropiques : son estuaire est soumis à la contamination qui en découle. Ce premier chapitre vise à rappeler les principales caractéristiques et le fonctionnement général du bassin versant ; puis il décrit le fonctionnement hydrologique de l'estuaire de la Seine, et le mouvement des MES. Nous évoquons ensuite les études déjà menées sur l'estuaire de la Seine, visant à évaluer son niveau de contamination ; nous verrons enfin comment les contaminants sont transportés, avant d'exposer les objectifs de notre étude et les moyens mis en œuvre pour les atteindre.

2. Fonctionnement du bassin versant de la Seine

2.1. Descriptif du bassin versant de la Seine

2.1.1. Relief

Le bassin versant de la Seine, d'une superficie de 78 650 km², présente une faible altitude : le relief est en moyenne de 160 mètres (Figure 2). L'altitude maximale observée est de 900 mètres dans le Morvan ; cette altitude est ici exceptionnelle puisque le relief est rarement supérieur à 300 mètres sur l'ensemble du territoire. Ces altitudes modérées expliquent les faibles pentes des cours d'eau du bassin.



Figure 2 : Le bassin versant de la Seine ; en bleu, son réseau hydrographique ; du marron au vert, son relief (source : GIP Seine-Aval).

2.1.2. Géologie

Le bassin hydrologique de la Seine (bassin versant) est situé sur le Bassin de Paris, entité géologique plus étendue. La structure géologique du bassin parisien correspond à une série d'auréoles concentriques (Figure 3). Les structures les plus récentes (Tertiaire) apparaissent au centre du bassin et les plus anciennes (Trias) à sa périphérie, le Bassin parisien étant délimité par des massifs hercyniens plus anciens. Au centre du bassin de Paris, l'épaisseur totale des couches sédimentaires est maximale : elle atteint environ 3 kilomètres. Ces roches ont été déposées sur des zones de faible altitude, et subsidentes, régulièrement envahies par la mer lors des périodes de haut niveau marin. Les formations mésozoïques et cénozoïques sont le résultat de multiples phases de transgressions et régressions.

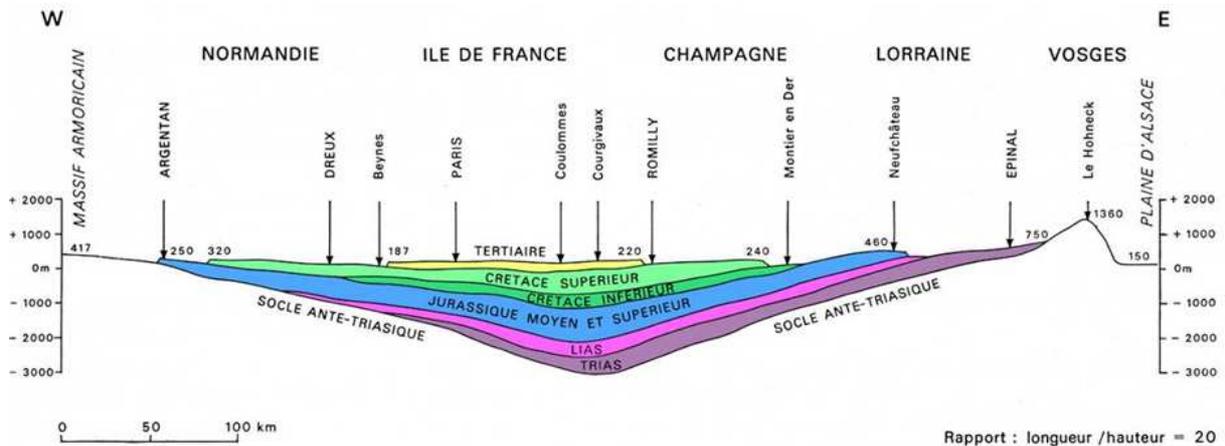


Figure 3 : Coupe schématique des formations sédimentaires dans le bassin de Paris (Cavelier and Pomerol, 1979).

C'est au sein de cet ensemble de terrains sédimentaires qu'est localisé l'essentiel des ressources en eau, sous forme de nappes phréatiques. Alimentées par les infiltrations d'une partie des précipitations, les nappes s'écoulent par les pores ou les fissures des roches et alimentent les rivières ou les sources. La composition crayeuse des roches sédimentaires du bassin de Paris influence fortement la composition des eaux des rivières par les échanges qui s'effectuent entre eaux souterraines et eaux de surface.

2.1.3. Occupation des sols

Le bassin versant de la Seine subit d'importantes pressions agricoles, industrielles et urbaines. Au niveau national, le bassin versant de la Seine représente :

- près de 15 % de la superficie du territoire ;
- 30 % de la population (soit 16 millions d'habitants) ;
- 50 % du trafic fluvial ;
- 40 % de l'activité économique.

L'agriculture occupe 60 000 km² sur le bassin de la Seine, soit 77 % du territoire (Figure 4), dont 60 % en terres labourables.

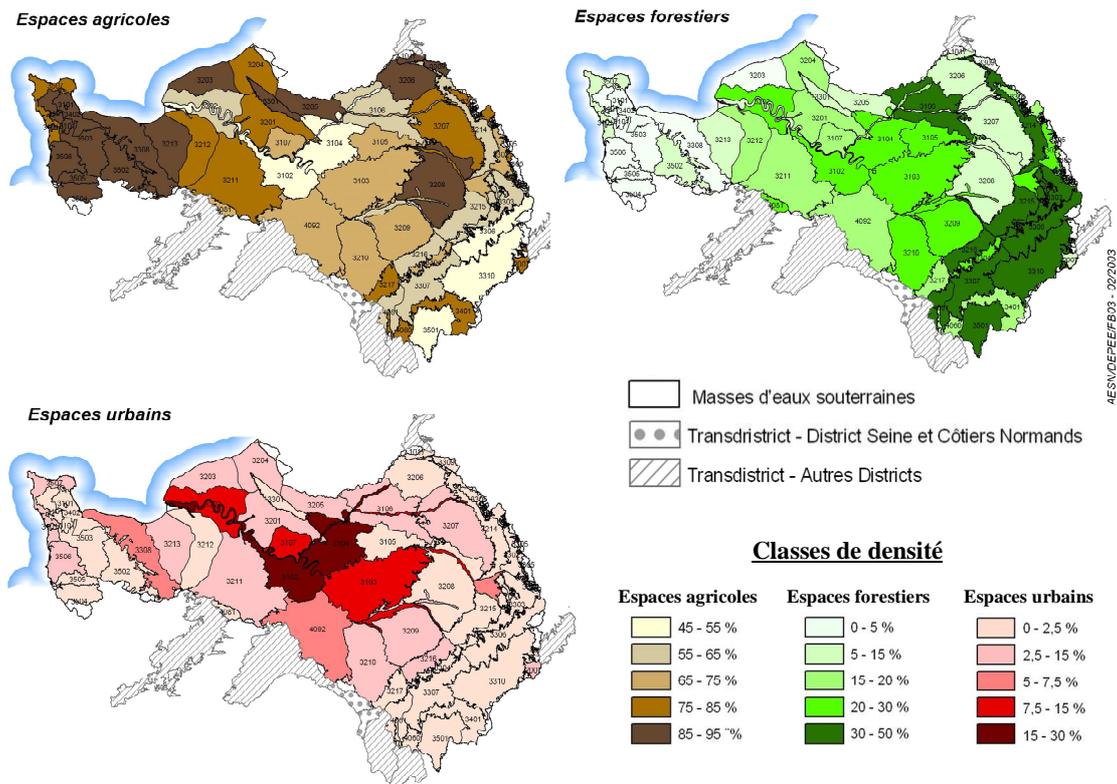


Figure 4 : Occupation des sols sur le bassin versant de la Seine (Source : AESN-DIREN, d'après Corine Land Cover et BD RHF). La zone représentée ici concerne la zone gérée par l'Agence de l'Eau Seine-Normandie ; cette zone est légèrement plus vaste que le bassin versant de la Seine puisqu'elle comprend en plus de nombreux petits bassins versants côtiers.

En amont de l'agglomération parisienne, l'agriculture intensive est particulièrement développée ; elle engendre une érosion des sols et une pollution diffuse, dégradant la qualité des cours d'eau. Les zones urbaines représentent 7 000 km² du bassin de la Seine, soit environ 9 % de sa superficie (Figure 4).

2.2. Hydrologie du bassin versant de la Seine

2.2.1. La Seine et ses affluents

La Seine prend sa source sur le plateau de Langres, à une altitude de 471 m. Elle parcourt 776 km depuis sa source jusqu'à la mer et compte de nombreux affluents, dont les principaux sont l'Aube, l'Yonne, la Marne et l'Oise (Figure 2). Le réseau hydrographique du bassin de la Seine est très découpé puisqu'il comprend 55 000 km de cours d'eau : la Seine atteint un ordre de Strahler de 8 dès sa confluence avec l'Oise (Strahler, 1957).

2.2.2. Cycle hydrologique de la Seine

Malgré la présence de nombreux barrages-réservoirs devant réguler les débits de la Seine, son régime hydrologique annuel, déterminé au barrage de Poses, est caractérisé par une période de basses eaux saisonnières (l'étiage) entre mai et octobre, et une période de hautes eaux saisonnières (dite crue) entre novembre et avril. Le débit annuel de la Seine est en moyenne de 450 m³.s⁻¹, mais diffère considérablement entre les périodes d'étiage et de crue, avec des minima autour de 100 m³.s⁻¹ en période d'étiage, et des maxima d'environ 2000 m³.s⁻¹ en période de crue (Figure 5). Les débits moyens mensuels varient de 200 m³.s⁻¹ en août à 700 m³.s⁻¹ en février. Les débits donnés ici sont issus de mesures effectuées au Barrage de Poses (PK 202 ; PK = Point kilométrique dont la référence est le pont Marie à Paris).

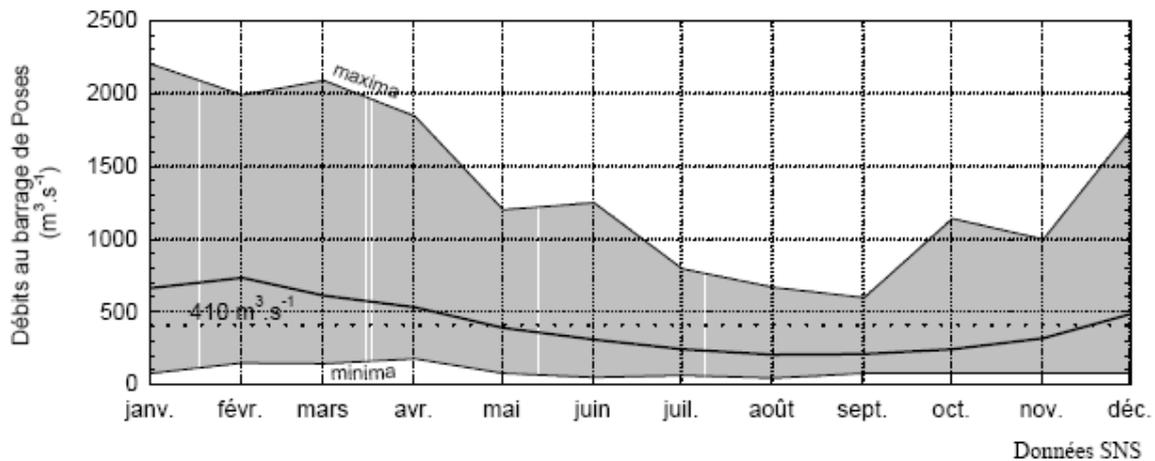


Figure 5 : Débits de la Seine au barrage de Poses (PK 202) entre 1941 et 1990 (Guézennec, 1999).
 — : débits mensuels moyens ; : débit annuel moyen ; courbes des débits minima et maxima.

En plus des cycles hydrologiques, Massei et al. (2010) ont montré que les débits de la Seine étaient également sous l'influence de la NAO (North Atlantic Oscillation), dont deux modes interannuels sont repérés à 5-9 ans et 17 ans.

2.3. Le transport des MES vers l'exutoire du bassin versant

La quantité de matières solides en suspension apportée par le bassin versant de la Seine à Poses est évaluée à quelque 600 000 tonnes par an en moyenne. Il a, en outre, été montré depuis les travaux du SAUM (Schéma d'Aptitude et d'Utilisation de la Mer) que ces apports sont fortement liés aux débits du fleuve (Avoine, 1985) : les chroniques enregistrées au barrage de Poses par le Service de Navigation de la Seine montrent des relations entre débits journaliers et concentrations pondérales de MES. Notons que la quantité de MES présente dans la colonne d'eau n'est pas liée directement au débit du fleuve, mais aux variations de vitesses des courants. Le débit étant un paramètre *a priori* plus simple à mesurer, il est plus couramment utilisé pour faire le lien entre l'hydrodynamisme de la rivière et la dynamique des MES. Les travaux de Guézennec (1999) ont ainsi mis en évidence que 75 % des apports annuels en MES pénètrent dans l'estuaire en période 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). En effet, s'appuyant sur différents suivis poussés de MES au niveau du barrage de Poses, Meybeck et al. (1998) mettent en évidence une augmentation rapide de la teneur en MES lors de montées des eaux, avec des concentrations comprises entre 100 et 300 mg.L⁻¹. En dehors de ces brèves périodes, les teneurs en MES sont 2 à 3 fois moins élevées à débit égal.

3. Fonctionnement de l'estuaire de la Seine

3.1. Délimitation de l'estuaire de la Seine

Dyer (1997) définit l'estuaire comme : "*une masse d'eau confinée ayant une connexion libre avec la mer ouverte, se prolongeant dans la rivière jusqu'à la limite de l'influence tidale, à l'intérieur de laquelle l'eau de mer est diluée d'une façon mesurable avec de l'eau douce issue du drainage du bassin versant*". A partir de cette définition, la limite de l'estuaire de la Seine avec la partie fluviale de la Seine est fixée au barrage de Poses (PK 202). La marée dynamique s'arrête artificiellement au pied de ce barrage construit en 1885 pour assurer l'écoulement régulier du débit et donc la navigabilité du bief amont.

Fairbridge (1980) précise cette première définition en subdivisant l'estuaire en trois entités : "*Un estuaire est un bras de mer pénétrant une vallée fluviale jusqu'à la limite amont de propagation de la marée, habituellement divisible en 3 secteurs* :

- un bas estuaire ou estuaire marin ;
- un estuaire moyen, sujet à d'importants mélanges entre eaux douces et eaux salées ;
- un haut estuaire ou estuaire fluvial, caractérisé par de l'eau douce mais sujet aux actions quotidiennes de la marée."

A l'intérieur de l'estuaire de la Seine, on a convenu de distinguer trois zones où les forçages hydrodynamiques diffèrent (Figure 6) :

- L'estuaire marin est très restreint : il s'étend à l'aval d'Honfleur (PK 365). Il est exclusivement composé d'eau de mer très faiblement diluée ; sa morphologie est semblable à un entonnoir ouvert vers la mer. Les sédiments de cette partie de l'estuaire sont d'abord soumis à l'influence de la marée, et à celle des vagues. Le marnage maximum est de 7,5 mètres au Havre.
- L'estuaire moyen s'étend de Vieux-Port (PK 324) à Honfleur (PK 356). Il est composé d'un mélange d'eau douce et d'eau salée. Cette partie de l'estuaire est une zone complexe où les caractéristiques des masses d'eau et les processus sont éminemment variables ; elle est caractérisée par le gradient de salinité et la présence du bouchon vaseux. Le marnage maximum dans cette partie de l'estuaire varie de 5,5 mètres à Vieux-Port à environ 7,2 mètres à Honfleur.
- L'estuaire fluvial, dit aussi estuaire amont, est compris entre Poses (PK 202) et Vieux-Port (PK 324). Il ne contient que de l'eau douce. Dans cette partie de l'estuaire, l'hydrodynamisme fluvial est dominant. Le marnage maximum est de 4,0 mètres à Rouen ; il tend vers la valeur la plus faible (30 cm) à Poses en passant par une valeur de 2,3 mètres à Elbeuf.

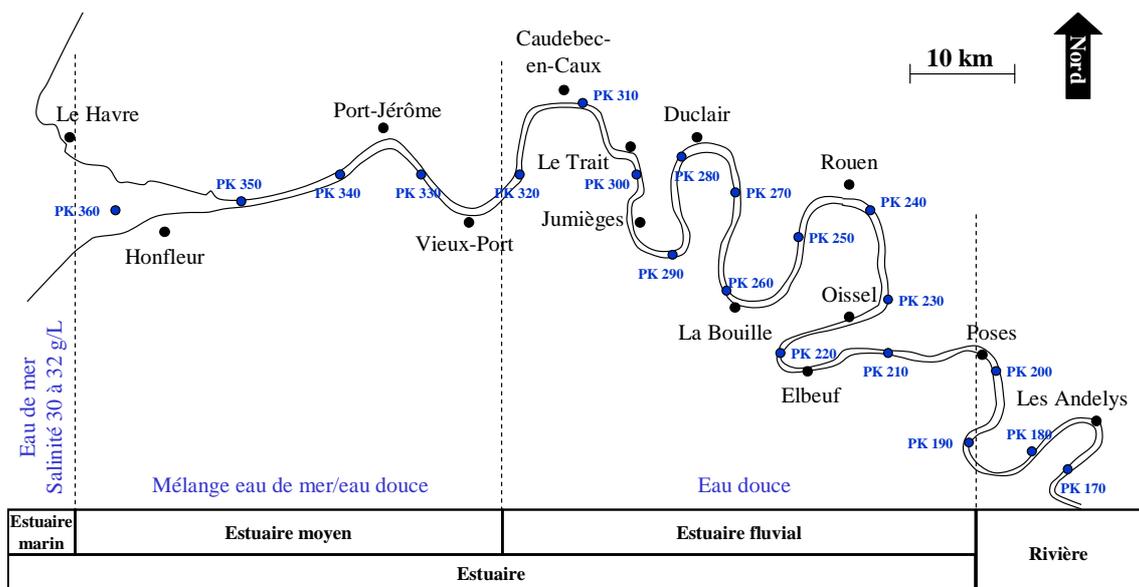


Figure 6 : Découpage de l'estuaire de la Seine en 3 zones : estuaire fluvial, estuaire moyen, estuaire marin ; d'après Guézennec (1999) et Deloffre et al. (2005).

Ces caractéristiques (salinité, marnage) varient au cours du temps en fonction de l'intensité des paramètres hydrologiques (débits, marées).

A l'estuaire de la Seine correspond un bassin versant dit « intra-estuarien », qui correspond au territoire de ses petits affluents, parmi lesquels les principaux sont en rive droite, l'Eure et la Risle. La superficie de ce bassin versant intra-estuarien est de 15 000 km² (représentation en gris sur la Figure 7).

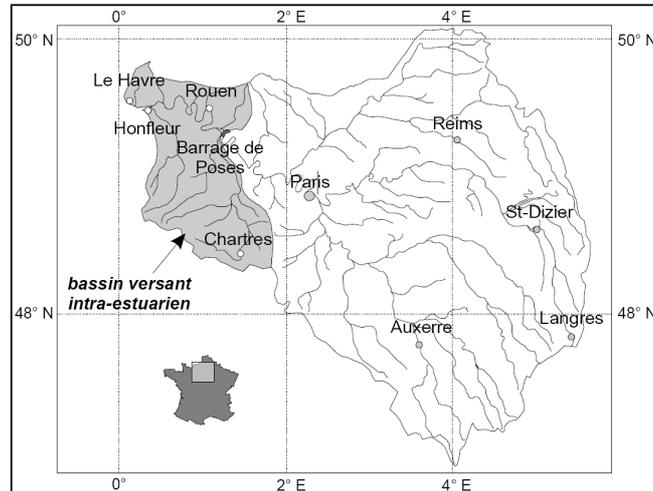


Figure 7 : Le bassin versant intra-estuarien de la Seine aval et le bassin versant global de la Seine avec son réseau hydrographique (Guézennec, 1999).

3.2. Le phénomène de marée dans l'estuaire de la Seine

L'estuaire de la Seine est un estuaire macrotidal, avec un marnage de l'ordre de 8 m à l'embouchure lors des plus forts coefficients (très grandes vives eaux). Du fait de la présence d'un grand nombre de marégraphes implantés tout au long de l'estuaire, la propagation de la marée y est bien connue.

La courbe de marée présente déjà une légère asymétrie au Port du Havre ; ce port est la référence pour les cotes bathymétriques (0 CMH = zéro des cartes marines au Havre) dans l'ensemble de l'estuaire. A mesure que l'onde de marée se propage vers l'amont, cette asymétrie s'accroît (Allen et al., 1980), du fait de la diminution de la hauteur d'eau (Dyer, 1995). La période de flot raccourcit et la période de jusant s'allonge, alors que le marnage diminue. A l'intérieur de l'estuaire, l'asymétrie de marée est intensifiée par une brusque montée du plan d'eau à partir de la basse mer locale : c'est le "coup de flot". Lors des périodes de vives eaux, cette montée est de l'ordre du mètre en environ 30 min. 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 8h.

Le stockage d'eau dans le profil longitudinal de l'estuaire est sous l'influence des différents cycles de marée, avec une oscillation complexe des volumes fonction du type de cycle (semi-diurne, semi-lunaire, lunaire) et du site de référence. Selon Guézennec (1999), les volumes oscillants dans l'estuaire amont diminuent ; ils sont encore plus faibles en période de 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 8). Cette singularité s'explique par un surplus d'eau apporté par le montant par rapport au volume d'eau évacué 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^e siècle (Guézennec, 1999), il se situe actuellement vers Heurteauville (\approx PK 300) depuis les aménagements du bas estuaire.

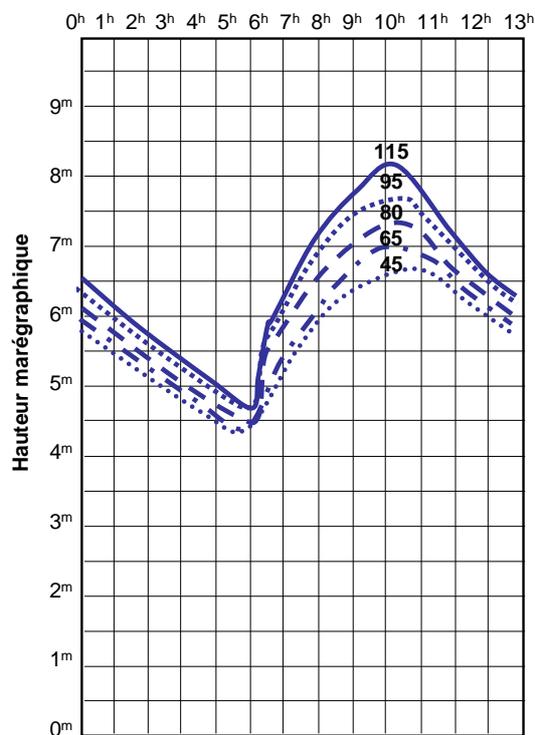


Figure 8 : Courbes de marée à Petit Couronne (PK 252) par différents coefficients. Heures et hauteurs référencées par rapport à la basse mer au Havre et au 0 des cartes marines du Havre (données GPMR, annuaire des marées 2010).

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 9), les vitesses maximales sont enregistrées lors du "coup de flot" peu après la basse mer, alors que les vitesses s'inversent et atteignent 50 à 60 cm.s^{-1} en quelques minutes ; au maximum de flot, elles atteignent 1 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 m.s^{-1} .

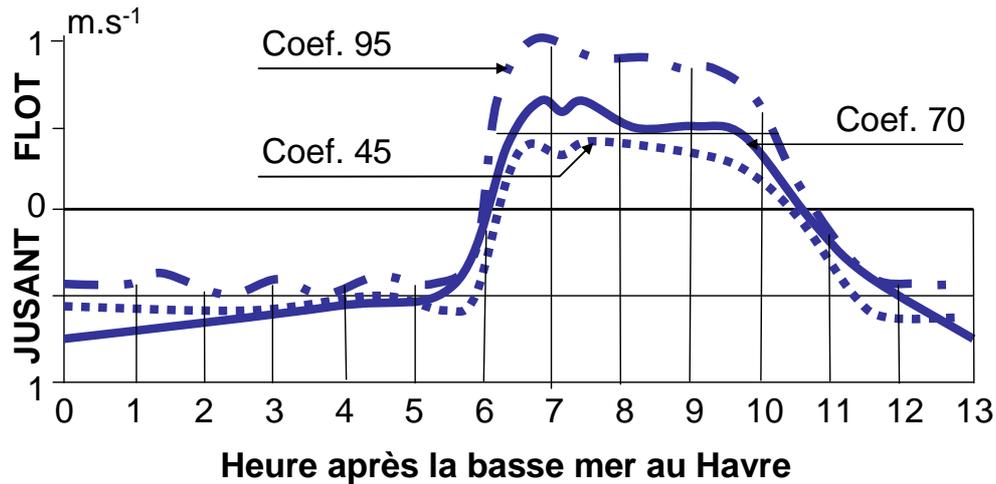


Figure 9 : Vitesses de courant dans le chenal de la Seine à Rouen (PK 245) par différents coefficients (données GPMR, annuaire des marées 2010).

Le débit du fleuve influence le niveau d'eau lié à la marée, de façon variable selon le lieu et le débit considérés (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 ; Grand Port Maritime de Rouen), 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 influencent les conditions de remplissage en eau et en MES des bassins portuaires de Rouen.

A noter que l'influence de la marée dans la remontée d'apports particuliers depuis l'estuaire aval a été démontrée grâce au marquage par les radionucléides originaires de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague (AREVA) par les travaux de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire de Cherbourg-Octeville (Boust et al., 2002 ; Dubrulle-Brunaud, 2007 ; Guézennec, 1999). Ce phénomène sera étudié au chapitre VII de ce mémoire.

3.3. Les MES dans l'estuaire de la Seine

Les transports des sédiments dans les sites soumis à la marée sont complexes. Les particules présentes dans les estuaires sont soumises à des cycles de sédimentation et d'érosion déterminés par les paramètres hydrologiques locaux (Van Leussen, 1991).

Dans la Seine, les concentrations pondérales moyennes des MES sont de l'ordre de $30 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$. Les MES se composent essentiellement de matériel particulaire fin silto-vaseux et organique (Guézennec et al., 1999).

Dans l'estuaire amont, la marée influence le transit fluvial des MES : (1) la teneur en MES dans la colonne d'eau est fonction des courants induits par les cycles semi-diurnes ; (2) durant un cycle

semi-lunaire, la turbidité est maximale en vive-eau et début de déchet ; (3) la dynamique de marée provoque l'écrêtement du signal de dépôt de crue (Dupont et al., 2001). La Figure 10 montre le caractère discontinu des apports de matériaux de l'estuaire fluvial vers l'estuaire marin, contrairement aux flux existants entre Seine fluviale et estuaire fluvial (Dupont et al., 2001 ; Lafite et al., 1998). Les différents cycles de marée ont une influence sur la distribution des MES ; la Figure 10 est schématique : elle représente uniquement l'influence du cycle semi-lunaire.

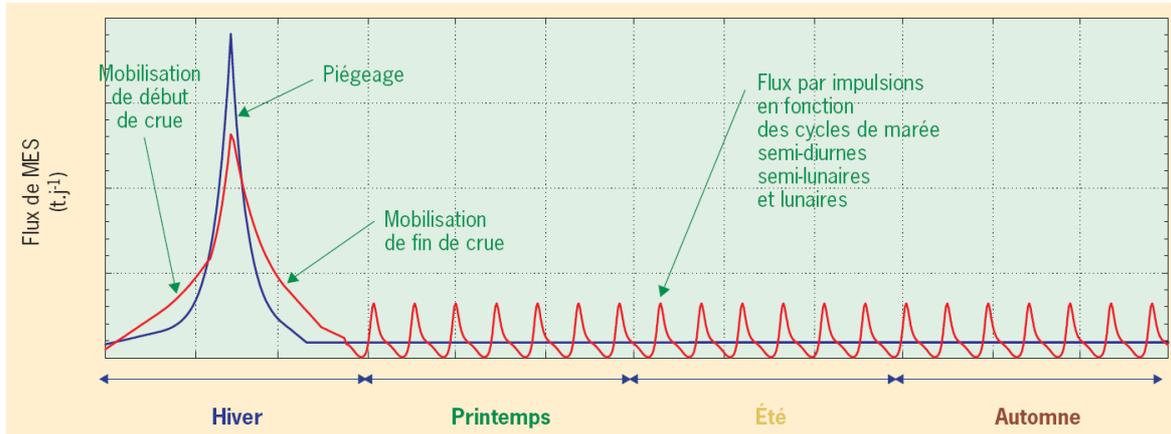


Figure 10 : Comparaison des évolutions annuelles des flux de matériel particulaire dans la partie fluviale (amont de Poses), en bleu, et dans l'estuaire amont de la Seine, en rouge (Dupont et al., 2001).

Dans l'estuaire amont, de 10 à 30 % du matériel arrivant en période de crue est stocké sur de nombreuses vasières, dont la plus étendue est celle d'Oissel ; ces sédiments seront remis en suspension en période d'étiage et continueront leur chemin vers l'aval (Deloffre, 2005). Globalement, le régime macrotidal de l'estuaire de la Seine engendre un retard du transit des particules issues du bassin versant (Guézennec, 1999).

La Figure 11 dresse un bilan quantitatif du transfert de MES entre l'estuaire fluvial et l'estuaire moyen. Sur les 600 000 tonnes de MES apportées en moyenne annuellement par le bassin versant, 200 000 tonnes sont extraites par dragages dans l'estuaire amont, alors qu'on évalue à 60 000 tonnes les apports du bassin versant intra-estuarien, et 60 000 tonnes supplémentaires la production biologique locale (Dupont et al., 2001).

Dans l'estuaire moyen de la Seine, on observe la présence d'un bouchon vaseux, caractéristique des estuaires macrotidaux. Cette structure turbide se forme par l'affrontement des masses d'eau fluviales et marines (Dupont et al., 2001) ; elle se déplace d'amont en aval suivant le débit du fleuve et le moment de la marée, flot ou jusant (Avoine, 1981 ; Guézennec et al., 1999). Le bouchon vaseux migre vers l'amont en période d'étiage, alors qu'il est expulsé en baie de Seine en période de crue.

La nature des sédiments superficiels de l'estuaire est fonction des saisons et de la météorologie (Lesourd, 2000). Les MES présentes dans l'estuaire de la Seine sont issues, à long terme (échelle pluriannuelle), de quatre sources différentes (Dubrulle-Brunaud, 2007) : marine, fluviale, fossile et

estuarienne (mélange). A court terme, le mélange particulaire est plus complexe, du fait de l'intervention de sources secondaires très diversifiées.

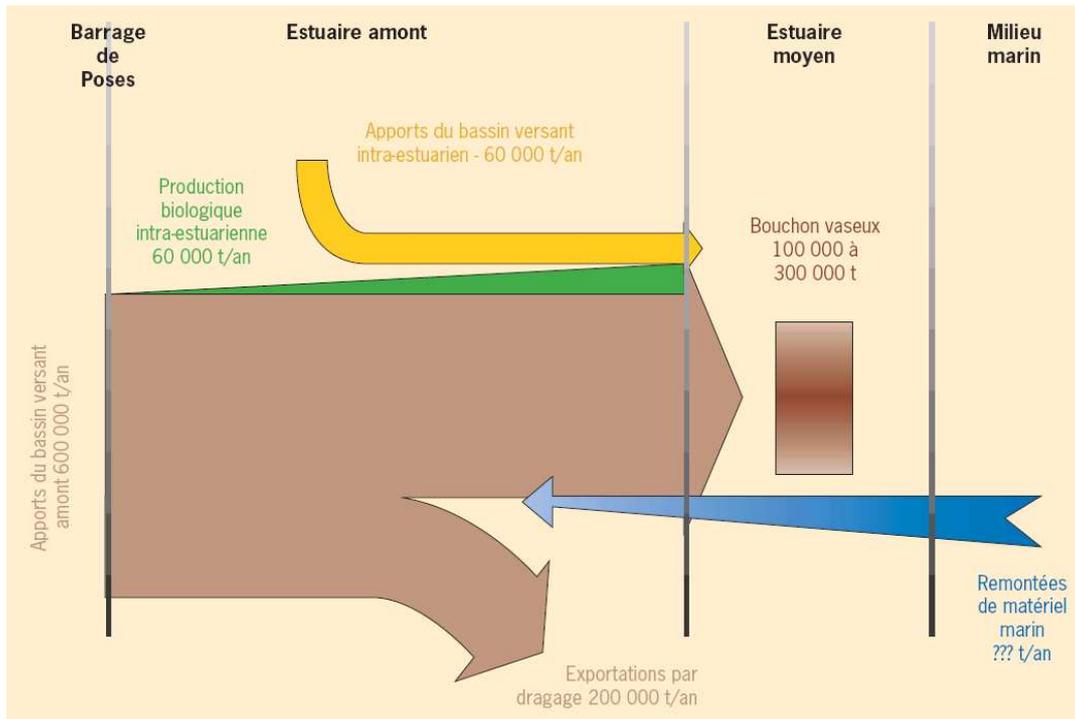


Figure 11 : Bilan quantitatif des échanges annuels entre estuaire amont et estuaire (Dupont et al., 2001).

Dans l'estuaire marin, le dépôt des sédiments est fortement lié aux cycles de marée ; on remarquera donc la présence de rythmites tidales dans les profils de sédiments (Deloffre et al., 2006 ; Lesourd, 2000).

3.4. Aménagements de l'estuaire de la Seine

Avant d'être soumis à ses multiples aménagements visant à fixer son cours, l'estuaire de la Seine était un milieu hautement dynamique dont la morphologie évoluait continuellement. Afin de faciliter la navigation, de grands travaux d'endiguement ont débuté en 1848 et se sont poursuivis durant tout le XX^e siècle (Foussard et al., 2010). Plus récemment et en plus des travaux de chenalisation, des aménagements hydrauliques ont été effectués afin de conserver de l'eau sur la Vasière Nord d'embouchure (Cuvilliez, 2008). Les aménagements progressifs du lit de la Seine ont eu une grande influence sur le dépôt des particules : ils ont notamment conduit à un déplacement vers l'aval du bouchon vaseux (Guézennec et al., 1999).

4. La contamination métallique et radioactive dans l'estuaire de la Seine

4.1. Un bassin versant soumis à de nombreuses contaminations

Comme nous l'avons vu, le bassin versant de la Seine accueille 40 % de l'activité économique du

pays et les différentes activités présentes sur ce territoire engendrent de nombreux types de contaminations touchant différents compartiments de l'environnement : atmosphère, sols et eaux de surface (Figure 12). Du fait des échanges entre ces compartiments, les substances polluantes peuvent rejoindre de façon diffuse ou directe le fleuve Seine. Les sols peuvent stocker les contaminants pendant plusieurs années ou plusieurs décennies, la durée de ce stockage dépendant notamment de la solubilité du contaminant, de la nature et de l'érodabilité du sol.

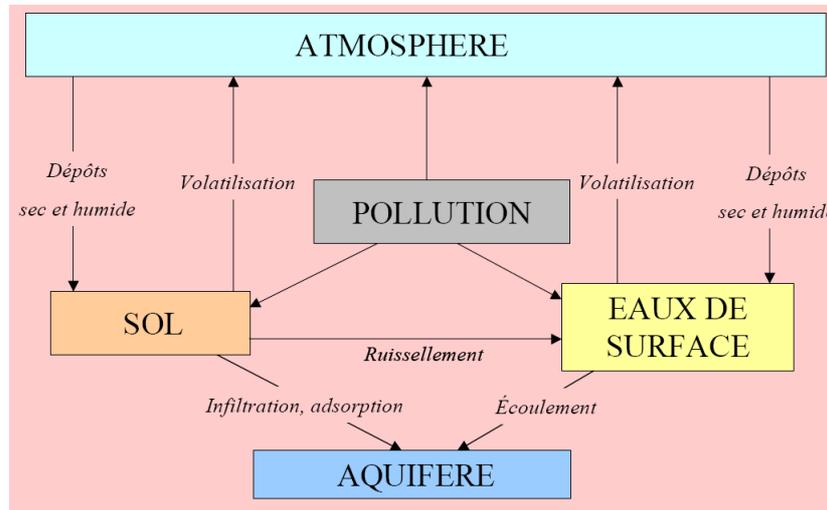


Figure 12 : Le cycle des micropolluants est intimement lié à celui de l'eau (Motelay-Massei, 2003).

L'agriculture engendre une pollution par les nitrates, par les phosphates et par les pesticides (herbicides, fongicides et insecticides) (Meybeck et al., 1998). Certains composés aujourd'hui interdits, sont encore présents dans les sols du bassin versant de la Seine, et continuent d'être diffusés dans les cours d'eau en connexion avec la Seine. Il est à noter que les engrais utilisés en agriculture peuvent contenir des métaux.

Les activités industrielles du bassin de Paris sont très variées : agro-alimentaire, chimie et parachimie, traitement de surface, papeterie, ... Elles engendrent des pollutions très diverses : métaux, composés organiques, substances toxiques... Le registre français des Emissions Polluantes inventorie toutes les industries et leurs rejets depuis 2003 ; ces données sont en accès libre sur le site internet : <http://www.irep.ecologie.gouv.fr/IREP/>. Cet inventaire permet de se rendre compte de l'importance de l'activité industrielle sur le bassin versant de la Seine, du type d'activité et des contaminants liés à ces activités et libérés dans les milieux.

La forte densité de population présente sur le bassin versant est également à l'origine d'autres pollutions : les transports (libération de HAP), les déchets ménagers, le ruissellement sur les surfaces urbanisées...

Les activités potentiellement polluantes ont fait l'objet de nombreuses études dans le cadre du programme PIREN-Seine. Certains contaminants peuvent rester stockés plus ou moins longtemps à l'intérieur du bassin, à court terme (pour les rejets directs) ou à plus long terme (pour les pollutions diffuses). Les contaminants arrivent à l'exutoire du bassin de la Seine, soit le barrage de Poses, pour

être introduits finalement dans l'estuaire de la Seine. Les sources de contaminants (métaux et radionucléides) issus de ces activités seront décrites au chapitre VI de ce mémoire.

4.2. Pressions anthropiques exercées sur l'estuaire de la Seine

L'estuaire de la Seine, en plus de recevoir la contamination issue du bassin versant en amont de Poses, est soumis à la contamination du bassin versant intra-estuarien. Les agglomérations de Rouen et du Havre sont aussi le siège d'activités industrielles intenses, et ont été des sources de rejets peu contrôlés lors de la période postérieure à la seconde guerre mondiale, notamment durant les années 1960 et 1970, des effluents étant déversés directement dans l'estuaire. A cette source de contamination sont venues s'ajouter celles des eaux usées urbaines des villes riveraines de la Seine, et celles diffuses des épandages agricoles (Chaïb and Thorez, 2001).

Suite à ces constats, de nombreuses études ont été menées (1) dans le cadre du Schéma d'Aptitude et d'Utilisation de la Mer (SAUM) de l'estuaire de la Seine (Boust, 1981) ; (2) dans le cadre du programme de recherche scientifique Seine-Aval mis en place en 1995, visant à évaluer la contamination dans l'estuaire de la Seine, ainsi que ses effets sur l'environnement naturel. Parmi ces projets, on peut citer, comme exemples les plus récents : le projet FLASH sur le devenir des antibiotiques, les flux de gènes et de bactéries antibiorésistantes dans les systèmes hydriques de surface ; le projet ISOMET sur l'utilisation des isotopes stables des métaux pour retracer l'historique de la contamination et ses origines ; le projet TOXSEINE visant à identifier les composés toxiques à risque dans l'estuaire de Seine. En ce qui concerne les métaux, les études effectuées dans le cadre des projets Seine-Aval ont essentiellement porté sur les éléments suivants : Ag, Cd, Co, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, V, Zn, dans l'eau, le sédiment, et le biote. Ces études ont montré une contamination maximale entre 1950 et 1970 ; il semble que les teneurs en métaux aient globalement diminué entre 1970 et 1980, pour se stabiliser ensuite. Après avoir atteint des niveaux très élevés, la contamination métallique est maintenant en constante diminution en Seine.

Les radionucléides ont fait l'objet de rares études avant le début du projet MEDIUM (Étude du MÉlange et de DIspersion des sédiments par l'Utilisation de Marqueurs particuliers dans l'estuaire de la Seine) qui a eu pour objectif : (1) de qualifier du point de vue minéralogique et géochimique les particules fines circulant et se déposant dans l'ensemble du système Seine-Aval (Poses-Baie de Seine) ; (2) de quantifier les principales sources de particules au cours de la période d'étude. Ce projet a donc permis par un échantillonnage des sédiments de surface, d'évaluer la contamination en radionucléides et en contaminants métalliques de l'ensemble des sédiments de surface de l'estuaire de la Seine. Dans ce projet, une carotte prélevée en Baie de Seine a permis de reconstituer un historique de la contamination en radionucléides et en métaux. De même Cundy et al. (2005) se sont intéressés à l'évolution de la contamination métallique du ^{137}Cs et du ^{210}Pb au cours du temps, mais cette fois à l'aval de l'estuaire (Vasière Nord). Ces études portent sur l'embouchure dont la dynamique est très complexe et les mélanges sédimentaires sont tels qu'il est difficile de dater les évènements et de

reconstituer un historique précis de la contamination dans cette partie de l'estuaire. Dans la poursuite du projet MEDIUM, le projet RHAPSODIS (Reconstitution de l'Historique des Apports Particulaires à la Seine par l'Observation De leur Intégration Sédimentaire), dont une partie des résultats est présentée dans ce mémoire, a permis, entre autres, de 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.

5. Transport des contaminants de leur source vers l'estuaire

5.1. Partition des contaminants entre phase dissoute et phase particulaire

Les flux particulaire et dissous de contaminants sont obtenus en multipliant la concentration particulaire (C_p) ou dissoute (C_d), par le débit de MES (Q_s) ou le débit liquide (Q_l) (Jambon and Thomas, 2009). En ce qui concerne les éléments majeurs, la Figure 13 donne les grandes tendances de la partition dissous/particulaire (soit $C_p.Q_s/C_d.Q_l$) : Al et Fe sont présents en proportion négligeable dans la phase dissoute ; Si, K et P sont largement majoritaires dans la phase particulaire ; Mg et N sont également répartis entre phase particulaire et phase dissoute, tandis que les autres éléments majeurs, Na, Ca, et C sont majoritaires dans la phase dissoute.

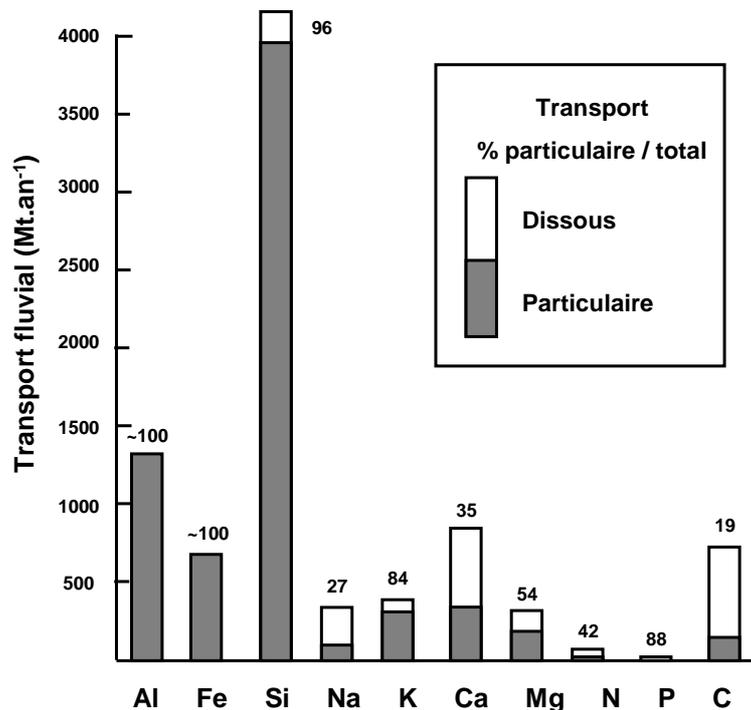


Figure 13 : Comparaison des flux particulaires et dissous (Jambon and Thomas, 2009).

Notons que le Mn, classé ici dans les éléments-traces, sera dans la suite de ce manuscrit classé dans les éléments majeurs.

En ce qui concerne les éléments-traces, tous sont largement majoritaires dans la phase particulaire (Figure 14) : les éléments sont 10^3 à 10^7 fois plus concentrés dans les MES que dans la phase dissoute. En effectuant des analyses sur cette phase, nous accédons à la majeure partie de l'information concernant ces éléments. Leur concentration dans les MES des fleuves non soumis à des apports anthropiques est semblable à celle de la croûte terrestre.

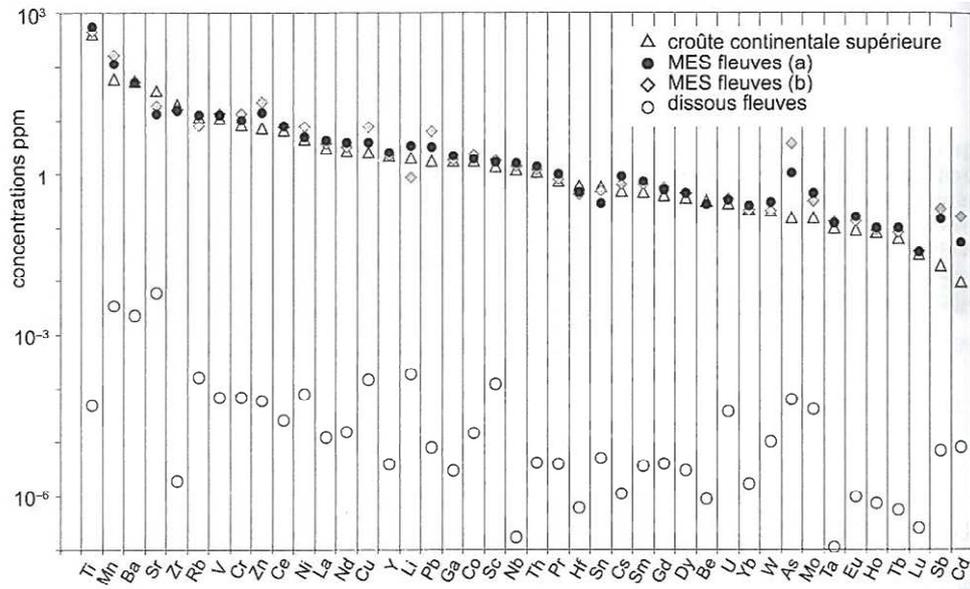


Figure 14 : Concentration des éléments-traces dans la croûte terrestre et dans les fleuves (MES et fraction dissoute). Les concentrations des métaux nobles (Au, Pt, etc. non illustrées) dans la croûte sont inférieures à 0,1 ppm. Données de McLennan, 2001 (croûte), Vier et al., 2009 (MES, b) et Gaillard et, 2003 (dissous). Les MES (a) sont une estimation pour les grands fleuves présumés non pollués (Jambon and Thomas, 2009).

Le coefficient de distribution K_D est un paramètre sans dimension qui peut être défini par la relation suivante : $K_D = C_p / C_D$, où C_p et C_D sont respectivement les concentrations particulaires et les concentrations dissoutes d'un élément dans l'eau. Chaque élément chimique possède un K_D qui lui est propre. Quand un polluant est apporté dans un fleuve, celui-ci se redistribue entre la fraction labile, adsorbée sur les particules sédimentaires, et la solution dans le but de restaurer le même équilibre entre ces phases, soit le même K_D (Jambon and Thomas, 2009). Le K_D permet donc de prévoir dans quelle phase, on devrait trouver un polluant.

Plus le K_D est élevé, plus le transport des éléments par les MES fluviales est important. Le transport particulaire augmente également avec la concentration en MES (C_{MES} en $kg.L^{-1}$), puisque $T_p/T_T = (K_D C_{MES}) / (1 + K_D C_{MES})$. La concentration moyenne des MES en Seine est de $30 mg.L^{-1}$, donc largement inférieure à la moyenne mondiale ; cependant, lors des crues, la concentration en MES augmente, elle peut ponctuellement approcher les $300 mg.L^{-1}$ et dépasser $1 g.L^{-1}$ dans le bouchon vaseux. Pour une concentration en MES de $350 mg.L^{-1}$, seuls le Br et le Sr ne sont pas majoritairement transportés par la phase solide (Figure 15). Pour une concentration en MES de $10 mg.L^{-1}$ (étiage), les contaminants dont le transport par la phase dissoute dépasse 50 % sont plus nombreux : Br, Sr, Cd, U, Mo, Sc, As, Li, Sb, Ba, Cu, W, Mn, Sn, Ni.

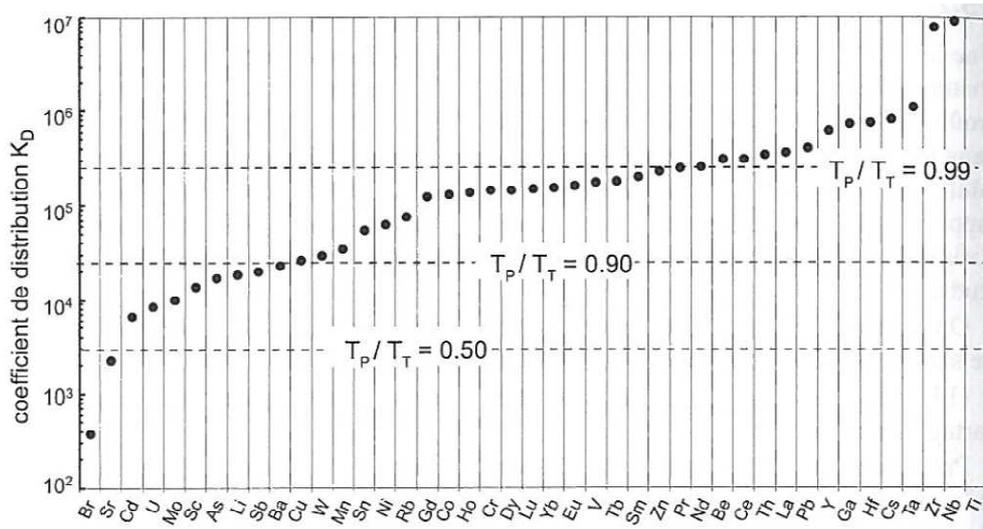


Figure 15 : Distribution des éléments-traces dans les fleuves entre les MES et la solution (K_D) ; T_P/T_T = transport particulaire/transport total particulaire + dissous, calculé avec les moyennes mondiales ($Q_s/Q_l = 350 \text{ mg.L}^{-1}$, soit $3,5 \cdot 10^{-4}$) ; (Jambon and Thomas, 2009).

Globalement, la part d'éléments transportée par la phase solide est majoritaire (Jambon and Thomas, 2009). Dans les lieux de stockage des particules sédimentaires (vasières, bras morts, ...), les apports en sédiments sont plus importants en période de crue ; ces zones sont donc représentatives d'un transport particulaire dominant des différents éléments-traces.

5.2. Relation entre concentrations en contaminants et taille des particules

Grâce à leur structure cristalline, les minéraux argileux peuvent plus facilement héberger les éléments-traces : leur grande surface spécifique facilite l'adsorption des éléments dissous. Les minéraux argileux constituent donc le vecteur essentiel des éléments-traces du continent vers l'océan et la concentration des divers éléments-traces est donc plus forte dans les sédiments les plus fins (Jambon and Thomas, 2009 ; Thorne and Nickless, 1981). Lorsque l'on prélève des sédiments présentant des caractéristiques granulométriques différentes, leur teneur brute en métaux n'est pas directement comparable. Il est d'usage d'effectuer une normalisation des concentrations pour pouvoir les confronter (Avoine et al., 1986 ; Boust et al., 1981). Cette normalisation est effectuée à partir d'un élément dont la concentration est fonction de la granulométrie du sédiment : il peut s'agir d'Al, Fe, Li... Dans ce mémoire, les normalisations des teneurs en métaux sont effectuées à partir de l'Al. L'Al est un marqueur des aluminosilicates (les argiles y sont majoritaires dans les sédiments de la Seine) : en normalisant à l'Al, on s'affranchit donc des variations liées à la granulométrie. La normalisation à l'Al consiste à diviser la teneur d'un sédiment en un élément n par la teneur en Al de ce même sédiment.

5.3. Parcours des contaminants dans l'environnement

La matière solide à laquelle est attachée un grand nombre de contaminants est transportée dans

l'environnement par différents vecteurs (Figure 16). Les particules présentes à la surface du bassin versant peuvent provenir (1) de l'atmosphère et comporter des contaminants libérés dans ce compartiment, (2) en plus grande proportion, de l'érosion des roches présentes sur le bassin versant. Par ruissellement, ces particules peuvent rejoindre le fleuve, puis l'estuaire et enfin l'océan.

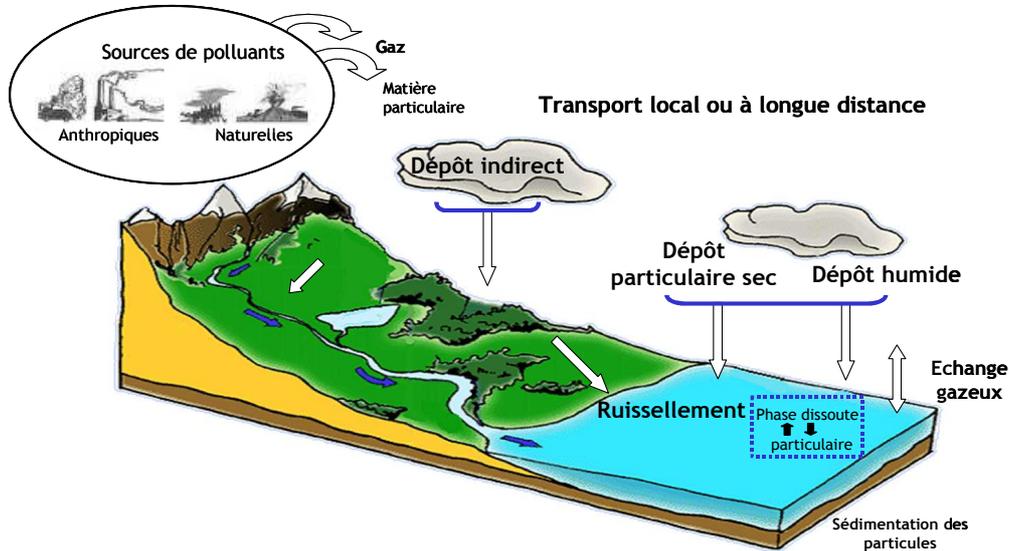


Figure 16 : Cycle biogéochimique des contaminants atmosphériques dans l'environnement (Motelay-Massei, 2003).

Sur un bassin versant, il existe de multiples puits de matières particulaires, mais également diverses zones de stockages. Par exemple, un champ cultivé peut être une source de particules lors de fortes averses provoquant l'érosion des sols, mais ces mêmes particules peuvent être retenues par une haie quelques dizaines de mètres plus loin (Meybeck et al., 1998). Les activités humaines peuvent modifier le transport des particules par la création de réservoirs, le dragage des dépôts sédimentaires dans le fleuve, les rejets d'eaux usées...

Le transport des particules depuis leurs sources jusqu'à l'exutoire du bassin versant est complexe, le stockage du matériel dans différents compartiments de l'environnement étant de durées très variables.

6. Choix d'un élément de référence pour l'interprétation des résultats

Dans le travail présenté dans ce mémoire, les sédiments prélevés dans la Seine ont fait l'objet de nombreuses analyses d'éléments stables. Les résultats de ces analyses, après avoir été normalisés à l'Al (Paragraphe 5.2), nécessitent d'être comparés à la composition d'un matériel de référence dans le but d'évaluer le niveau de contamination des sédiments par rapport à ce sédiment témoin. En utilisant cette référence, il est possible de calculer un Facteur d'Enrichissement (FE) de la façon suivante :

$$FE = \frac{(E/Al)_{\text{échantillon}}}{(E/Al)_{\text{référence}}} \quad \text{Équation 1}$$

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

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

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

Un élément non enrichi dans l'échantillon par rapport à la référence choisie présentera un FE proche de 1 ; plus le FE d'un élément est élevé, et plus il est en excès par rapport à celle-ci. Cette référence doit permettre d'évaluer l'ampleur de la contamination des sédiments, si contamination il y a. Le choix de cette référence est donc d'une grande importance et mérite réflexion.

Dans le cas de notre étude, nous avons d'abord retenu plusieurs références possibles :

- La composition des shales. La notion de "shales" est un concept permettant d'accéder à la composition chimique moyenne théorique d'un matériel fin susceptible d'être exporté vers le domaine marin. Les shales représentent des roches sédimentaires litées à grain très fin, en général argileuses ou marneuses. (par exemple Li (2000), dont les valeurs sont en grande partie issues de Turekian et Wedepohl (1961)).
- La moyenne des concentrations des MES de différents grands fleuves réputés non pollués (Jambon and Thomas, 2009).
- Deux échantillons anciens de natures différentes issus de la basse vallée de la Seine. L'un provient de Tourville-la-Rivière (PK 230), daté de $8\,985 \pm 35$ ans BP (Holocène). Le second provient du Marais Vernier (PK 335), daté de $14\,700 \pm 70$ ans BP (Pléistocène Supérieur). Nous avons soumis ces deux échantillons aux mêmes analyses d'éléments stables (Annexe D) que les sédiments carottés présentés dans la suite de ce rapport.
- Le niveau de fond géochimique du bassin de la Seine qui représente les teneurs naturelles en différents éléments des sédiments. Elles dépendent de l'assemblage minéralogique des échantillons prélevés (sols, matrice carbonatée, matrice argileuse, minéraux lourds). (Thévenot et al., 2002).

Il existe d'autres références telles que les sédiments pré-industriels de Tourville-la-Rivière (Avoine et al., 1986), mais cette référence est semblable aux échantillons anciens de la basse vallée de la Seine cités auparavant.

Les analyses disponibles sur chacune des références évoquées précédemment sont répertoriées dans le Tableau 1.

Le niveau de fond général du bassin versant est établi à partir d'une combinaison de plusieurs approches dont l'analyse de deux échantillons préhistoriques : l'un à Paris Bercy, à l'aval rive droite de la confluence Marne-Seine, l'autre pris dans l'estuaire (Thévenot et al., 2002). Cette référence est donc bien représentative des teneurs naturelles en métaux que l'on peut trouver au niveau du bassin de la Seine en ce qui concerne la phase particulière. Malheureusement, cette référence concerne uniquement 20 éléments analysés ; il ne sera donc pas possible d'effectuer une comparaison

systématique avec tous les éléments mesurés : pour cette raison cette référence n'a pas été choisie pour effectuer les calculs des FE.

Tableau 1 : Teneurs en éléments stables des différentes références mentionnées dans le texte.

	Si %	Al %	Fe %	Mn %	Mg %	Ca %	Na %	K %	Ti %	P %
Shales	27,5	8,8	4,7	0,085	1,5	1,6	0,59	2,66	0,46	0,07
MES - Fleuves non pollués	26,4	9,5	5,2	0,117	1,17	2,6	0,6	2,03	0,58	
Vallée de Seine - Marais Vernier	25,3	3,7	1,8	0,02	0,76	10,1	0,50	1,26	0,30	0,11
Vallée de Seine - Tourville la Rivière	2,6	1,0	0,7	0,02	0,24	34,0	0,03	0,18	0,04	0,13
Fond général BV Seine - Thevenot et al., 2002		3,3	1,5				1,7			0,065

	Ag ppm	As ppm	Ba ppm	Be ppm	Bi ppm	Cd ppm	Co ppm	Cr ppm	Cs ppm	Cu ppm	Ga ppm	Ge ppm	Hf ppm	In ppm	Li ppm	Mo ppm
Shales	0,1	13	580	3	0,43	0,3	19	90	5	45	19	1,6	5	0,1	66	2,6
MES - Fleuves non pollués		10,5	525		0,36	0,53	19	100	8,8	39	21,6		4,4		34	4,2
Vallée de Seine - Marais Vernier	< 0,1	7,5	200,3	1,49	0,20	0,20	5,6	65,3	5,9	< L.D.	9,0	1,2	5,7	< L.D.	28,6	< L.D.
Vallée de Seine - Tourville la Rivière	< 0,1	< L.D.	83,9	0,73	< L.D.	0,11	2,4	14,7	3,6	< L.D.	2,7	0,3	0,4	< L.D.	10,0	< L.D.
Fond général BV Seine - Thevenot et al., 2002	2,70	6,0	210,0	1,20		0,22	7,0	40,0		15,00					38,0	

	Nb ppm	Ni ppm	Pb ppm	Rb ppm	Sb ppm	Sn ppm	Sr ppm	Ta ppm	Th ppm	U ppm	V ppm	W ppm	Y ppm	Zn ppm	Zr ppm
Shales	11	50	20	140	1,5	3	170	1	12	2,7	130	1,8	26	95	160
MES - Fleuves non pollués	15,6	50	31	123	1,4	2,7	134	1,2	13,9	3,15	124	2,9	25	135	150
Vallée de Seine - Marais Vernier	9,5	18,1	14,5	67,8	0,45	1,91	314,0	0,83	6,9	1,83	52,6	1,26	20,1	47,9	224,0
Vallée de Seine - Tourville la Rivière	1,3	9,8	3,9	19,5	< L.D.	0,53	574,5	0,10	1,6	0,43	13,6	0,25	4,3	29,8	14,6
Fond général BV Seine - Thevenot et al., 2002		16,0	20,0		0,50		220,0				50,0			60,0	

	La ppm	Ce ppm	Pr ppm	Nd ppm	Sm ppm	Eu ppm	Gd ppm	Tb ppm	Dy ppm	Ho ppm	Er ppm	Tm ppm	Yb ppm	Lu ppm
Shales	43	82	9,8	33	6,2	1,2	5,1	0,84	4,7	1,1	3	0,44	2,8	0,42
MES - Fleuves non pollués	43	80	9,9	38	7,1	1,6	4,8	0,99	4,3	0,96	2,3	0,39	2,55	0,35
Vallée de Seine - Marais Vernier	23,0	44,6	5,0	20,6	4,1	0,84	3,52	0,55	3,4	0,65	1,90	0,29	1,96	0,31
Vallée de Seine - Tourville la Rivière	4,5	8,5	1,0	4,1	0,9	0,19	0,79	0,11	0,7	0,13	0,37	0,05	0,35	0,05
Fond général BV Seine - Thevenot et al., 2002	20													

Les analyses effectuées sur les sédiments anciens de l'estuaire de la Seine semblent, *a priori*, la meilleure référence, puisqu'elle permet de tenir compte de la composition chimique naturelle des sédiments marqués par la composition des roches présentes dans le bassin versant. Pourtant, deux problèmes sont posés par ces deux seules références :

- Bien que tous deux des alluvions de l'estuaire, originaires de l'amont de Rouen pour l'un

et de l'estuaire très aval pour l'autre, ces deux échantillons ont des compositions minéralogiques et chimiques trop différentes. La composition de l'échantillon prélevé au Marais Vernier est certainement sous influence marine. Il apparaîtrait donc plus approprié de retenir l'échantillon de Tourville-la-Rivière, mais cette référence comporte des teneurs en Si et en Al anormalement basses, non représentatives des échantillons habituellement prélevés dans l'estuaire de la Seine (Boust et al., 2008 ; Dubrulle-Brunaud, 2007).

- De plus, ces deux échantillons, bien que plurimillénaires, ont pu subir une contamination récente par percolation d'eau depuis la surface.

Pour ces raisons, ces références n'ont pas été retenues pour le calcul du FE (cependant, elles seront utilisées comme élément de comparaison en cas de doute sur la source d'un élément chimique).

Les deux autres références, "shales" et "MES-Fleuves non pollués" ont une composition similaire. Comme il manque quelques concentrations d'éléments pour les MES des différents grands fleuves réputés non pollués, il est jugé préférable d'utiliser la référence "shales". De plus, cette référence a déjà été utilisée dans une étude similaire à celle que nous allons présenter : le projet MEDIUM (Étude du MÉlange et de DIspersion des sédiments par l'Utilisation de Marqueurs particuliers dans l'estuaire de la Seine), projet Seine-Aval, dans lequel de nombreuses analyses de sédiments superficiels ont été effectuées sur l'ensemble du système incluant l'estuaire et la baie de Seine (Boust et al., 2008 ; Dubrulle-Brunaud, 2007). La comparaison avec ces précédentes études sera donc facilitée si l'on utilise la même référence. Les références issues du bassin versant de la Seine ou de l'estuaire de la Seine restent tout de même précieuses, en cas d'anomalie (enrichissement ou déficit) par rapport à la référence shales, il sera important de vérifier les teneurs naturelles de cet élément dans ces autres références avant de conclure à une quelconque contamination.

Les radionucléides ne sont pas soumis à des calculs de FE, puisque beaucoup d'entre eux sont d'origine artificielle et ne sont donc pas naturellement présents dans l'environnement. Les radionucléides d'origine naturelle sont généralement peu enrichis dans les sédiments de la Seine. Les activités des différents radionucléides mesurées dans la suite de ce travail sont exprimées en Bq.kg^{-1} (ou mBq.kg^{-1}) de sédiment sec et rapportées à la date de leur prélèvement, sauf indication contraire. Ces activités dans les sédiments seront essentiellement comparées à celle des sédiments étudiés dans le cadre du projet MEDIUM (projet Seine-Aval), de la thèse de Dubrulle-Brunaud (2007) ou encore des études du PIREN-Seine.

7. Stratégie d'étude

7.1. Objectif de l'étude

"Si l'eau d'une rivière provient de la pluie infiltrée à travers les sols de toute l'étendue de son bassin versant, alors la composition de cette eau, et les organismes qui s'y développent, reflètent, en

les intégrant dans l'espace et le temps, les caractéristiques de ces sols, la nature des roches du bassin versant, sa végétation et les activités humaines, agricoles, domestiques ou industrielles qui s'y déroulent. L'eau des rivières est ainsi le miroir de leur bassin versant." (Billen et al., 2009). Ainsi en étudiant la composition des eaux, il est possible de déterminer la composition naturelle du bassin versant et/ou des éléments anthropiques apportés au bassin versant. Dans la présente étude, nous allons uniquement étudier la composition de la phase solide des eaux de la Seine par l'intermédiaire des sédiments qui se sont déposés dans certains lieux de son lit. Nous allons plus particulièrement étudier la partie amont de l'estuaire de la Seine. Pour combler un manque d'informations sur la contamination de l'estuaire, l'objectif de cette étude est de déterminer l'évolution de la contamination en radionucléides et en éléments métalliques à l'estuaire fluvial de la Seine depuis 50 ans. Nous nous attacherons uniquement à retracer l'histoire de la contamination présente sur la phase particulière transitant dans l'estuaire de la Seine.

7.2. Moyens mis en œuvre

Pour atteindre notre objectif, il a été nécessaire d'identifier un lieu de sédimentation pérenne dans l'estuaire fluvial de la Seine. Les sédiments, se déposant régulièrement, conservent l'histoire de la contamination ayant transité dans cette partie de l'estuaire, à condition qu'ils n'aient pas été perturbés ultérieurement. Selon le principe de superposition (une couche est plus récente que celle qu'elle recouvre et plus ancienne que celle qui la recouvre), le milieu de dépôt permet d'accéder à une datation relative des événements qu'il a enregistrés. De tels sites sont rares dans un tel estuaire : anciens bras abandonnés, plaine d'inondation, vasières latérales, bassins portuaires non dragués. Quand l'un de ces sites est identifié, il est nécessaire de s'assurer que les perturbations éventuelles des sédiments, souvent anthropiques, soient mineures et identifiables.

Pour accéder à l'histoire de la contamination enregistrée dans les sédiments accumulés en un site donné, ces derniers sont prélevés sous forme de carottes, prélèvements permettant de conserver leur chronologie relative. Il existe différentes méthodes de carottages : chacune est fonction du milieu de prélèvement, mais surtout du résultat souhaité. Une fois les carottes prélevées, elles sont soigneusement décrites, photographiées et échantillonnées pour les analyses sédimentologiques et géochimiques qui permettront non seulement d'obtenir une chronologie relative de la contamination de l'estuaire fluvial de la Seine, mais également d'obtenir des éléments de datation absolue du profil sédimentaire étudié.

Afin d'interpréter au mieux les résultats obtenus dans l'estuaire fluvial de la Seine, il s'est révélé nécessaire de sélectionner deux sites supplémentaires : l'un en amont de l'estuaire, afin d'avoir un site exempt de toute influence tidale et de toute contamination intra-estuarienne, l'autre à l'embouchure de la Seine, site soumis aux influences marines. Ainsi, les carottes prélevées en ces deux sites ont fait l'objet des mêmes analyses que celle de l'estuaire fluvial, afin d'identifier l'influence de l'amont et de l'aval sur les sédiments de l'estuaire fluvial.

7.3. Présentation sommaire des trois sites d'étude

Les trois sites sélectionnés pour le prélèvement de carottes sédimentaires sont (Figure 17) :

- La Darse des Docks, ancien bassin portuaire aujourd'hui abandonné, connecté au chenal de la Seine et situé dans l'estuaire fluvial (PK 252). Cette darse est notre site principal d'étude, permettant de retracer l'historique de la contamination particulaire ayant transité dans l'estuaire fluvial.
- Une plaine d'inondation située à Bouafles (PK 172) dans la partie fluviale de la Seine. Ce site témoigne des apports du bassin versant à l'estuaire de la Seine.
- La Vasière Nord (PK 360) située dans l'embouchure de la Seine. Ce site représente en partie les apports marins à l'estuaire de la Seine.

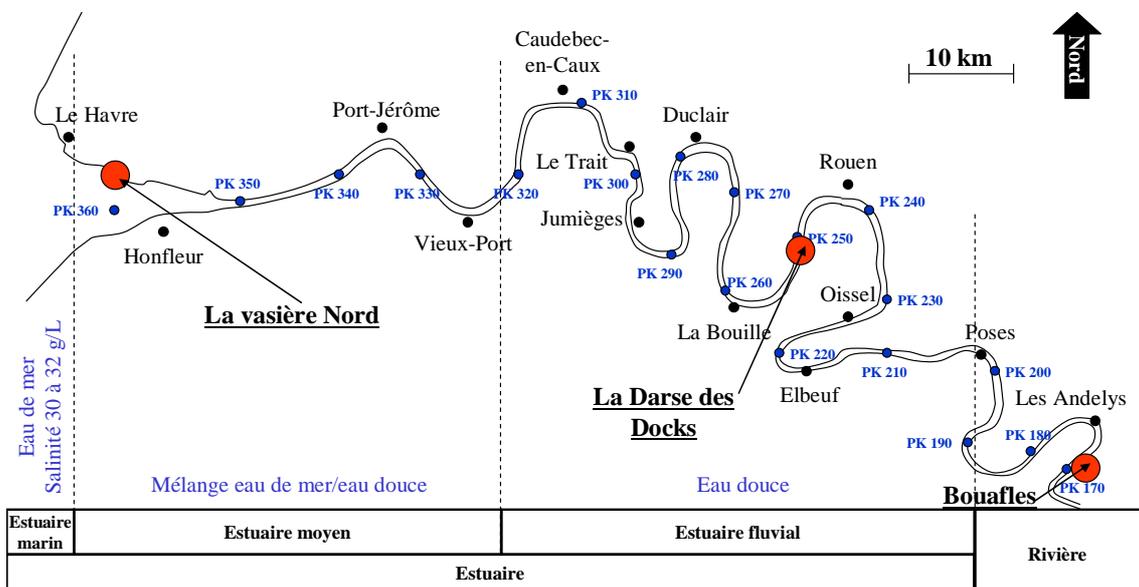


Figure 17 : Localisation des 3 sites de carottages sélectionnés pour la présente étude : la Darse des Docks, Bouafles et la Vasière Nord ; d'après Guézennec (1999) et Deloffre et al. (2005).

Les 3 chapitres qui suivent correspondent à la description successive de chacun de ces sites. On comprendra comment ils ont été sélectionnés, la façon dont la sédimentation s'y effectue, et on étudiera la datation des carottes prélevées et les résultats des analyses géochimiques qui y ont été effectuées.

8. Synthèse

Le bassin versant de la Seine est situé sur le bassin de Paris, composé de formations sédimentaires essentiellement crayeuses. Il est le siège d'une activité agricole et industrielle soutenue associée à une forte densité de population. La Seine qui possède de nombreux affluents est soumise à un cycle hydrologique saisonnier avec des alternances de crues et d'étiages. La majorité des MES est transportée lors des crues, en particulier en début de montée des eaux. Chaque année, environ 600 000

tonnes de MES sont en moyenne apportées au barrage de Poses, limite aval du domaine fluvial, et pénètrent dans l'estuaire.

L'estuaire de la Seine, estuaire macrotidal, est soumis à différentes influences hydrologiques dont le débit du fleuve et les cycles de marée. Ces deux facteurs ont une influence variable en fonction du lieu de l'estuaire, mais également en fonction des débits (cycles crue/étiage) et de la marée (cycles de vive-eau/morte-eau). L'onde de marée est déformée dès sa pénétration dans l'estuaire, qui engendre une période de flot plus courte, mais plus intense (courant plus fort) que la période de jusant. Plus on remonte l'estuaire et plus ce phénomène s'intensifie tandis que, par contre, le marnage diminue vers l'amont de l'estuaire. Dans l'estuaire fluvial de la Seine, la marée a peu d'influence sur le transport des MES en période de crue, ce qui n'est pas le cas en étiage. Plus en aval, la marée a une plus forte influence sur le transport des MES ; elle est à l'origine de la formation du bouchon vaseux.

L'estuaire de la Seine collecte donc les contaminants issus du bassin versant mais il reçoit également des contaminants issus du bassin versant intra-estuarien, alors que, en moindre proportion, il peut recevoir des contaminants issus du domaine marin. Les contaminants émis touchent différents compartiments de l'environnement et, du fait des échanges entre ces compartiments, ils transitent vers la Seine avec des cinétiques variables. L'estuaire de la Seine, soumis à une grande variété de contaminants, a déjà fait l'objet de nombreuses études, la plupart menées dans le cadre de projet Seine-Aval depuis 1995.

Les contaminants présents dans l'estuaire se partagent entre phase dissoute et phase particulaire : ils sont, pour la plupart, majoritairement associés à la phase particulaire.

Ce mémoire a pour objectif de décrire la contamination en éléments métalliques et en radionucléides associés à la phase particulaire depuis 50 ans dans l'estuaire fluvial de la Seine. Pour atteindre cet objectif, plusieurs sites ont fait l'objet de carottages. Les trois chapitres suivants s'attachent à décrire les résultats obtenus en chacun de ces sites.

CHAPITRE II :
Enregistrement sédimentaire
de la contamination
dans l'estuaire fluvial de la Seine

1. Introduction

Dans les estuaires, les sites où les sédiments fins et les contaminants associés s'accumulent de façon continue, sont rares. Leur localisation permet d'accéder à une archive sédimentaire précieuse, donnant une image des concentrations en contaminants ayant pu transiter à cet endroit du fleuve. Un tel site a été identifié dans l'estuaire fluvial de la Seine laissant espérer un enregistrement sédimentaire de l'historique de la contamination de l'ensemble du bassin versant. Ce site situé en aval de l'agglomération rouennaise, siège d'une activité industrielle intense au XX^e siècle, pourrait aussi donner accès à l'historique de la contamination issue du bassin versant intra-estuarien. Pour accéder à cet enregistrement, des carottes sédimentaires ont été prélevées sur ce site. Leur étude fait partie intégrante du projet RHAPSODIS¹ (2007-2012), financé dans le cadre du programme Seine-Aval ; il a pour but (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 de la contamination (contaminants métalliques, organiques, microbiologiques, radionucléides) associée aux dépôts sédimentaires. Ce projet est donc pluridisciplinaire, associant la sédimentologie, la géochimie, la radioécologie et la microbiologie. Il a été principalement porté par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) à Cherbourg Octeville et le laboratoire Morphodynamique Continentale et Côtière (M2C) à Caen. Deux travaux de thèse ont été menés pour répondre aux attentes de ce projet : (1) le présent travail, (2) celui d'A. Benaïcha-Kaci à l'université de Rouen intitulée "Impact des contaminants chimiques sur les communautés microbiennes des sédiments de l'estuaire de la Seine".

2. Choix du site

L'objectif principal du projet RHAPSODIS étant d'établir un historique de la contamination au niveau de l'estuaire fluvial de la Seine, le site sélectionné doit répondre aux critères suivants :

- être situé entre Poses (PK 202) et Le Trait (PK 302) ;
- être soumis à une sédimentation régulière depuis 50 ans au moins ;
- ne pas avoir connu de perturbations significatives, anthropiques ou naturelles.

Il existe, dans cette partie de l'estuaire, des vasières bordant le chenal (Le Trait, Oissel,...), dans des sites où l'hydrodynamisme favorise la décantation des particules. Cependant, des études antérieures (Deloffre et al., 2005 ; Guézennec, 1999 ; Lesourd, 2000) ont montré que les particules sédimentées sur ces vasières pouvaient être remises en suspension en période d'étiage principalement sous l'effet de la marée (mais aussi les ondes de batillage), entraînant la perte d'une partie de l'enregistrement sédimentaire. Un ancien bras mort, situé à Freneuse (PK 212), connaît une

¹ Reconstitution de l'Histoire des Apports Particulaires à la Seine par l'Observation De leur Intégration Sédimentaire. Responsable : D. Boust (IRSN).

sédimentation relativement continue depuis sa fermeture en 1980 (Boust, 1998), mais on ne sait rien de la sédimentation au cours des années antérieures. Les bassins portuaires sont des lieux privilégiés pour la décantation des particules, mais ils connaissent lors de leur utilisation de nombreux dragages d'entretien. Parmi ceux-là, néanmoins, la Darse des Docks est un bassin abandonné de la zone portuaire de Rouen qui ne subit plus aucun dragage, et dont certaines zones semblent ne jamais avoir été entretenues. Le Grand Port Maritime de Rouen (GPMR) nous ayant fourni les informations historiques nécessaires sur cette darse, il a été possible de repérer des zones *a priori* exemptes de dragages. Ce site a donc été sélectionné pour des carottages.

3. Description du site

3.1. Situation de la Darse des Docks

La Darse des Docks est située sur la rive gauche de la Seine à 11 kilomètres en aval de Rouen sur la commune de Petit-Couronne (Figure 18). Sa surface est d'environ 15 hectares et sa connexion à la Seine s'effectue par un chenal d'entrée d'une longueur d'environ 200 m. Elle est au cœur d'une zone industrielle dont les activités sont très variées et ont pu être à l'origine d'apports de contaminants à la Seine : raffinerie, chaudronnerie, recyclage de métaux, travaux publics... (Entreprises à Petit-Couronne : <http://fr.kompass.com/live/fr/t19884/petit-couronne-1.html>).



Figure 18 : Localisation de la Darse des Docks dans l'estuaire de la Seine
(Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>).

3.2. Historique de la Darse des Docks

Le 21 juin 1919, la flotte allemande se saborde et rompt l'accord d'armistice du 11 novembre 1918. A titre de compensation, la France reçoit deux docks flottants (structures métalliques flottantes en forme de U munies de ballasts permettant leur immersion). Rouen reçoit un des engins en 1921 ; mais, victime de son succès, le dock se révèle vite incapable de satisfaire la demande. En 1927, commence donc le creusement d'une darse sur la rive gauche de la Seine à Petit-Couronne devant accueillir de nouveaux docks (Figure 19).

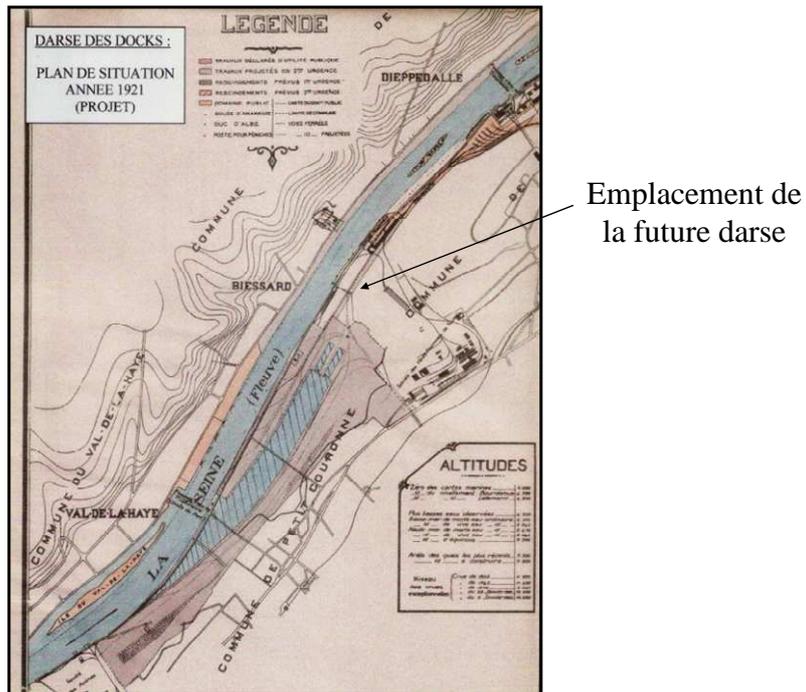


Figure 19 : Carte d'un tronçon de la Seine en 1921 au niveau de Petit-Couronne avant la construction de la Darse des Docks (Source : GPMR).

La construction est réalisée selon les plans de Paul Barillon, ingénieur au Port Autonome de Rouen, et s'achève en 1931. Affectée à la réparation des navires, la Darse des Docks, ainsi nommée, comprend à l'origine quatre docks de 4200 à 8000 t (Figure 20) disposés côte à côte parallèlement au lit de la Seine (Figure 21).

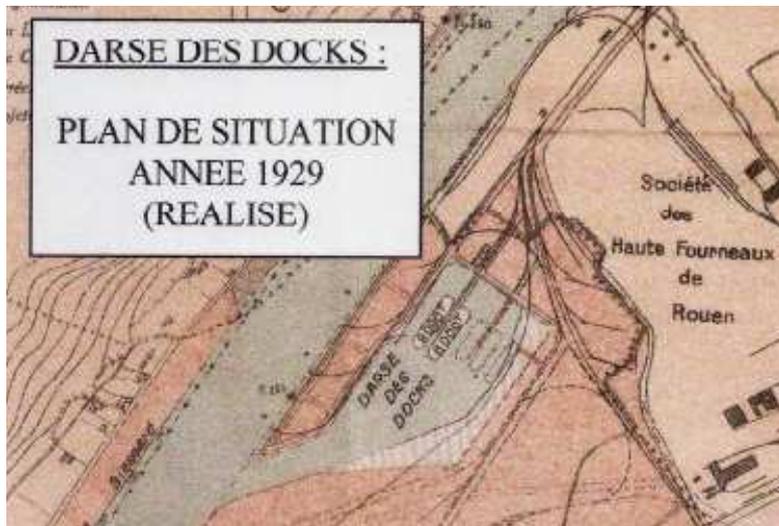


Figure 20 : Carte d'une portion de la Seine en 1929 au niveau de Petit-Couronne pendant la construction de la Darse des Docks (Source : Port Autonome de Rouen).

La cote du plafond de leurs souilles est de -6,5 m CMH (Cote Marine au Havre). Les docks sont utilisés par les chantiers de Normandie, du Trait et de Saint-Nazaire, donnant du travail à de nombreux chaudronniers, tuyauteurs, mécaniciens ou électriciens. Détruits à la Libération, les docks reprennent du service dès 1950 et connaissent 10 années d'intense activité avant de voir les commandes diminuer.

La souille du dock 4 est allongée en 1958. A partir de 1967, le dock 3 n'est plus exploité. En 1975, le dock 4 est à son tour abandonné. Enfin, en 1988, la Darse des Docks stoppe toutes ses activités. Le dock 1 sera déménagé en 1988 et le dock 2 en 1989 (Annexe A).



Figure 21 : Photo non datée de la Darse des Docks ;
Présence des 4 docks au fond de la darse (Source : Ville de Petit-Couronne).

3.3. Dragages effectués dans la Darse des Docks

Le bassin a fait l'objet de dragages d'entretien, localisés seulement dans sa partie ouest et dans son chenal d'entrée, entre 1949 et 1979. Durant cette période, la sédimentation a donc subi des perturbations limitées à certaines zones du bassin. La Darse des Docks a toujours été peu entretenue. L'entretien s'est fait *a minima* sur les souilles et accès aux Docks en service. Seuls les dragages effectués à partir de 1949 sont répertoriés. La Figure 22 présente les zones draguées à partir de cette date et les années des dragages. Le dernier dragage est daté de 1979. Depuis la fin de l'exploitation des Docks en 1988, aucun dragage dans cette darse n'est connu du GPMR.

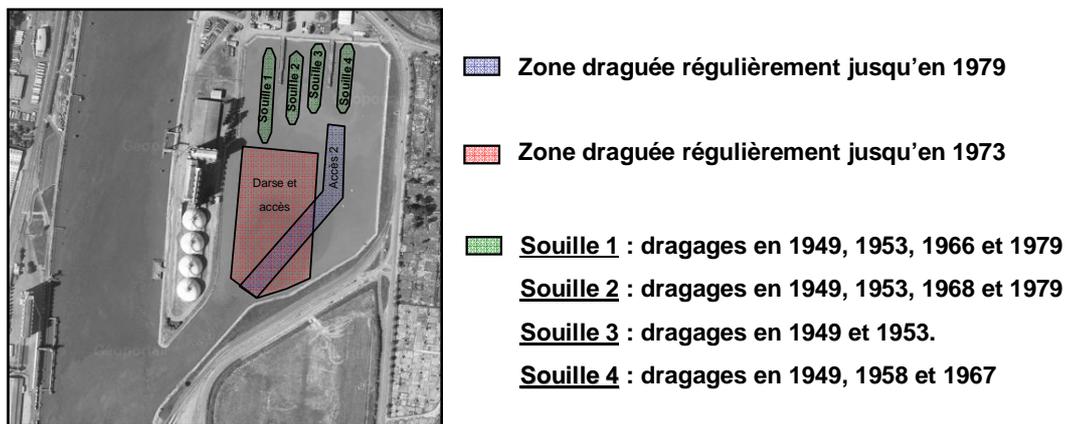


Figure 22 : Schéma récapitulatif des dragages d'entretien effectués dans la Darse des Docks entre 1949 et 1985 (Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr> ; informations historiques : GPMR).

Les cartes bathymétriques des archives du GPMR concernant la Darse des Docks sont datées des années suivantes : 1929, 1931, 1975, 1985, 1986, 1988, 1989, 1992, 1994, 1997, 2000, 2008. Huit de

ces douze cartes ont été numérisées (Vrel, 2009), afin d'appréhender la dynamique sédimentaire du site.

4. Méthode et stratégie de carottage

Deux campagnes de carottage ont eu lieu dans la Darse des Docks, l'une en avril 2008 et l'autre en juin 2010 (Figure 23). Une campagne d'enregistrements sismiques a également été réalisée en avril 2010, dans le but de repérer les zones de plus forte sédimentation. Deux sites à l'intérieur du bassin, correspondant aux zones les moins perturbées par l'activité humaine, ont été sélectionnés à partir des archives fournies par le GPMR, pour effectuer ces carottages, dans le but d'obtenir un enregistrement sédimentaire le plus complet possible.



Figure 23 : Photo du carottier à percussion embarqué à bord de la barge Lamatrans II (carottage de juin 2010, Darse des Docks ; Crédit photo : Carole Dubrulle-Brunaud).

Lors de la campagne de carottage du 7 au 9 avril 2008, huit carottes ont été prélevées avec deux types de carottiers différents (gravitaire et à percussion). Le carottier gravitaire (tube court de section rectangulaire avec ouverture longitudinale) minimise le tassement pour privilégier le prélèvement de la vase molle de surface. Le carottier à percussion perturbe davantage les vases non consolidées de surface, mais permet un carottage profond prélevant ainsi la vase consolidée jusqu'à une profondeur maximale de 5 à 6 m dans le cas présent. Sur chaque site (sites 1 et 2, Figure 24), deux carottes de chaque type ont été prélevées. Les carottes ont été référencées VM pour "vase molle" (carottier gravitaire) ou VC pour "vase consolidée" (carottier à percussion). Un chiffre (1 ou 2) précède ces lettres : il correspond au numéro du site. Un autre chiffre (1 ou 2) suit ces lettres : il correspond au numéro d'ordre de prélèvement. Par exemple, 2VC1 correspond à la première carotte de vase consolidée prélevée sur le site 2. Afin de permettre leur transport, les carottes de vase consolidée ont été découpées en 3 ou 4 tronçons d'environ 150 cm nommés par les lettres A, B, C, D ou E du sommet (interface eau-sédiment) à la base.

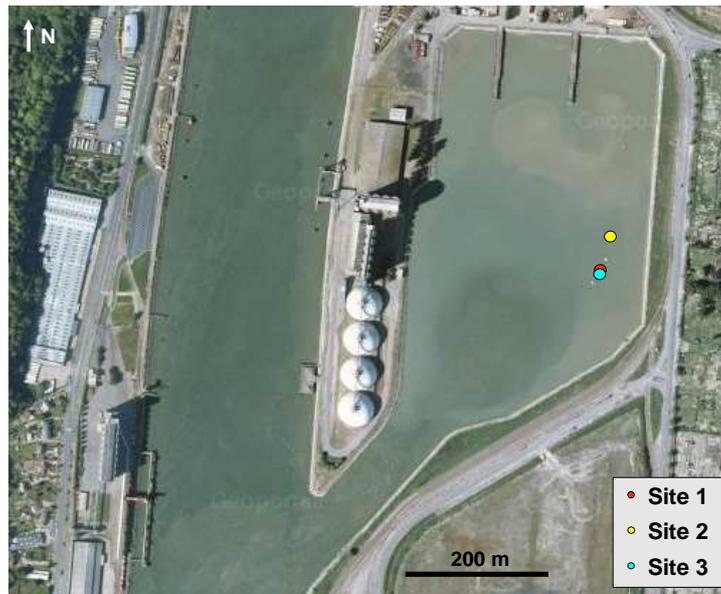


Figure 24 : Localisation des sites de prélèvement de 2008 (Site 1 et 2) et 2010 (Site 3) ;
(Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>).

Les carottes prélevées en 2008 n'ont malheureusement pas permis d'atteindre le début des années 1960 marquées par les retombées des essais nucléaires de 1963 (Paragraphe 12.1). Afin d'obtenir un historique plus complet et mieux daté, un carottage plus profond a été réalisé lors d'une mission complémentaire, le 14 juin 2010. Au préalable, une mission sismique a été menée afin de quantifier l'épaisseur de vase dans la darse, mais sans succès : les sédiments étant chargés en gaz, le signal transmis n'était pas lisible. Lors de cette seconde mission de carottage, deux carottes de vase consolidée ont été prélevées sur le site 3 (Figure 24). Ce dernier devait se trouver à proximité du site 2, site sélectionné pour faire les analyses en 2008, mais des raisons techniques (importante prise au vent de la seconde embarcation utilisée) ont imposé le déplacement du site de carottage. De plus, le premier tubage ayant été plié lors du prélèvement (3VC1), notre intérêt s'est porté sur la deuxième carotte (3VC2).

5. Ouverture, description et échantillonnage des carottes

5.1. Ouverture des carottes

Les carottes sont ouvertes sur un banc de découpe équipé de disques qui permettent de sectionner le tube aluminium sur toute sa longueur selon une génératrice, en deux parties égales. Le sédiment est ensuite découpé par un "fil nylon à couper le beurre". Parmi les 8 carottes prélevées en 2008, 4 ont été ouvertes et échantillonnées lors de la campagne de carottage sous une tente en vinyle, dans les quelques heures qui ont suivi leurs prélèvements (1VM1, 1VC1, 2VM1, 2VC1). Les carottes du site 1 n'ont finalement pas été utilisées. Les carottes du site 2 restantes (2VM2, 2VC2) ont été ouvertes dans

les semaines qui suivent, lors de l'analyse radiographique (SCOPIX®). La carotte 3VC2 prélevée en 2010 a été ouverte quelques heures après son prélèvement au laboratoire M2C à Rouen.

5.2. Premières descriptions des carottes : dessins et photographies

Parmi les carottes prélevées en 2008, celles du site 2 ont été sélectionnées (longueur, absence de déformation du tube) pour poursuivre le projet. Toutes les carottes ont été finement photographiées (1 photo / tronçon de 25 cm) et ont fait l'objet d'une description lithologique à leur ouverture (Figure 25). Le descriptif des carottes a été effectué par plusieurs personnes : 2008 : P. Lesueur et C. Brunaud ; 2010 : A. Vrel. Les couleurs ont été définies à l'aide de la charte de Munsell. Lors de la description macroscopique des carottes, un sédiment fin est observé tout au long de la carotte. Il est de type vase à sable très fin (Figure 25).

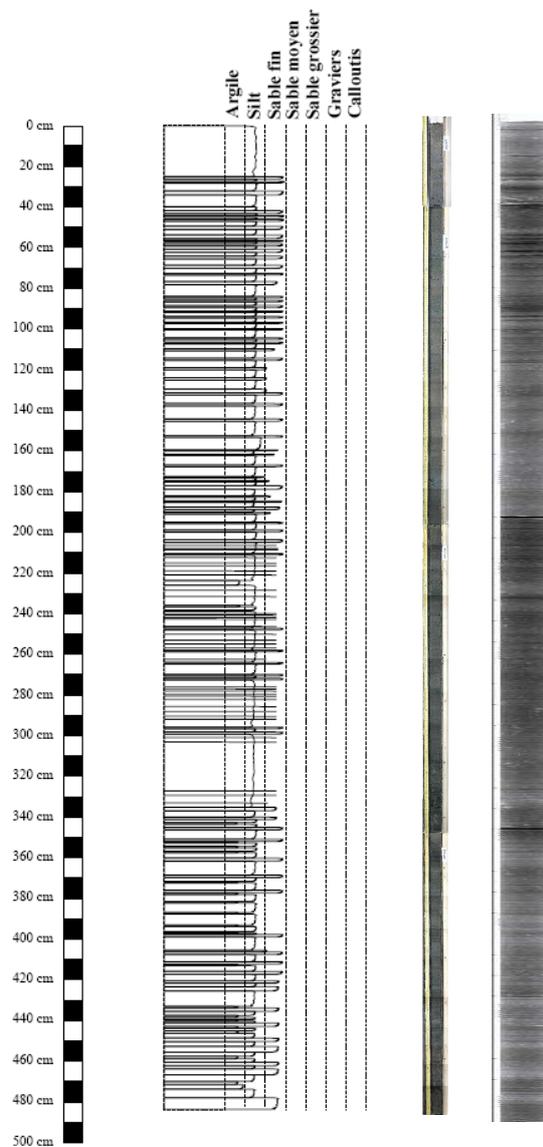


Figure 25 : Description lithologique, photographie et radiographie SCOPIX® de la carotte 2VC2 effectuées lors de son ouverture.

De nombreuses lamines fines, comportant du matériel plus grossier (sable fin), sont présentes sur tout le profil (Figure 26). A l'ouverture de la carotte, les contrastes de couleurs rendent nettement visibles ces lamines ; quelques heures après ouverture, ces contrastes s'atténuent, et tendent à s'estomper, donnant une couleur relativement homogène au dépôt. Les lamines restent identifiables par la différence de granulométrie.

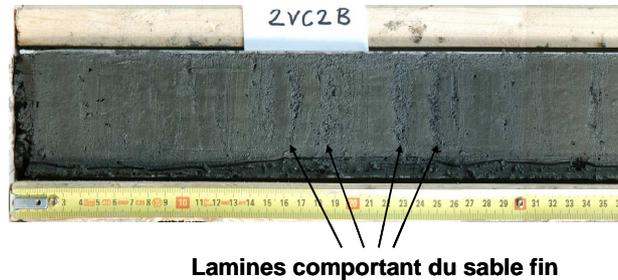


Figure 26 : Photographie d'un extrait du tronçon B de la carotte 2VC2.

Les carottes 2VM1, 2VC1 et une moitié de la carotte 3VC2 ont fait l'objet d'échantillonnages systématiques par tranches de 5 cm d'épaisseur afin d'obtenir suffisamment de matériel pour effectuer toutes les analyses prévues (sédimentologie, géochimie, microbiologie). Les carottes 2VM2, 2VC2 et l'autre moitié de la carotte 3VC2 ont été préservées entières pour des analyses ultérieures. A la fin des deux campagnes de carottage, nous disposons d'échantillons mis en sacs plastique et placés au frais, et de tronçons entiers conditionnés sous gaines plastiques et stockés dans une carothèque. La Figure 27 représente la répartition des sédiments des carottes longues du site 2. Ces carottes sont séparées en 2 demi-carottes, c'est-à-dire en 2 parties découpées dans toute la longueur de la carotte.

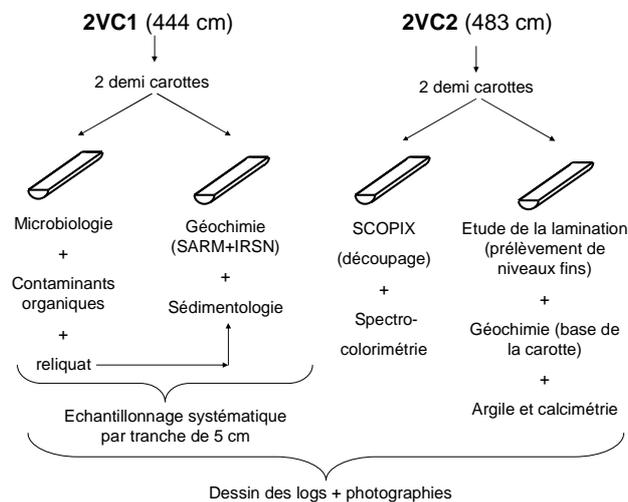


Figure 27 : Répartition des sédiments des carottes de vases consolidées du site 2 pour les différentes études.

5.3. Investigations menées sur les carottes par radiographie aux rayons X (SCOPIX®)

Les carottes 2VC2, 2VM2 et 3VC2 ont subi une analyse radiographique (SCOPIX®) effectuée à l'université de Bordeaux I (UMR CNRS 5805 EPOC). L'imagerie SCOPIX® est une technique d'analyse qui fournit une image de la carotte à partir de rayons X (Migeon et al., 1999). Une caméra produit une image en 256 niveaux de gris, fonction de la densité du sédiment. L'analyse s'effectue

généralement sur une plaquette d'un demi-centimètre d'épaisseur prélevée en surface de la demi-carotte (cas de 2VM2). Toutefois, en raison des nature et structure particulières du sédiment étudié (vase silto-argileuse très collante, grumeleuse et contenant de nombreux macro-vides), la radiographie a été réalisée sur une des 2 demi-carottes des 4 tronçons de la carotte 2VC2, sans préparation de plaquettes. L'image SCOPIX® permet, entre autres, la mise en évidence des faciès sédimentaires, des rythmicités dans la sédimentation, de l'activité biologique (Migeon et al., 1999). Cette technique a l'avantage d'être une analyse non destructive (Ciutat et al., 2006). Les images présentées sur la Figure 25 sont des positifs de RX : les niveaux les plus sombres correspondent aux niveaux les plus grossiers (les plus denses), tandis que les plus clairs correspondent aux niveaux les plus fins. La densité du sédiment peut aussi être modifiée par sa porosité variable en fonction de la granulométrie (Migeon et al., 1999).

Les carottes prélevées dans la Darse des Docks présentent toutes des profils relativement homogènes ; toutefois, ces analyses radiographiques mettent en évidence une lamination fine et subtile qui correspond aux très fines structures visibles peu après l'ouverture des carottes. La radiographie, donnant un signal à haute résolution verticale, permet d'appliquer des techniques de traitement du signal (Paragraphe 10.1) pour rechercher les paramètres de forçage de la sédimentation.

6. Analyses sédimentaires : méthodes et résultats

Les analyses de teneur en eau, calcimétrie, granulométrie et identification/quantification des cortèges argileux ont été effectuées au Laboratoire Morphodynamique Continentale et Côtière, UMR CNRS 6143 (Annexe C).

6.1. Teneur en eau

Les teneurs en eau ont été mesurées sur les carottes 2VM1, 2VC1 et sur 5 échantillons de la base de la carotte 3VC2 (Figure 28). Le calcul des teneurs en eau s'effectue selon l'équation suivante :

$$W(\%) = \frac{M_{eau}}{M_{totale}} \quad \text{Équation 2}$$

$W(\%)$: teneur en eau en % (variant entre 0 et 100 %)

M_{eau} = masse d'eau dans le sédiment (g), et

M_{totale} = masse totale du sédiment avant séchage (g) ($M_{eau} + M_{sec}$)

Les teneurs en eau sont maximales dans la vase molle de surface (60 à 75 %), sur 40 cm environ. Elles se stabilisent ensuite autour de 55 % de 50 à 450 cm, puis diminuent encore autour de 45 % pour le sédiment prélevé au-delà de 500 cm. Le sédiment présente un état de consolidation croissant avec la profondeur du fait de la contrainte effective verticale liée au poids du squelette solide du sédiment sus-

jacent. Notons que la succession des épisodes sous l'eau/hors d'eau favorise également la consolidation.

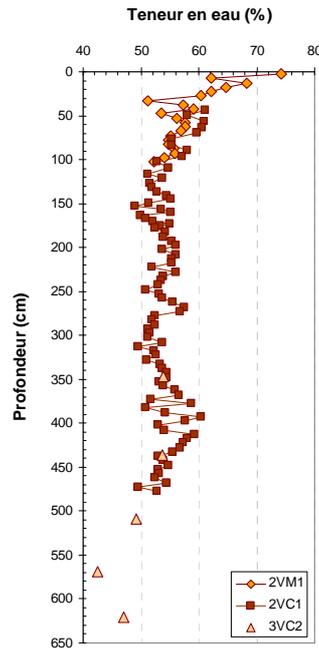


Figure 28 : Teneur en eau des sédiments des carottes 2VM1, 2VC1 et 3VC2, après corrections de la profondeur sur la carotte 2VC1 et 3VC2 (Paragraphe 9.1).

Les analyses des teneurs en eau ayant été effectuées sur tous les échantillons des carottes 2VM1 et 2VC1, elles ont contribué à raccorder les profils obtenus sur ces deux carottes dans le but d'obtenir un profil unique (Paragraphe 9.1.1).

6.2. Calcimétrie

Des mesures de calcimétrie ont été effectuées sur 12 échantillons répartis sur la longueur de la carotte 2VC2 par la méthode du Calcimètre de Bernard. Les teneurs en carbonates mesurées sur la carotte 2VC2 varient entre 25 et 37 %. Une grande partie des échantillons a une teneur en carbonates proche de 30 %, valeur caractéristique des sédiments de la Seine estuarienne (Lesueur et al., 1999).

6.3. Granulométrie

Les analyses granulométriques ont été effectuées sur 6 échantillons de la carotte 2VM1, 39 de la carotte 2VC1 et 24 de la base de la carotte 3VC2 (Annexe B). Les échantillons ont été analysés par diffraction laser avec un granulomètre de type Coulter LS 230. Cet appareil donne un spectre granulométrique dont les tailles sont comprises entre 0,4 et 2000 μm . 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 et tri selon les formules de Folk et Ward de 1957 (Chamley, 2004).

Sur 2VM1 et 2VC1, la granulométrie des échantillons se révèle relativement constante sur toute la longueur de carotte avec une médiane et un grain moyen autour de 20 μm , qui varie entre 10 μm et 28 μm (à l'exception d'un échantillon dont la médiane est de 37 μm), et qui diminue légèrement à la base de la carotte à 17 μm (Figure 29). Quelques niveaux sont 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, ce qui est typique de la décantation de mélanges de MES. Les courbes granulométriques ne présentent pas d'asymétrie significative. 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).

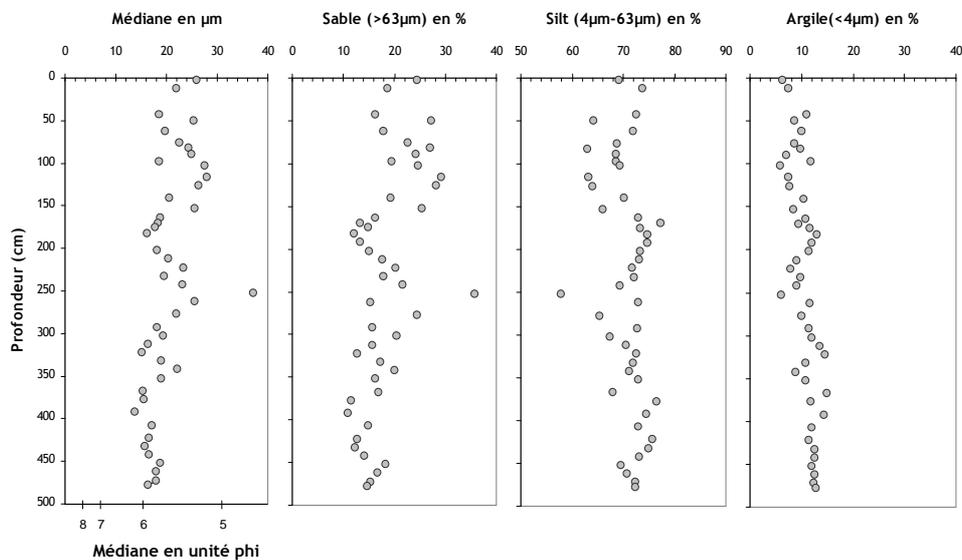


Figure 29 : Granulométrie des sédiments des carottes 2VM1 et 2VC1 ; médiane et proportion en sable, silt et argile sur l'ensemble de ces deux carottes. La profondeur de la carotte 2VC1 a été corrigée des pertes de sédiment et du tassement dus au carottage (Paragraphe 9.1.1).

Sur la carotte 3VC2, les sédiments présentent une médiane plus faible que ceux de la carotte 2VC1 ; cette médiane se situe autour de 12 μm (Figure 30). Les échantillons ont une composition semblable, avec : une prédominance de silts (65 à 78 %), des quantités faibles de sables (2 à 16 %) en majorité très fins à fins, et des quantités plus fortes de particules de la taille des argiles (17 à 23 %).

Les analyses granulométriques effectuées sur la partie haute de la carotte autour de 200 cm de profondeur montrent la même tendance qu'à la base de la carotte, ce qui indique bien que cette variation de granulométrie est une tendance générale imputable au site de carottage (50 m d'éloignement entre 2VC1 et 3VC2) et non à une variation dans le temps. A signaler que pour s'affranchir de ces différences granulométriques lors de l'analyse des teneurs en contaminants, il est possible de normaliser les mesures effectuées sur les différentes carottes, comme précisé dans le chapitre I. Les écarts granulométriques restant faibles, la normalisation des données n'engendrera pas de changements significatifs dans les différents profils des contaminants.

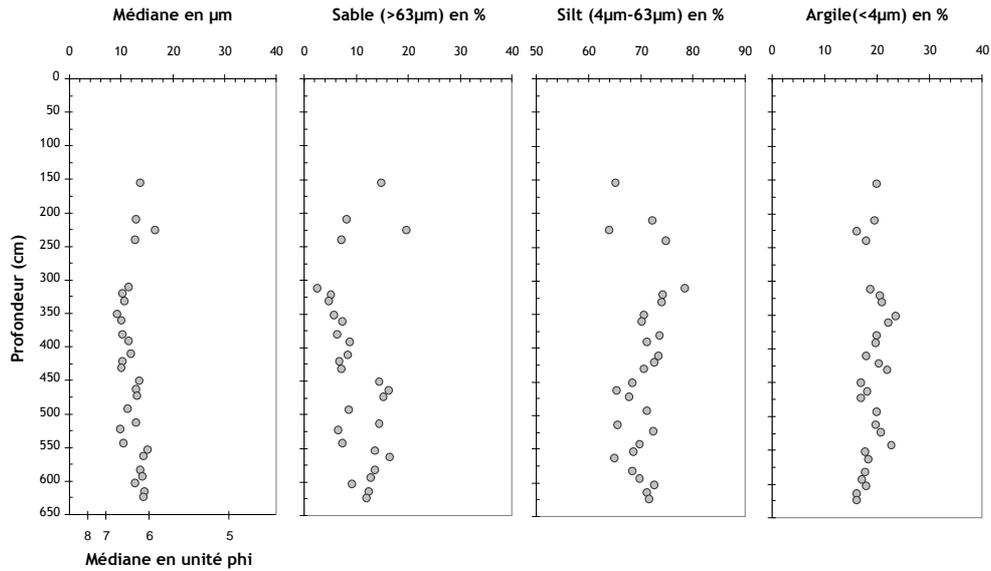


Figure 30 : Granulométrie des sédiments de la carotte 3VC2 ; médiane et proportion en sable, silt et argile sur l'ensemble de la carotte. La profondeur de la carotte 3VC2 a été corrigée des pertes de sédiment dus au carottage (Paragraphe 9.1.2).

Sur la carotte 2VC2, quelques lamines choisies parmi les plus contrastées, ont fait l'objet d'un prélèvement isolé à l'aide d'une spatule fine. Ces différentes lamines ont été soumises à des analyses granulométriques selon la même méthode. Les diagrammes ternaires qui suivent présentent : (1) les résultats des analyses effectuées sur des tranches de carottes de 5 cm de long (résultats précédents) ; (2) les résultats des analyses effectuées sur les prélèvements des lamines (Figure 31).

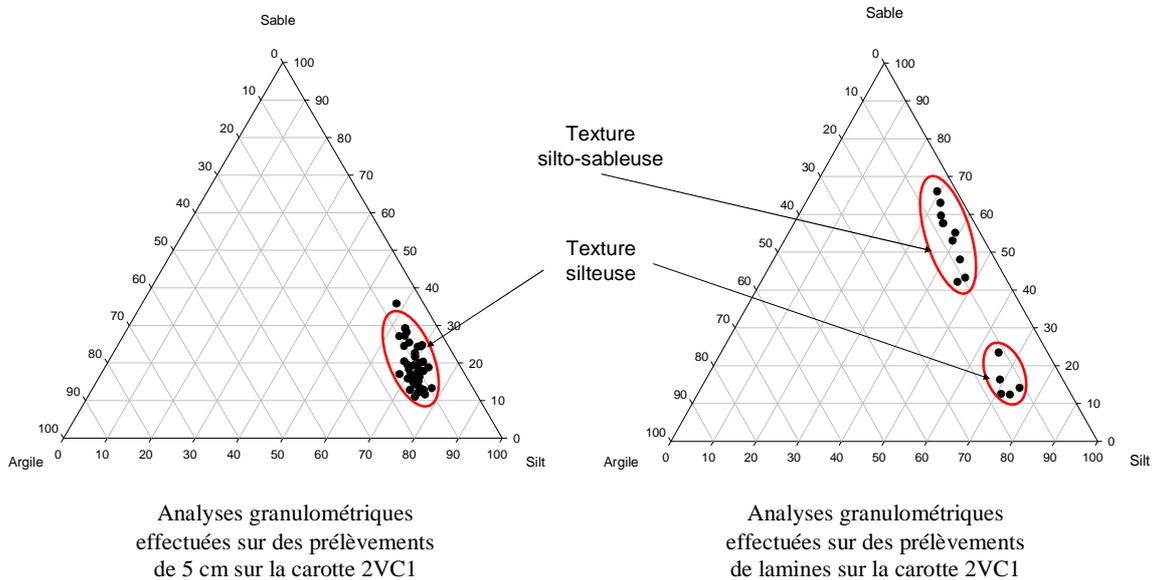


Figure 31 : Diagrammes ternaires des textures pour deux types d'échantillonnage (Vrel, 2009).

Les échantillons prélevés sur les tranches de 5 cm sont tous de texture silteuse, alors que les échantillons prélevés plus finement (lamines isolées) présentent des différences granulométriques : certains appartiennent à la même classe silteuse, alors que 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 (ils moyennent les caractéristiques du sédiment), les échantillons des lamines ont un grain moyen et une médiane plus variable, entre 15 et 90 μm . Un échantillonnage plus fin permet donc d'obtenir des sédiments mieux triés et de constater qu'il existe des variations granulométriques à des échelles fines d'épaisseur du sédiment. Des variations dans l'intensité des paramètres hydrologiques sont certainement à l'origine de la composition de ces lamines, nous discuterons de ces paramètres forçants dans le paragraphe 10.2.

Nous savons que les contaminants se lient préférentiellement aux particules fines par adsorption. Ceux dont les résultats sont présentés dans la suite de ce travail ont tous été mesurés sur des tronçons de carotte de 5 cm d'épaisseur ; la granulométrie des échantillons étant peu variable sur ces tronçons, les mesures de contaminants effectuées sur l'ensemble du profil peuvent être comparées. Toutefois, pour plus de rigueur, nous avons choisi d'effectuer une normalisation des teneurs des différents métaux mesurés dans les sédiments carottés. Comme évoqué dans le chapitre I, les teneurs en Al étant fonction de la granulométrie des sédiments (i.e. Boust et al., 1981), nous choisirons par la suite de normaliser les données obtenues à cet élément.

6.4. Identification et quantification des cortèges argileux

Les 12 niveaux de la carotte 2VC2 analysés pour la teneur en carbonates ainsi que 3 autres échantillons de la carotte 3VC2 ont été utilisés pour l'identification et la quantification des minéraux argileux contenus dans les sédiments (Annexe B).

La Figure 32 représente l'évolution des cortèges argileux le long de la carotte 2VC2. En surface, se trouvent une majorité de smectites (70 %), tandis qu'en profondeur, la proportion de smectites diminue (25 %), au profit de la kaolinite qui atteint les 75 % dans un échantillon situé à 464 cm de profondeur. Deux échantillons comportent 1 et 8 % d'un minéral interstratifié chlorite-smectite à 544 cm et 616 cm de profondeur. Un échantillon comporte 13 % de chlorite associée à un minéral interstratifié chlorite-chlorite gonflante à 464 cm de profondeur. Un échantillon comporte 27 % de smectites associées à un minéral interstratifié chlorite-smectites à 544 cm de profondeur. La proportion d'illite, en faible quantité tout au long du profil, diminue légèrement de la profondeur vers la surface, de 6 à 17 %. Le cortège argileux comprend également des chlorites associées à des minéraux interstratifiés illite-chlorite ou à des minéraux interstratifiés illite-chlorite en faible quantité (moins de 10%).

Les teneurs en smectite, kaolinite et illite mesurées en surface sont de même ordre de grandeur que celles décrites dans Dubrulle-Brunaud (2007) pour un échantillon de surface prélevé en 2005 sur une vase à la sortie du bassin des Docks. Les teneurs en smectites sont toutefois supérieures dans l'échantillon de surface de la carotte par rapport aux données fournies par cet auteur ; dans l'étude citée précédemment, seuls quelques échantillons de surface situés plus en aval dans l'estuaire présentent de si fortes teneurs en smectites. Globalement, suite au projet MEDIUM (Boust et al., 2008) étudiant les sédiments de surface, le cortège argileux dans l'estuaire de la Seine a été défini

comme étant composé en moyenne de 50 % de smectite, 15 à 20 % d'illite, 25 à 30 % de kaolinite et 5 % d'interstratifiés. Ces données ne correspondent pas aux valeurs mesurées entre 350 et 620 cm de profondeur dans les carottes de la Darse, il semble donc qu'il y ait eu un changement de source dans l'origine des apports.

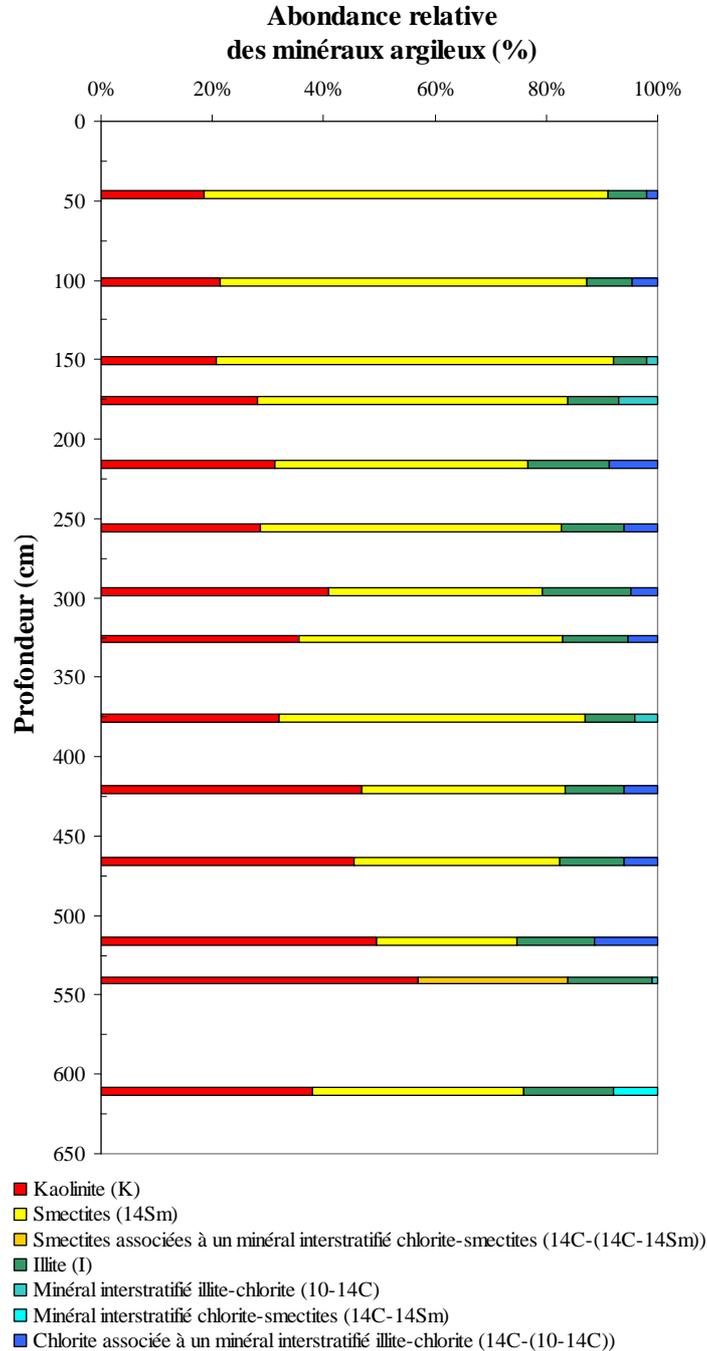


Figure 32 : Evolution de la composition du cortège argileux en fonction de la profondeur dans la carotte 2VC2.

Selon Lesourd (2000), l'estuaire de la Seine est une zone de mélange recevant (1) les argiles d'un pôle continental, composées essentiellement de smectites et de kaolinite, ainsi que (2) les argiles d'un pôle marin composées essentiellement d'illite et de chlorite. Les apports intra-estuariens quant à eux contiennent des chlorites gonflantes. Nous observons peu d'illite et de chlorite dans la carotte de la

carotte de la Darse : étant située dans l'estuaire fluvial, la Darse reçoit peu d'apports marins (Chapitre VII). En outre, le bassin versant de la Seine, étant très vaste, il est possible que l'origine des apports en particules fines ait varié au cours du temps, ce qui expliquerait l'importante variation de la proportion smectite-kaolinite observée au cours du temps enregistré par ces carottes.

7. Analyses des éléments stables : méthodes et gammes de concentrations

7.1. Éléments analysés

Les analyses des éléments stables ont été effectuées au SARM-CRPG à Nancy (Annexe D). Un échantillon sur deux ou trois a été analysé (soit une mesure tous les 10 à 15 cm). Au total, les analyses concernent (Annexe B) :

- 6 échantillons sur la carotte 2VM1 ;
- 39 échantillons sur la carotte 2VC1 ;
- 10 échantillons sur la partie inférieure de la carotte 2VC2 ;
- 24 échantillons sur la partie inférieure de la carotte 3VC2.

Ces quatre carottes représentent chacune un segment plus ou moins important du profil de contamination des sédiments de la Darse des Docks. Un recouvrement entre chaque segment du profil complet a été effectué aux extrémités des carottes (Paragraphe 9.1).

La Figure 33 présente l'ensemble des éléments mesurés par le SARM, ainsi que la technique d'analyse utilisée.

H																	He		
Li	Be													B	C	N	O	F	Ne
Na	Mg													Al	Si	P	S	Cl	Ar
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr		
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe		
Cs	Ba	↳	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn		
Fr	Ra	↳	Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Uub	Uut	Uuq	Uup	Uuh	Uus	Uuo		
PAF	↳																		
	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu				
	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	md	No	Lr				

Analyses multi-élémentaires des majeurs, ICP-OES
 Analyses multi-élémentaires des traces, ICP-MS
 Analyses complémentaires

Figure 33 : Éléments mesurés dans les sédiments par ICP-OES et ICP-MS.

7.2. Gamme des concentrations des éléments stables dans les sédiments prélevés

La Figure 34 représente l'intervalle compris entre la valeur minimale et la valeur maximale de chaque élément majeur. En vert, est représentée la teneur de l'élément dans les shales (Turekian and Wedepohl, 1961). Le choix de cette référence a été discuté dans le chapitre I de ce mémoire.

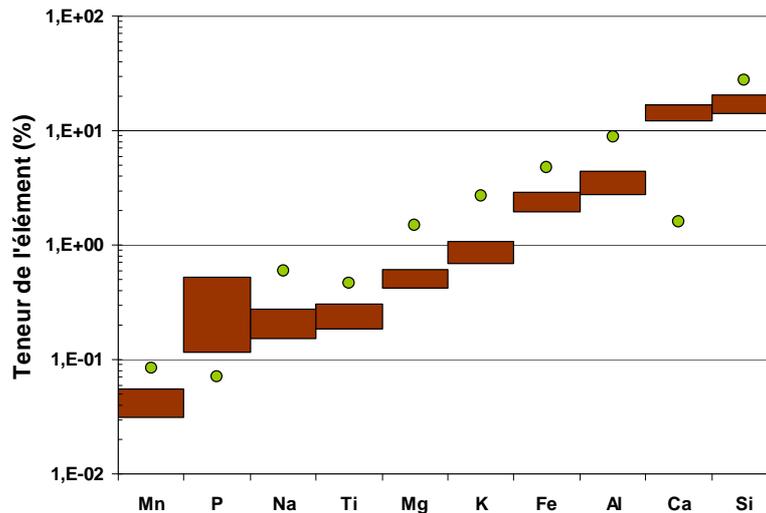


Figure 34 : Gammes des concentrations mesurées en pourcentage de chaque élément majeur dans les sédiments de la Darse des Docks en marron. Valeur de la référence shales en vert.

Tous ces éléments majeurs présentent un écart par rapport à la référence shales. Ils sont en déficit, sauf deux éléments qui sont en large excès : le Ca et le P. Le Ca présente des valeurs comprises entre 12 et 17 % dans les sédiments de la Darse des Docks, contre seulement 1,6 % dans les shales. Cet excès de Ca est naturel ; le bassin versant de la Seine étant crayeux, les sédiments comportent plus de Ca que la référence shales. On note d'ailleurs des teneurs très élevées dans les sédiments anciens du marais Vernier (10 %) et de Tourville-la-Rivière (34 %) (Chapitre I). Les teneurs en P varient de 0,12 % à 0,59 % dans les sédiments de la Darse, contre 0,07 % dans les shales. Les excès de P sont d'origine anthropique. Le fond géochimique du bassin de la Seine comporte seulement 0,065 % de P une valeur similaire à celle des shales (Thévenot et al., 2002). On verra (Chapitre VI) que ces excès sont attribués à une contamination par les phosphogypses, sous-produits de la production d'engrais phosphatés au niveau de l'agglomération rouennaise, en particulier dans les années 1970 (Aminot et al., 1986 ; Chiffolleau et al., 2001 ; Simon, 1990), mais également à l'utilisation d'engrais phosphatés sur les terres agricoles. Les déficits observés pour les autres éléments s'expliquent essentiellement par l'excès de Ca qui se répercute sur toutes les autres valeurs. Des teneurs élevées en matière organique peuvent également engendrer un déficit des teneurs des autres éléments par rapport aux shales : sur les sédiments de la Darse des Docks, la perte au feu est relativement forte, de 25 à 33 %.

La Figure 35 présente les valeurs minimales et maximales de différents éléments-traces enregistrés dans les sédiments des carottes de la Darse des Docks, avec toujours une comparaison à la composition des shales. Certains éléments présentent de très importantes variations de leurs teneurs : Bi, Cd, U, As, Y. D'autres, au contraire, ont des teneurs très stables : Ta, Ge, Hf, Cs, Nb, Ga, Co, Rb. On observe des teneurs en déficit systématique par rapport aux shales (Ta, Nb, Ga, Co, Ni, V), mais aussi des teneurs similaires à celles des shales (Ge, Hf, Cs, Zr) ; *a priori*, les éléments présentant l'une de ces deux caractéristiques ne sont pas contaminants ; cela sera à confirmer après calcul des FE (Paragraphe 11.2). Certains éléments, en plus de présenter des teneurs très variables dans les divers

échantillons, sont en large excès par rapport aux shales : Bi, Cd, Ln, Sb, Ag, As, Sn, Y, Cu, Pb, Zn. Ces excès peuvent être dus à diverses contaminations :

- en provenance du bassin versant de la Seine : Le Cloarec et al. (2011) ont décelé une forte contamination en certains éléments dont le Pb, Cd, Cu, Zn au cours des années 1960 dans une carotte prélevée en amont du barrage de Poses.
- en provenance du bassin versant intra-estuarien : certains affluents de la Seine estuarienne sont contaminés, telles que l'Eure (Dessevre-Delepouille, 1978) ; de plus, l'agglomération rouennaise a été le siège d'une intense activité industrielle : rejets directs de phosphogypses et contaminants associés, entre autres (Chapitre VI).

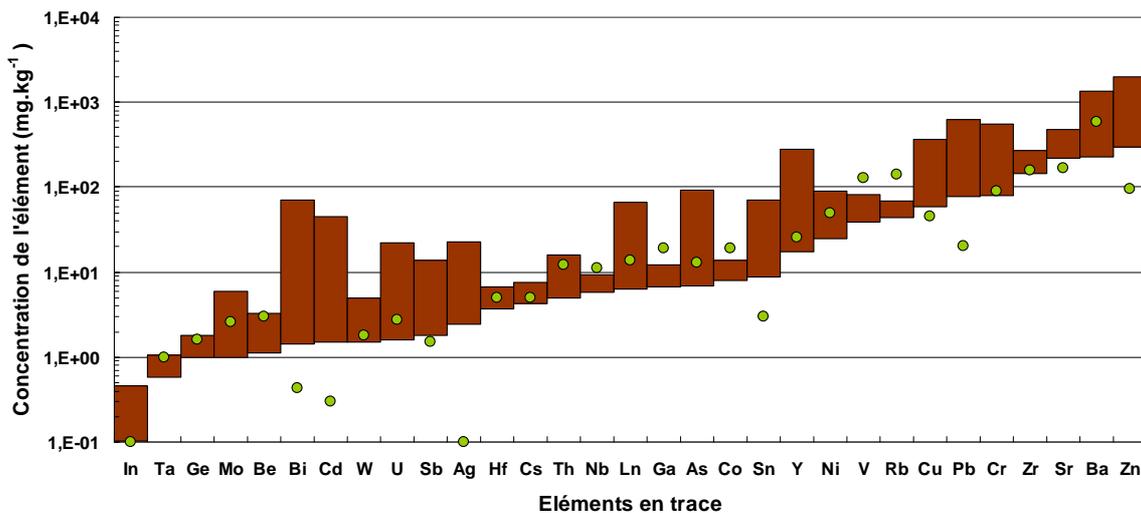


Figure 35 : Gamme des concentrations mesurées en mg.kg^{-1} de sédiment sec de chaque élément-trace dans les sédiments de la Darse des Docks (Ln représente l'ensemble des lanthanides). Valeur de la référence shales en vert.

Les teneurs en Al étant relativement stables sur l'ensemble de la carotte (Figure 34), les très grandes variations des teneurs de certains éléments indiquent donc la présence de contaminations : par exemple, la teneur en Cd varie entre $1,5 \text{ mg.kg}^{-1}$ et $44,7 \text{ mg.kg}^{-1}$, soit d'un facteur 30.

La datation des carottes sédimentaires, ainsi que le calcul des FE des éléments mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks (Paragraphe 11) permettra une meilleure interprétation de ces données par la représentation de séries temporelles de chaque élément.

8. Analyse des radionucléides : méthodes et gammes d'activités

8.1. Eléments analysés

Les radionucléides ont été analysés dans deux laboratoires de l'IRSN : les radionucléides émetteurs gamma ont été analysés au LRC (Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville) et les radionucléides émetteurs alpha au LMRE (Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans

l'Environnement). Le principe des analyses est détaillé dans les Annexes F et G.

Un échantillon sur deux ou trois a été analysé en spectrométrie gamma (Annexe B). Les échantillons analysés sont répartis sur l'ensemble des carottes nommées ci-dessous ; les parties de profil présentant des pics de concentrations ont fait l'objet d'analyses systématiques. Au total, les échantillons analysés par spectrométrie gamma concernent :

- 6 échantillons sur la carotte 2VM1 ;
- 57 échantillons sur la carotte 2VC1 ;
- 10 échantillons sur la partie inférieure de la carotte 2VC2 ;
- 22 échantillons sur la partie inférieure de la carotte 3VC2.

En spectrométrie alpha, environ un échantillon tous les 25 cm a été analysé (soit en moyenne une analyse tous les 5 échantillons). Comme pour la spectrométrie gamma, le pas d'échantillonnage est resserré au niveau des concentrations les plus élevées. Au total, les échantillons analysés par spectrométrie alpha concernent :

- 8 échantillons sur la carotte 2VM1
- 28 échantillons sur la carotte 2VC1
- 3 échantillons sur la partie inférieure de la carotte 3VC2

8.2. Gammes d'activités observées

La Figure 36 présente les gammes d'activités des différents radionucléides mesurés dans les sédiments des carottes de la Darse des Docks. Les activités des radionucléides sont très variables d'un élément à l'autre, et plus ou moins variables en fonction de la profondeur.

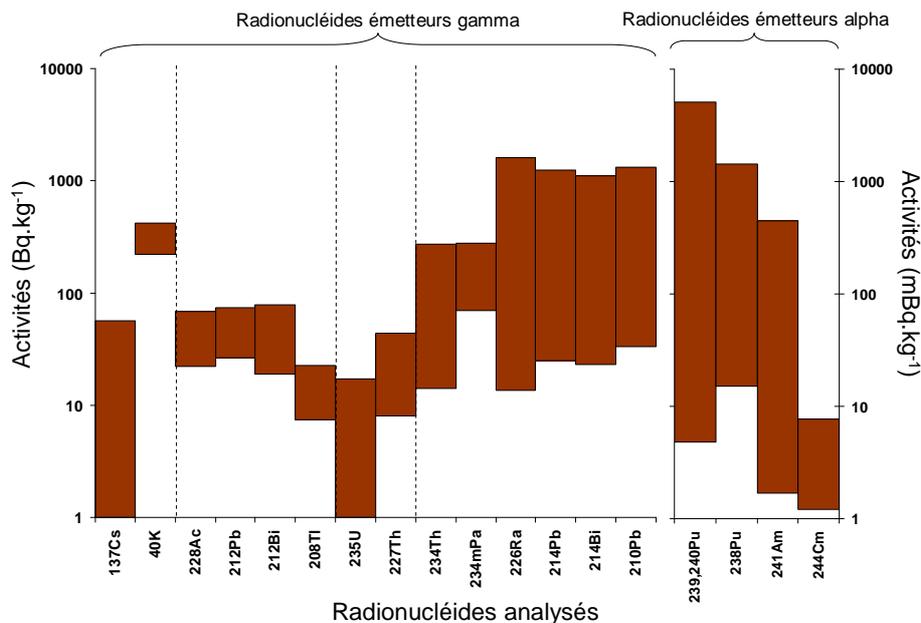


Figure 36 : Gammes des activités mesurées de chaque radionucléide dans les sédiments de la Darse des Docks. A gauche, les radionucléides émetteurs γ artificiels (^{137}Cs) et naturels (famille du ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U) ; à droite, les radionucléides émetteurs α .

Les radionucléides émetteurs alpha (exprimés en mBq.kg^{-1}) ont globalement des activités moindres comparées à celles des radionucléides émetteurs gamma (exprimés en Bq.kg^{-1}). Les activités en ^{40}K sont peu variables comme attendu d'après les concentrations en Al, peu variables elles aussi.

Certains radionucléides présentent de grandes variations entre *extrema* mesurés, tel que le ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le $^{239,240}\text{Pu}$ et le ^{241}Am : ils ont été introduits à plusieurs reprises dans l'environnement en quantités plus ou moins importantes. Certains de ces rejets sont déjà très documentés :

- les retombées atmosphériques des essais nucléaires effectués entre 1945 et 1980 (Renaud and Roussel-Debet, 2008 ; Ritchie and Mchenry, 1990) ;
- les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl (Erlenkeuser and Balzer, 1988 ; IRSN, 2006 ; Renaud et al., 2003 ; Roussel-Debel et al., 2007) ;
- les rejets l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague (Boust, 1999 ; Colin, 1990 ; Thomson et al., 2002) ;
- les rejets de la centrale nucléaire de Nogent qui sont considérés comme très faibles d'après les suivis effectués (Pally and Lambrechts, 1997 ; Parache, 2008).

D'autres rejets ont été identifiés au cours de ce travail : il s'agit de rejets de radionucléides émetteurs alpha effectués par une installation nucléaire de la région parisienne en 1975.

Les radionucléides de la chaîne du ^{232}Th présentent des activités variant entre 20 et 80 Bq.kg^{-1} . Il semble donc que certains échantillons présentent des activités supérieures à ce qui est généralement observé. Dans le projet MEDIUM (Boust et al., 2007), Projet Seine-Aval, les activités en ^{228}Ac et ^{212}Pb sont comprises entre 28 et 46 Bq.kg^{-1} sur des échantillons de surface prélevés sur l'ensemble de l'estuaire de la Seine. Dans les sols, l'activité moyenne du ^{232}Th est de 25 à 28 Bq.kg^{-1} (Henner et al., 2002). Si certaines valeurs des échantillons des carottes de la Darse sont en accord avec ces données, d'autres présentent des valeurs plus élevées qu'attendu.

Les radionucléides de la chaîne de l' ^{235}U sont en général difficilement détectables dans l'environnement. Dans les sédiments de la Darse des Docks, leurs activités sont détectées mais restent faibles : l'activité du ^{235}U est comprise entre 1 et 17 Bq.kg^{-1} . Il semble donc qu'il y ait une contamination des sédiments de la Darse des Docks.

Enfin, les radionucléides de la chaîne de l' ^{238}U présentent des activités très variables dans les sédiments de la Darse des Docks : ^{234}Th et ^{234}Pa ont des activités comprises entre 14 et 280 Bq.kg^{-1} ; ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{210}Pb ont des activités comprises entre 14 et 1310 Bq.kg^{-1} . Dans les sédiments superficiels analysés dans le cadre du projet MEDIUM : le ^{234}Th a des valeurs comprises entre 19 et 44 Bq.kg^{-1} , tandis que celles du ^{214}Pb et du ^{210}Pb sont comprises entre 25 et 75 Bq.kg^{-1} . Les activités observées dans les sédiments de la Darse des Docks sont donc anormalement élevées, au moins à certains niveaux.

Tout comme pour les éléments stables, ces activités seront présentées après datation des carottes, sous forme de séries temporelles.

9. Datation des carottes

Plusieurs carottes ayant été prélevées dans la Darse des Docks, il est nécessaire de les raccorder les unes aux autres afin d'obtenir un profil de profondeur unique des différentes analyses géochimiques effectuées. Ensuite pour reconstituer l'histoire de la contamination dans l'estuaire fluvial de la Seine, il est nécessaire de dater les échantillons de sédiments analysés. La datation de ces échantillons doit permettre de représenter les concentrations des différents éléments analysés sous forme de séries temporelles.

9.1. Raccordement des différentes carottes

Nous souhaitons maintenant obtenir l'évolution des concentrations des éléments mesurés dans plusieurs carottes sur un même profil. Le carottage court de vase molle ayant préservé la vase de surface, au contraire du carottage long, il est d'abord nécessaire de raccorder 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 un peu plus ancien. 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, en prenant soin d'obtenir un recouvrement significatif avec la carotte 2VC1 de 2008 (Figure 37).

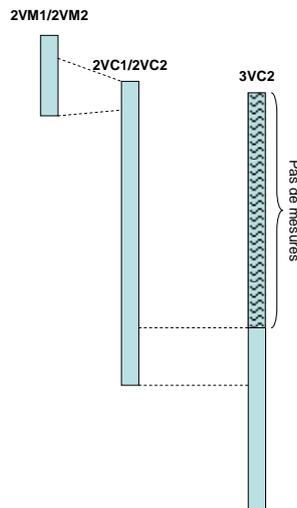


Figure 37 : Mise en parallèle des différentes carottes prélevées.

9.1.1. *Raccordement des carottes 2VM1 et 2VC1*

La corrélation entre les carottes 2VM1 et 2VC1 a été réalisée à partir des analyses de teneur en eau, qui sont les seules à avoir été réalisées sur tous les échantillons, soit tous les 5 cm. Deux artefacts sont à prendre en compte pour le calage des carottes 2VM1 et 2VC1. Ils sont liés à la méthode de carottage à percussion :

- la perte par poinçonnement des sédiments de surface sur la carotte 2VC1 ;
- le tassement du sédiment sur la carotte 2VC1.

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

Après différents tests de raccordement des carottes 2VM1 et 2VC1, à partir des analyses de teneurs en eau, il apparaît :

- une perte de 40 cm de sédiment de 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 raccorder les carottes 2VM1 et 2VC1 est donc l'application de la formule suivante aux profondeurs (en cm) de la carotte 2VC1 :

$$(P_{2VC1})_{réelle} = (P_{2VC1})_{initiale} + ((P_{2VC1})_{initiale} \times 0,32) + 40 \quad \text{Équation 3}$$

$(P_{2VC1})_{réelle}$ = Profondeur de la carotte 2VC1 après correction.

$(P_{2VC1})_{initiale}$ = Profondeur de la carotte 2VC1 avant correction.

Il en résulte l'ajustement des profondeurs pour le profil des teneurs en eau présenté sur la Figure 28. 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.

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 non optimal pour 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 38), ce qui peut engendrer un décalage des maxima et minima ;
- les analyses chimiques n'ont pas forcément été faites sur des niveaux similaires (environ un échantillon de 5 cm tous les 15 cm a été analysé sur chacune des carottes).

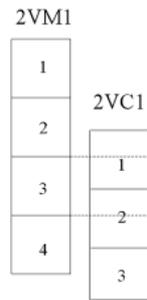


Figure 38 : Schéma d'une possibilité de correspondance entre 2VM1 et 2VC1.

Pour ces différentes raisons, il est préférable de garder cet ajustement qui semble très bon pour les teneurs en eau et globalement correct pour l'ensemble des éléments.

Notons par ailleurs que l'analyse du signal sédimentaire fin effectuée sur deux carottes jumelles aux carottes 2VM1 et 2VC1, indique également un tassement d'environ 30 % (Vrel, 2009).

9.1.2. Raccordement des carottes 2VC1 et 3VC2

Le raccordement entre les carottes 2CV1 et 3VC2 s'est fait par les analyses des éléments stables à partir d'une longueur de recouvrement de 170 cm. Les teneurs en eau ne sont pas suffisamment variables dans les sédiments profonds pour permettre le raccordement des différentes carottes. 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, il est nécessaire de faire une correction de 40 cm, pour tenir compte d'une perte de sédiment en surface lors du carottage.

Une fois ces raccordements effectués, les profondeurs sont corrigées pour obtenir un profil unique de chaque élément analysé.

9.2. Méthodes de datation

Il s'agit maintenant de dater les profils synthétiques des différents paramètres sédimentaires et géochimiques précédemment obtenus. Plusieurs méthodes 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 du signal appliquée à la sédimentation (imagerie SCOPIX®), ainsi que la comparaison avec les données de la carotte prélevée à Bouafles, site en amont du barrage de Poses (Chapitre III), elle-même datée.

9.2.1. *Evolution de la bathymétrie au point de carottage déduite de cartes bathymétriques historiques*

Huit cartes bathymétriques du GPMR ont permis de calculer des taux de sédimentation au point de

carottage au cours de différentes périodes de temps (Tableau 2).

Tableau 2: Données bathymétriques relevées sur les cartes au point de carottage, et taux de sédimentation associés.

Années	Bathymétrie au niveau du site 2 (m CMH)	Taux de sédimentation moyen (cm.an ⁻¹)
1931	0,1	1
1975	0,6	21
1985	2,7	20
1986	2,9	40
1987	3,3	0
1988	3,3	-30
1989	3,0	40
1992	4,2	20
1994	4,6	-10
1997	4,3	-7
2000	4,1	9
2008	4,8	

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 2, les taux de sédimentation négatifs pour la période récente peuvent correspondre soit à une érosion, soit à un tassement du sédiment (ou les deux). 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 sur les mesures les plus anciennes, seuls les résultats suivants ont été utilisés pour la suite de ce travail de datation :

- un taux de sédimentation moyen de 12,5 cm.an⁻¹ entre 1975 et 2008 ;
- le tassement sous poids propre du sédiment est amplifié par le phénomène d'émersion à partir de 1992 qui augmente la contrainte effective verticale au sein du sédiment.

9.2.2. Mise en évidence de repères chronologiques

Les radionucléides artificiels fournissent des repères chronologiques précis qui sont présentés dans le Tableau 3.

Le sommet de la carotte de vase molle correspond à la date de son prélèvement, le carottier gravitaire (Paragraphe 4) n'engendrant pas de perte de sédiment en surface.

Un pic de ¹³⁷Cs dû aux retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl est visible à 202,5 cm de profondeur. Le transfert des particules déposées sur le bassin versant de la Seine est

considéré comme "instantané" pour ce travail de datation ; ce pic est donc daté de la date du maximum de concentration de ^{137}Cs dans l'air en France suite à l'accident, soit le 1^{er} mai 1986 (IRSN, 2006).

A partir de 1954, une installation nucléaire de la région parisienne a procédé à des rejets contrôlés de radionucléides émetteurs alpha vers la station d'épuration d'Achères, dont la trace est potentiellement décelable en Seine. Ces rejets présentent un maximum au cours de l'année 1975 (Chapitre VI). A 382,5 cm, on observe dans le profil, un maximum de ^{238}Pu à 1 440 mBq.kg⁻¹, avec un ratio $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ de 3,6 qui signe un rejet typiquement industriel. Dans cette l'étude, ce maximum est daté à juin 1975.

Dans la partie inférieure du profil, on observe des valeurs élevées de ^{137}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 à partir de 1954 ; or ici, le ^{137}Cs passe d'une valeur inférieure à sa limite de détection à 593,5 cm de profondeur, à une valeur de 23 Bq.kg⁻¹ dans l'échantillon suivant, soit à 588,5 cm de profondeur. Une partie de l'enregistrement sédimentaire apparaît tronqué, soit artificiellement (par dragage), soit par érosion naturelle, entraînant ainsi une perte d'information.

Tableau 3 : Repères chronologiques connus 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	Retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl (max de ^{137}Cs)
1975,5	382,5	Rejets d'une installation nucléaire de la région parisienne (max de ^{238}Pu)
1963	≈590	Retombées atmosphériques des essais nucléaires (max de ^{137}Cs) Signal tronqué par une érosion naturelle ou artificielle

Une étude menée sur les phosphogypses (Dillies, 2010) a permis de mettre en évidence un maximum de rejet en 1974 (Chapitre VI). La composition des phosphogypses étant variable, tous les contaminants liés à ces rejets ne montrent pas systématiquement un maximum 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 3.

9.2.3. Etude des cyclicités présentes dans la sédimentation par l'analyse du signal

Parmi les cyclicités présentes dans la carotte sédimentaire, nous cherchons à repérer celle du cycle

hydrologique permettant de nous donner une indication sur l'évolution du taux de sédimentation. Les carottes prélevées dans la Darse des Docks ont fait l'objet de radiographies aux rayons X. Les niveaux de gris des images SCOPIX® ont été extraits afin de servir de support à une analyse en ondelettes mettant en évidence 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 d'environ 12,5 cm.an⁻¹ (Paragraphe 10.2). Cette valeur moyenne est toutefois marquée d'une incertitude de quelques centimètres.
- 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 justifié de choisir un taux de sédimentation constant entre les différents repères chronologiques fixés.

9.2.4. 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

Pour dater la partie inférieure du profil de la Darse des Docks, le profil daté de la carotte prélevée en amont de la limite supérieure de l'estuaire (Bouafles) que nous étudierons dans le chapitre III, a été utilisé. La carotte de Bouafles présente un enregistrement complet des retombées atmosphériques des essais nucléaires, ce qui a permis de dater plus précisément les sédiments des années 1960 par rapport aux carottes de la Darse des Docks. Avant 1975, les isotopes du plutonium présents dans l'estuaire de la Seine proviennent essentiellement des retombées atmosphériques des essais nucléaires (Beaugelin-Seiller et al., 2004) et de rejets effectués en région parisienne (Chapitre VI). Ces sources de Pu se situent à l'amont de l'estuaire de la Seine et sont donc normalement décelables dans la carotte de Bouafles, tout comme dans celles de la Darse des Docks.

La comparaison entre les deux profils (Darse des Docks et Bouafles) est effectuée grâce au rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$. Ce rapport permet de s'affranchir des variations granulométriques d'un site à l'autre, mais également entre deux échantillons d'un même site.

Cette comparaison permet de dater la partie basse du profil de la Darse des Docks, c'est-à-dire la partie entre 520 et 625 cm. Sur ce tronçon, 3 analyses d'activité du plutonium ont été réalisées (Tableau 4).

Tableau 4 : Datation de la partie inférieure du profil en comparaison avec les données de Pu obtenues sur la carotte prélevée à Bouafles (n.d. = non détecté ; $0,5 < \text{L.D. } ^{238}\text{Pu} < 33 \text{ mBq.kg}^{-1}$; $0,9 < \text{L.D. } ^{239,240}\text{Pu} < 240 \text{ mBq.kg}^{-1}$).

Profondeur (cm)	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	Date la plus probable en comparaison avec le profil de Bouafles
523,5	$0,0448 \pm 0,008$	1967,5
583,5	$0,0037 \pm 0,001$	≈ 1960
603,5	n.d.	< 1945

Les dates établies dans le Tableau 4 à partir du rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, ne sont pas directement compatibles avec les activités de ^{137}Cs mesurées en bas du profil. Les activités de ^{137}Cs indiquent en effet que le maximum des retombées des essais nucléaires, daté de 1963 (Figure 39 : Chapitre 8), n'a pas été enregistré. Or, le Tableau 4 montre que les années 1960 et 1967 (dates encadrant le maximum des essais nucléaires) sont toutes les deux enregistrées.

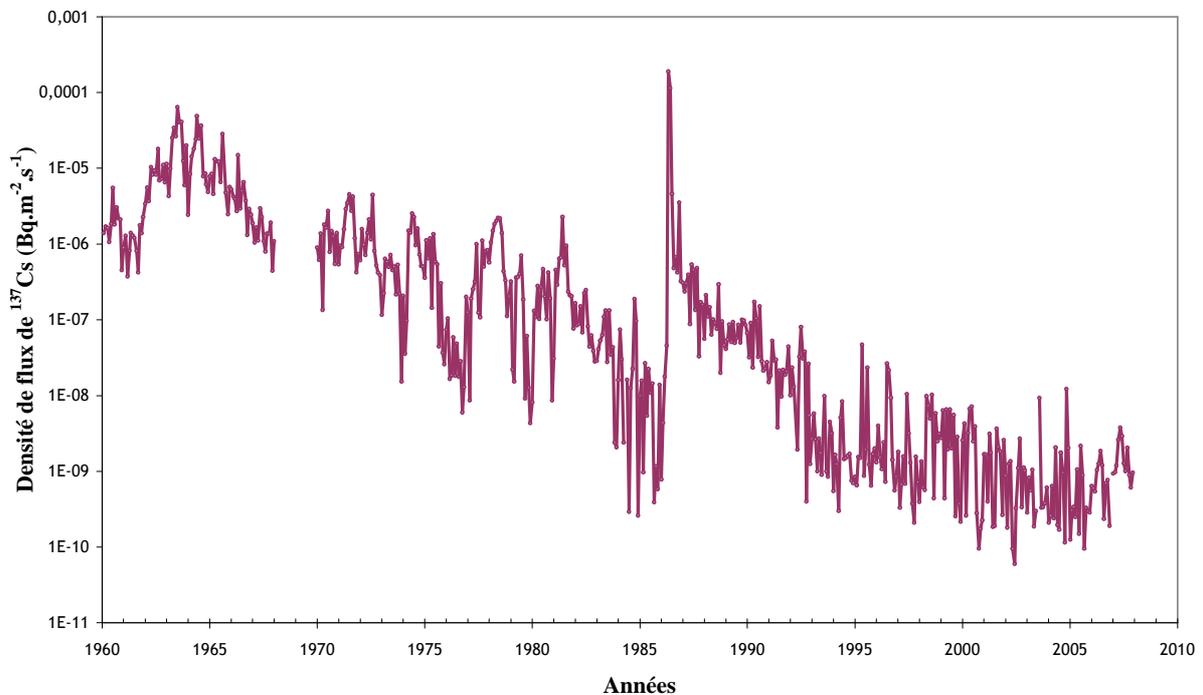


Figure 39 : Flux de ^{137}Cs déposé sur le bassin versant de la Seine par voie humide et sèche de 1960 à 2007 ; d'après données fournies par le Laboratoire de Mesures de la Radioactivité dans l'Environnement de l'IRSN.

Pour que les deux propositions soient conciliables, il doit y avoir un hiatus dans la sédimentation au niveau du maximum de retombées des essais nucléaires (Figure 40). La rupture ne concerne toutefois pas la totalité de la période 1960-1967, puisque de fortes valeurs de ^{137}Cs sont tout de même observées.

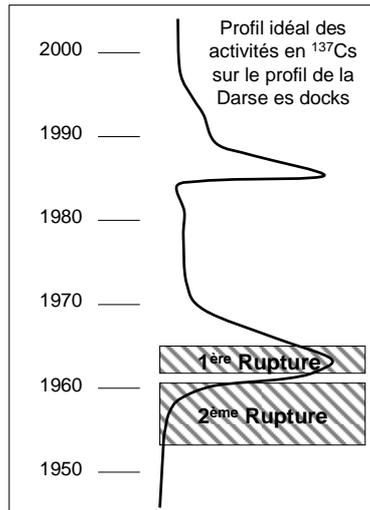


Figure 40 : Schéma illustrant les ruptures (hiatus) dans la sédimentation sur le site de la Darse des Docks.

La limite supérieure du premier hiatus est placée au cours de l'année 1965 (Figure 40). L'historique des dépôts de ¹³⁷Cs en France permet de mettre en évidence un pic de ¹³⁷Cs durant l'année 1962. 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 ¹³⁷Cs sont assez élevées, autour de 30 Bq.kg⁻¹ (Figure 41) ; il peut s'agir du ¹³⁷CS déposé au cours de cette année 1962, en tout ou partie. La limite inférieure du premier hiatus est donc fixée au cours de l'année 1962, soit 1962,5.

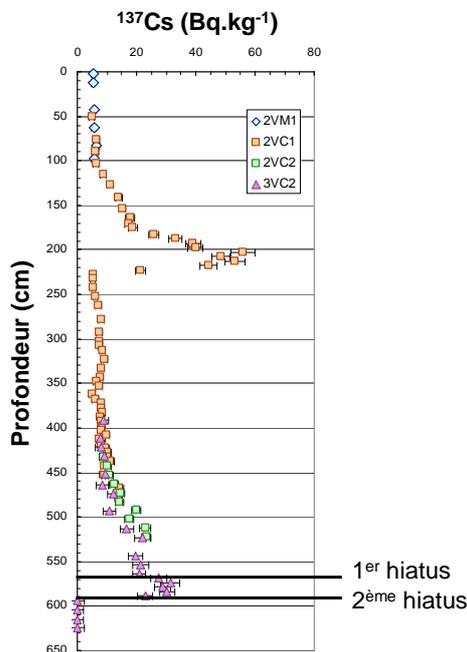


Figure 41 : Activité du ¹³⁷Cs sur le profil de la Darse des Docks ; (Reconstitution issue de 4 carottes prélevées sur le même site).

La limite supérieure du deuxième hiatus est vraisemblablement proche de l'année 1962 puisque les valeurs relativement élevées de ¹³⁷Cs passent à une activité inférieure à la limite de détection. La limite supérieure du deuxième hiatus est identifiée à l'année 1961. Il est impossible de connaître la limite inférieure de ce hiatus, la seule indication étant son antériorité à l'année 1954, date

correspondant à l'apparition du ^{137}Cs dans l'environnement ; cette dernière date lui est par conséquent arbitrairement attribuée.

9.2.5. Modèle d'âge du profil de la Darse des Docks

Les repères de datation identifiés dans le profil de sédiment de la Darse des Docks ont permis d'identifier deux grandes périodes présentant des dynamiques de dépôt, ainsi que des taux de sédimentation très différents. A partir du calcul de ces taux de sédimentation, l'ensemble des sédiments de la carotte a pu être daté. Avant 1990, la sédimentation est active, avec un taux de sédimentation d'environ 18 cm.an-1. Après 1990, la sédimentation ralentit, du fait du comblement progressif du bassin (Figure 42).

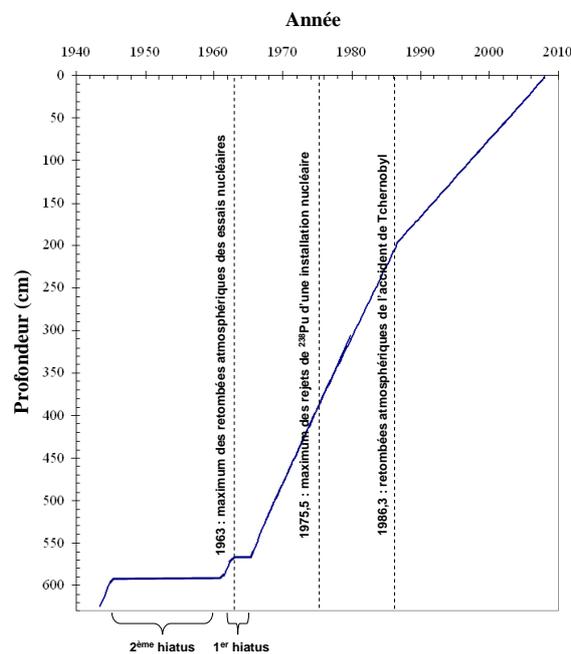


Figure 42 : Evolution de la sédimentation au cours du temps sur le site de la Darse des Docks.

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 radioécologiques couplées aux données historiques ont permis d'identifier ces lacunes chronologiques dans l'enregistrement sédimentaire.

9.3. Obtention des profils datés

Une fois la carotte datée, l'échelle des profondeurs est transformée en échelle de temps, avec une correspondance temps-profondeur pour chaque échantillon de carottes. On observe nettement les différences de sédimentation entre les années 1965-1990 et 1990-2010 (Figure 42). Dans la suite de ce travail, nous utiliserons l'échelle de temps à la place de celle des profondeurs, dans le but (1) de reconstituer un historique de la contamination particulière de ce site et de le présenter sous forme de séries temporelles ; (2) de comparer les données de ce site à celles des deux autres sites que nous

allons étudier par la suite.

Le précédent travail permet d'obtenir une datation des sédiments dont la précision peut être très bonne au voisinage des repères chronologiques ; il est indispensable à la suite de notre étude. Il va dans un premier temps permettre d'obtenir des séries temporelles de concentrations de chaque élément stable, ainsi que des séries temporelles d'activités des radionucléides. Par la suite, il sera possible de comparer les données géochimiques d'un site de prélèvement à l'autre, à condition de dater les sédiments des autres sites avec la même précision.

10. Dynamique sédimentaire du site

La sédimentation sur le site de la Darse des Docks est régie par plusieurs paramètres dont les variations du débit fluvial et les cycles de marées. Massei et al. (2010) ont montré que les variations des débits de la Seine sont elles-mêmes régies par des cyclicités : une cyclicité annuelle (cycle hydrologique de la Seine) et 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 ? Les processus de transfert des sédiments du bassin versant à la Darse des Docks sont-ils principalement pilotés par les variations de débits de la Seine ? A partir des techniques d'analyse du signal, nous allons essayer de répondre à ces questions.

10.1. Rappels méthodologiques

A partir des niveaux de gris de l'image SCOPIX® fournissant une mesure tous les 0,13 mm, donc à haute résolution spatiale, 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 (Annexe H). 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 permet de visualiser 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.

10.2. Evolution de la dynamique sédimentaire à court terme (inférieure à l'année)

La Darse des Docks, parallèle au chenal principal de la Seine, est en communication directe avec ce dernier par son pertuis ouvert vers l'aval. Les masses d'eau transitant dans le chenal principal viennent donc alimenter ce bassin. Elles sont régulièrement renouvelées par le phénomène de marée qui impose des différences de hauteurs d'eau allant de 2 à 3,5 mètres au cours d'un cycle semi-diurne, selon les coefficients de marée. Au niveau de ce bassin, le flot, d'une durée de 4 heures environ, est

assez brutal (on parle de "coup de flot") alors que la vidange lors du jusant, d'une durée de 8 heures environ, s'effectue sur un laps de temps plus long. Les MES pénètrent donc dans le bassin avec le flot, peuvent sédimenter pendant l'étape et une partie des particules introduites est donc susceptible de rester piégée au cours du jusant. En se référant au taux de sédimentation annuel, on peut calculer qu'en termes d'épaisseur, il se déposerait à chaque cycle semi-diurne une épaisseur de sédiment de l'ordre de 0,2 mm (Figure 43).

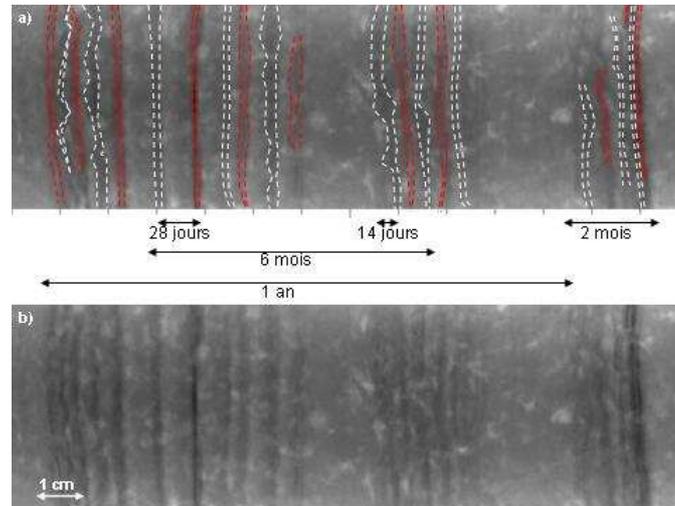


Figure 43 : Partie d'une image SCOPIX® de la carotte 2VC2 (positif : teintes claires = vides gazeux).
a) image avec délimitations des lamines et durées correspondantes de dépôt ; b) image seule.

L'analyse du signal effectuée sur les niveaux de gris relevés sur l'image SCOPIX® des carottes (Vrel, 2009) ne permet toutefois pas de mettre en évidence les cycles courts de marée (semi-diurnes). Le cycle le plus court mis en évidence est celui à 14 jours (semi-lunaire) : l'épaisseur de dépôt serait alors d'environ 5 mm. Certaines des lamines observables sur les carottes (Figure 43) correspondent très certainement à ces dépôts. Ces lamines ne sont pas systématiquement présentes sur l'ensemble de la carotte : les cycles de marée ne sont en effet pas le facteur forçant principal. L'analyse en ondelettes des niveaux de gris des images SCOPIX® montre que le cycle hydrologique est le paramètre le plus influant sur la sédimentation. Un cycle à 6 mois, fonction des équinoxes, a également été détecté, de même qu'un cycle d'une période de 2 mois. Actuellement, aucune explication n'est apportée sur l'origine de ce dernier cycle.

Ainsi, ce sont les cycles crue/étiage qui dominent le signal, avec des apports de sédiments beaucoup plus importants lors des crues (Deloffre et al., 2005 ; Laguionie, 2006). En période d'étiage, l'influence des débits fluviaux sur le transport des MES est moindre ; les phénomènes de marée ont alors plus d'influence sur les MES. Par conséquent, les lamines observées à l'échelle semi-lunaire et lunaire sont probablement plus marquées en période d'étiage où le débit aura le moins d'influence.

Les analyses granulométriques effectuées sur des lamines individuelles ont montré qu'à une échelle très fine, les facteurs influençant la sédimentation diffèrent quelque peu. Ainsi quelques lamines comportent du matériel plus sableux que le reste des sédiments. Ces lamines sont donc le résultat d'apports effectués avec des vitesses de courant supérieures : maximum de crue, turbulence ou

courant de flot avec de forts coefficients de marée. Etant donné la faible fréquence de ces lamines comportant du matériel sédimentaire plus grossier, il s'agirait plus probablement d'apports de marée associés à de forts coefficients. La marée, malgré sa faible influence sur la sédimentation dans son ensemble, semble donc marquer quelques fines tranches de sédiments.

10.3. Evolution de la dynamique sédimentaire à long terme (quelques dizaines d'années)

Une analyse en ondelettes correspond à une décomposition temps-fréquence (ici le temps est représenté par la profondeur de la carotte) par un set de courtes oscillations bien localisées dans le temps ou l'espace de résolution variable, depuis les très basses vers les très hautes résolutions. Elle permet de visualiser clairement par un code couleur les fréquences influençant fortement le signal. Sur la Figure 44, on repère des signaux bien marqués en violet. Plusieurs cyclicités sont mises en évidence à partir de cette analyse : $0,11 \text{ cm}^{-1}$, $0,07 \text{ cm}^{-1}$, $0,03 \text{ cm}^{-1}$, $0,02 \text{ cm}^{-1}$ (Annexe H).

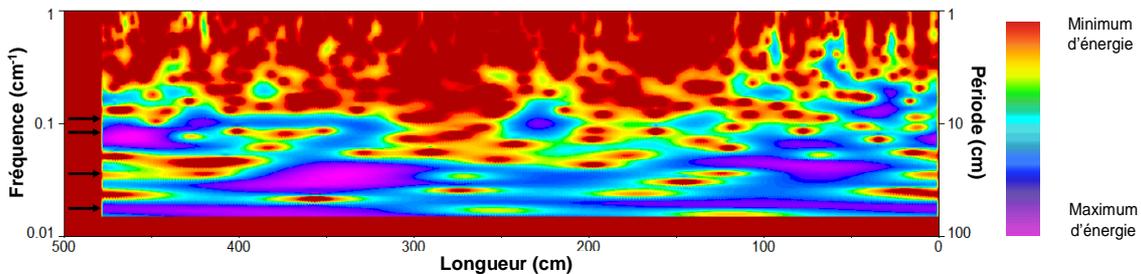


Figure 44 : Analyse en ondelettes sur les niveaux de gris de la carotte 2VC2 après traitement des données par un filtre de Savitzky-Golay.

Le cycle hydrologique correspond aux fréquences $0,11 \text{ cm}^{-1}$ et $0,07 \text{ cm}^{-1}$: le taux de sédimentation diminuant au cours de la période la plus récente (1992-2008), la fréquence du phénomène crue/étiage augmente. 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. La fréquence des cycles hydrologiques représente 21 % de la variance du signal.

Les deux autres fréquences (2-3 ans et 5-7 ans) correspondent à des cycles climatiques identifiés grâce à une comparaison avec les travaux de Massei et al. (2010) sur les débits de la Seine. Il s'agit pour l'un d'entre eux (5-7 ans), d'un cycle de la NAO (North Atlantic Oscillation). 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, soit 17 % de la variance du signal. A cet endroit abrité de l'estuaire fluvial, le débit a une influence majeure sur la sédimentation, et par conséquent, les cycles climatiques influençant le débit sont enregistrés et préservés dans la sédimentation.

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, influence des bateaux, transport des docks...) pourraient permettre cette évaluation.

10.4. Conclusion partielle

En conclusion, les variations du débit de la Seine, entraînant des fluctuations dans les apports en MES, est le premier facteur influençant la sédimentation. Les cyclicités identifiées dans les débits de la Seine (Massei et al., 2010) se retrouvent dans la sédimentation : le cycle hydrologique représente 21 % de la variance du signal, les cycles climatiques 17 % (dont un lié à la NAO, 4 %). La marée ne représente que 1 % de la variance du signal ; celle-ci a donc certainement un rôle dans le remaniement des sédiments, mais joue ici peu sur les apports. Outre l'influence des paramètres forçant associés à ces cyclicités, la sédimentation subit des modifications essentielles du fait du comblement du bassin : la Darse des Docks tendant à se combler, les taux de sédimentation diminuent à partir de la fin des années 1980. Le site d'étude étant émergé au cours de l'étiage, la sédimentation ne s'effectue plus qu'au cours des périodes de hautes-eaux saisonnières (crues). La zone de carottage a donc été soumise à deux régimes hydrodynamiques 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, même à partir de 1990, les variations du débit de la Seine soient restées le paramètre le plus influent sur la sédimentation.

11. Séries temporelles des éléments stables

Les variations des concentrations en éléments stables que l'on peut observer dans les différents profils présentés dans ce paragraphe peuvent être d'origine naturelle ou anthropique. La teneur dans les sédiments des éléments mesurés est souvent fonction de la granulométrie. Comme précisé dans le Chapitre I de ce mémoire, les séries temporelles de chaque élément-trace sont présentées sous forme de FE (Facteur d'Enrichissement), tandis que les éléments majeurs sont présentés en valeurs brutes.

Nous présenterons tout d'abord les évolutions temporelles des concentrations des éléments majeurs, puis celles des éléments-traces classés en 4 séries, dont les 3 premières dépendent des évolutions observées, et la dernière correspond aux terres rares.

11.1. Evolutions temporelles des concentrations en éléments majeurs

La composition de la matière particulaire transportée par les fleuves est en relation avec celle 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 transportent des sédiments aux compositions assez voisines en ce qui concerne les éléments majeurs (Jambon and Thomas, 2009). Les éléments majeurs sont essentiellement d'origine naturelle. Leur teneur peut varier en fonction de la granulométrie des sédiments, mais également en fonction de leur provenance. La composition d'un

échantillon de sédiments en éléments majeurs peut 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 45 : les concentrations sont exprimées en %.

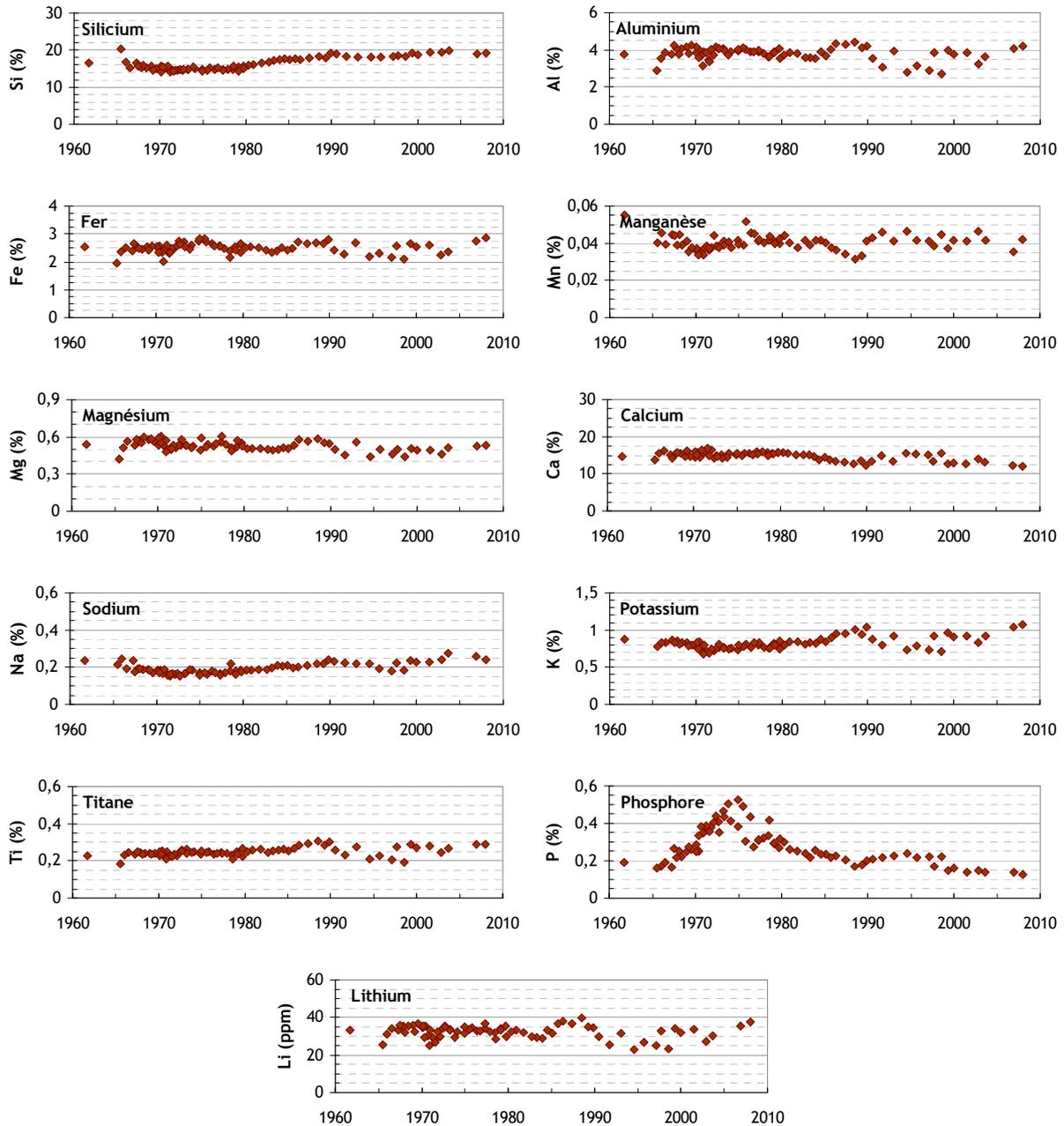


Figure 45 : Séries temporelles des concentrations en éléments majeurs (%) et en lithium (ppm) des sédiments de la Darse des Docks.

Cette figure comporte 11 graphiques, dont 10 représentent les séries temporelles de concentration des éléments majeurs : Si, Al, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, K, Ti et P. Le onzième graphique représente la série temporelle du Li ; cet élément n'est pas un élément majeur, mais il est très souvent corrélé à l'Al et certaines études l'utilisent comme élément de normalisation. Pour cette raison, nous avons choisi de le classer avec les éléments majeurs.

A l'exception du P, les concentrations en éléments majeurs sont peu variables au cours du temps dans les sédiments de la Darse des Docks.

La teneur en Al des sédiments de la Darse varie entre 2,7 et 4,4 % selon les périodes considérées, alors que la teneur en Al des shales est de 8,8 %. Le bassin versant de la Seine étant très crayeux, les sédiments de la Seine comportent moins d'argiles minéralogiques donc moins d'Al, d'où l'importance de la normalisation des éléments-traces pour effectuer une comparaison à cette référence. Avant 1990, les teneurs en Al sont proches de 4 % ; à partir de 1990, elles deviennent très variables, ce qui engendre des variations dans d'autres éléments majeurs dont les concentrations sont liées à celle de l'Al, tels que Fe, le Mg, le K, le Ti et le Li (Figure 45). Les concentrations en Ca et en P, au contraire, semblent suivre la même évolution que la perte au feu et sont par conséquent anticorrélées aux concentrations en Si. Le P présente des teneurs particulièrement élevées, avec un maximum à 0,53 % en 1975. Des apports anthropiques sont à l'origine de ces variations : des rejets de phosphogypses ont eu lieu dans les années 1970 au niveau de l'agglomération de Rouen (Chapitre VI). De nombreux éléments présentent des concentrations très variables entre 1990 et 2010 ; ces variations ne semblent pas être d'origine anthropique. Elles sont certainement liées à des sources variables d'apports sédimentaires en provenance du bassin versant.

11.2. Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des éléments-traces

Les éléments-traces se trouvent en majorité dans la fraction fine des sédiments, d'où l'importance de normaliser leurs concentrations à celles de l'Al, élément dont la teneur est fonction en premier lieu de l'abondance de la fraction argileuse. Nous avons classé ces éléments en 4 groupes dont 3 sont fonction de l'évolution temporelle de leurs FE :

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

Le quatrième groupe concerne les terres rares.

Douze éléments présentent, avec le P déjà mentionné, un pic de concentrations dans les années 1970 (Figure 46). Les rejets de phosphogypses sont à l'origine de ces concentrations en excès par rapport à la référence shales. Le Cd et le Bi présentent le FE le plus élevé, proche de 350. Le Cr, le Cu, l'Y et l'U ont des FE supérieurs à 10 durant cette période. Enfin, le Sr, le Be, le Ni, le Mo, le Ba et le Th présentent également un FE maximal dans les années 1970, entre 3 et 5 selon les éléments. Cependant, comme nous le verrons par la suite, la composition des phosphogypses étant variable (fonction du minerai transformé), les séries temporelles de ces éléments en tant que contaminants ne présentent pas des évolutions similaires (concentrations maximales variables dans le temps suivant les

éléments) ; de surcroît, les rejets industriels de phosphogypses n'en sont pas l'unique source. Ainsi, le Bi présente une valeur maximale en 1970 alors que la valeur maximale de l'U est atteinte en 1975.

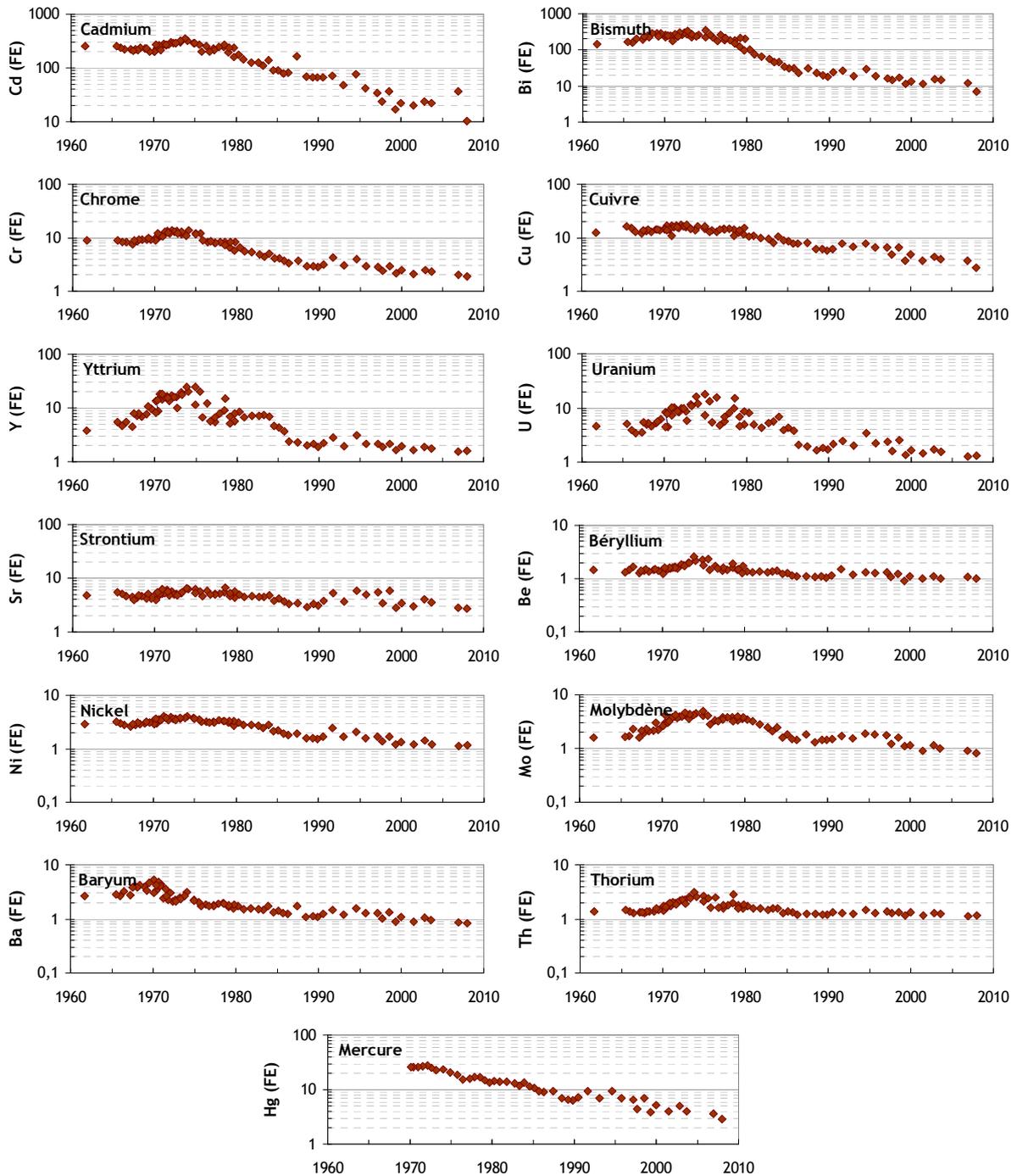


Figure 46 : Evolution des FE des éléments-traces influencés par les rejets de phosphogypses des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps.

Nous verrons dans le chapitre VI que les rejets de phosphogypses ne sont pas la seule source de contamination pour certains éléments. Nous remarquons que si quelques éléments (U, Be, Th et Y) présentent une contamination à partir de la fin des années 1960, d'autres présentent déjà des valeurs élevées au début des années 1960.

Dix éléments présentent des FE quasi constants dans le temps : V, Co, Ga, Ge, Rb, Zr, Nb, Cs, Hf et Ta (Figure 47). Les FE sont proches de 1 pour les éléments suivants : V, Co, Ga et Rb ; ces éléments présentent donc une signature de type shales. Le Ge, le Zr, le Nb, le Cs, l'Hf et le Ta 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 shales, ce qui nous laisse penser que ces enrichissements sont naturels et liés à la composition du bassin versant. 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 Co, Ge, Zr, et Hf.

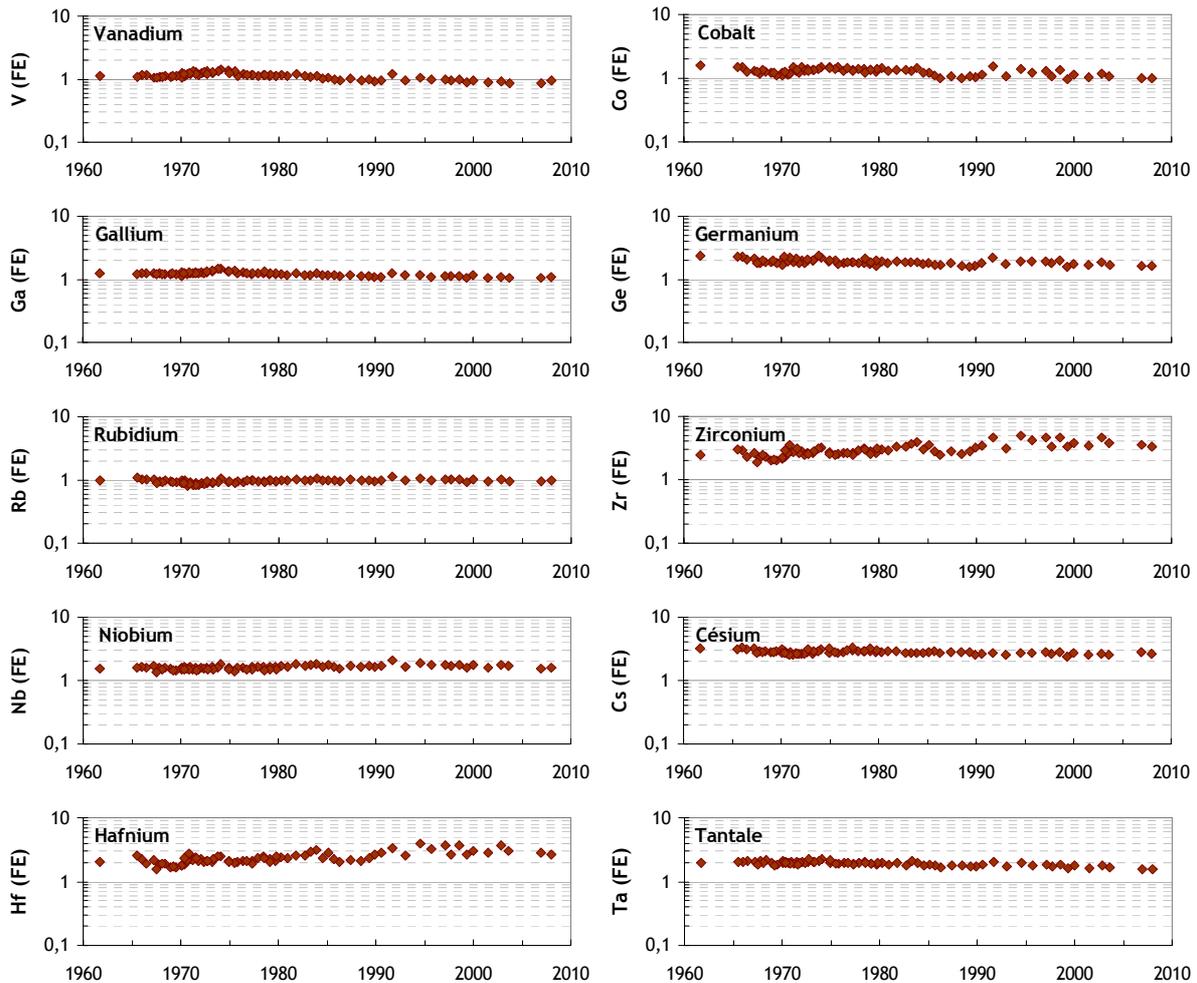


Figure 47 : Evolution des FE des éléments-traces des sédiments de la Darse des Docks présentant peu de variations au cours du temps.

Sept éléments présentent des FE en constante diminution au cours du temps : Zn, As, Ag, Sn, Sb, W, Pb (Figure 48). As, Sb et W ont un FE proche de 10 dans les années 1960 ; dans les années 2000, leurs teneurs reviennent à la normale avec un FE proche de 1. Zn, Sn et Pb 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, Ag présente un FE de 500 dans les années 1960 et de 50 dans les années 2000. Cependant, si la teneur en Ag dans les shales est de 0,07 ppm (Turekian and

Wedepohl, 1961), elle est en moyenne de 23 ppm dans les MES issues des grands fleuves réputés non ou peu pollués (Jambon and Thomas, 2009), ou encore de 2,7 ppm en moyenne dans les sédiments du bassin de la Seine (Gounou, 2008). Les FE calculés ici pour cet élément sont donc très probablement surestimés, la référence shales demande à être améliorée pour cet élément. Globalement, les éléments de cette troisième série témoignent d'une décontamination très progressive du stock sédimentaire mobilisable sur le bassin versant de la Seine.

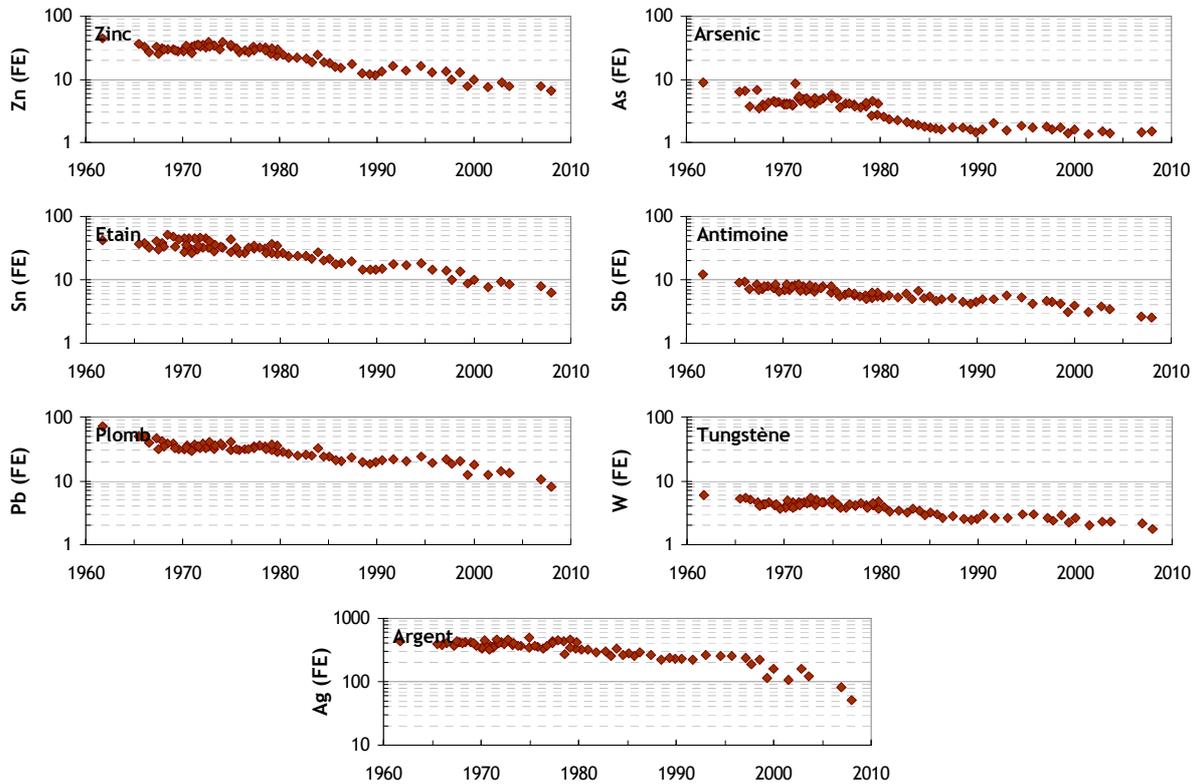


Figure 48 : Evolution des FE des éléments-traces des sédiments de la Darse des Docks en diminution constante au cours du temps.

11.3. Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des terres rares

Les 14 terres rares analysées présentent toutes le même profil. Leurs séries temporelles sont représentées sur la Figure 49. 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, leur teneur revient à la normale avec un FE proche de 1.

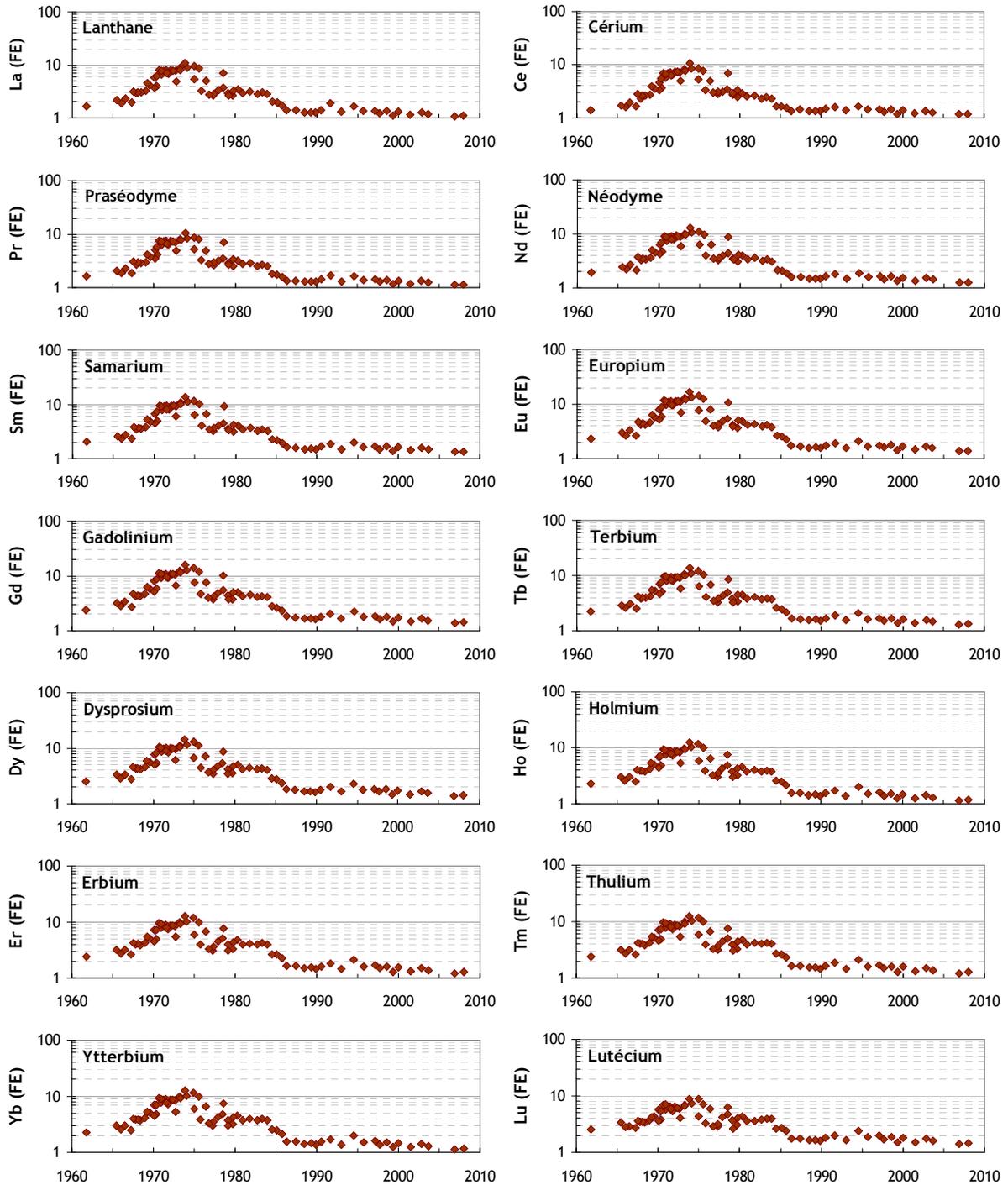


Figure 49 : Evolution des FE des terres rares dans les sédiments de la Darse des Docks au cours du temps.

La Figure 50 présente le spectre des terres rares de deux échantillons : un échantillon récent (2VM1-003) et un échantillon daté de 1975 (2VC1C-011). Le premier présente un spectre de type shales, alors que le second est très enrichi par rapport aux shales ($FE \approx 10$) mais ne fait apparaître aucun fractionnement.

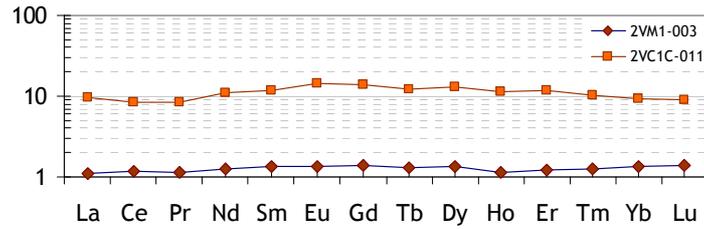


Figure 50 : Spectre des teneurs en terres rares normées aux shales pour deux échantillons prélevés dans les carottes de la Darse des Docks (1) à 12 cm de profondeur, période récente, (2) à 392 cm de profondeur, période de rejet des phosphogypses.

L'évolution des anomalies en Eu est représentée sur la Figure 51. Alors que le rapport Eu/Eu^* est stable et très proche de 1 entre 1985 et 2010, une légère anomalie positive est détectée entre 1965 et 1985 avec une valeur maximale atteignant 1,22. Cette légère anomalie peut être due à la nature du minerai traité ou au procédé de fabrication de l'acide phosphorique.

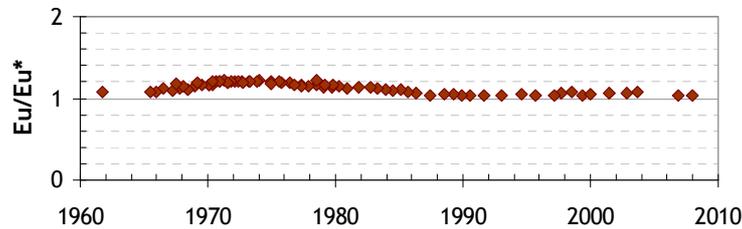


Figure 51 : Série temporelle de l'anomalie en Eu calculé par l'expression $Eu/Eu^* = 3Eu_N / (2Sm_N + Tb_N)$ avec Eu la teneur mesurée dans les sédiments, Eu^* la teneur hypothétique en Eu, et Eu_N , Sm_N , et Tb_N les teneurs normées aux shales en Eu, Sm et Tb.

L'évolution des anomalies en Ce est représentée sur la Figure 52. Le rapport est relativement stable et proche de 1 entre 1985 et 2010. Avant 1985, il est instable, présentant des anomalies négatives de 1965 à 1972 et de 1980 à 1985. Il semble qu'une variation dans les origines des minerais traités soit plus à même d'expliquer les variations observées pour cette anomalie.

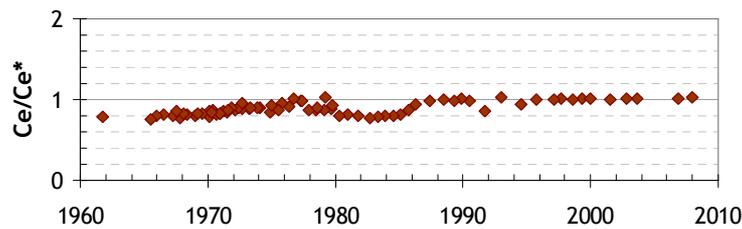


Figure 52 : Série temporelle de l'anomalie en Ce calculé par l'expression $Ce/Ce^* = 3Ce / (2La_N + Nd_N)$ avec Ce la teneur mesurée dans les sédiments, Ce^* la teneur hypothétique en Ce, et La_N et Nd_N , les teneurs normées aux shales en Eu, Sm et Tb.

Les rejets de phosphogypses ont engendré un enrichissement de l'ensemble des terres rares dans les sédiments déposés dans les années 1970, ainsi que des anomalies positives de l'Eu et négative du Ce.

12. Evolution temporelle des activités des radionucléides

Les radionucléides étudiés dans les sédiments sont soit d'origine naturelle, soit d'origine artificielle. Nous avons distingué ces deux classes de radionucléides dans deux sous-parties. Avant cela, la Figure 53 présente la série temporelle du potassium 40 (^{40}K), radionucléide d'origine naturelle qui permet de rendre compte des variations granulométriques du sédiment. Les teneurs en ^{40}K sont relativement stables dans les sédiments de la Darse des Docks : 200 à 350 Bq.kg^{-1} .

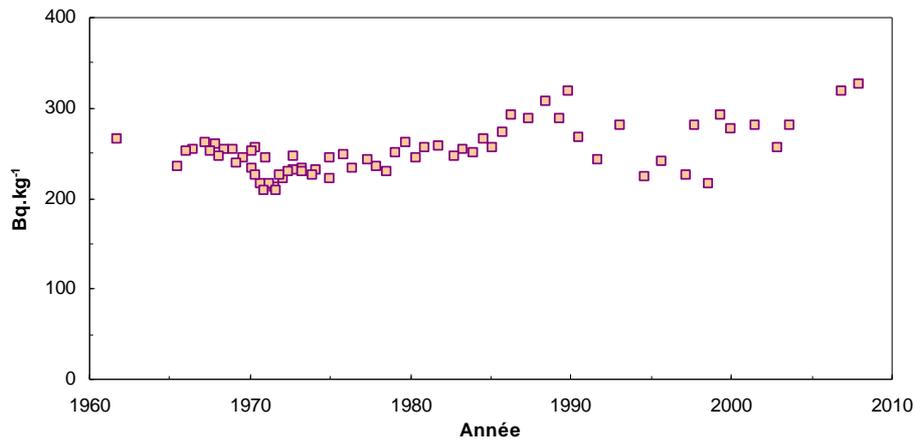


Figure 53 : Série temporelle de l'activité massique du ^{40}K dans les sédiments de la Darse des Docks, calculée à partir des mesures ICPMS.

12.1. Radionucléides d'origine artificielle

Deux séries d'activités en ^{137}Cs ont été portées sur la Figure 54 en fonction du temps.

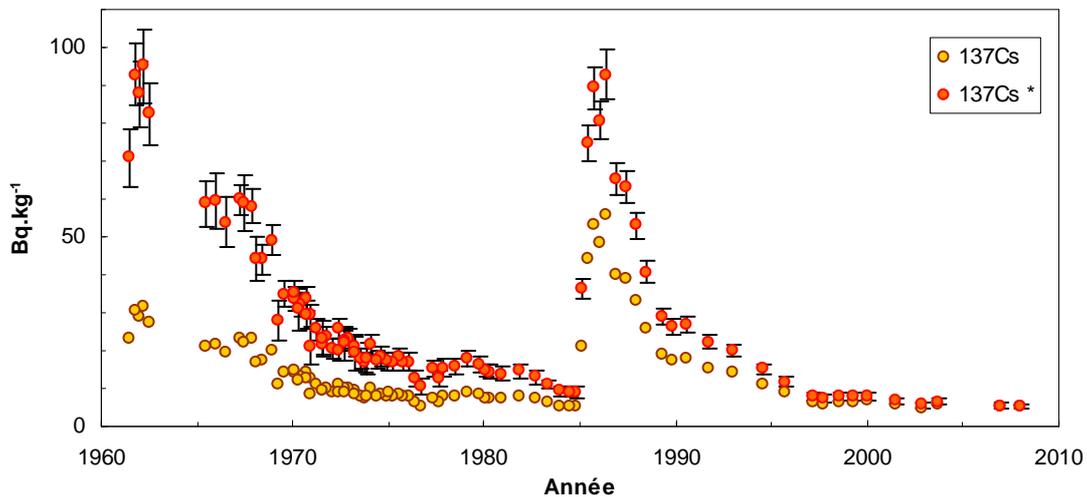


Figure 54 : Evolution temporelle des activités en ^{137}Cs dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt (notées $^{137}\text{Cs}^*$), exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec} \pm 2\sigma$.

La série notée ^{137}Cs représente les activités en ^{137}Cs rapportées à l'année 2010 ; ce sont les activités actuellement présentes dans les sédiments. La série notée $^{137}\text{Cs}^*$ représente les activités en ^{137}Cs corrigées de la décroissance depuis le dépôt ; elles décroissent d'un facteur 2 tous les 30,15 ans

(période du ^{137}Cs). Cette correction est rendue possible grâce à la datation des carottes. Il s'agit des activités qui étaient présentes dans le sédiment à l'époque de son dépôt. Elles permettent une comparaison avec les activités mesurées par le passé. Chacune des deux séries présente deux pics suivis d'une décroissance. Le premier pic date du début des années 60 et correspond aux retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires dont le maximum a eu lieu en 1963 ; les activités actuelles de l'ordre d'une dizaine de Bq.kg^{-1} ont presque atteint la centaine de Bq.kg^{-1} à l'époque du dépôt. Le second pic est lié aux retombées de l'accident de Tchernobyl ; les activités corrigées de la décroissance atteignent 90 Bq.kg^{-1} . La diminution des activités du ^{137}Cs qui suit cette retombée ponctuelle se poursuit jusqu'au début des années 2000 : les activités actuelles sont de l'ordre de 5 Bq.kg^{-1} . Elles résultent de la rétention et du relargage différé du ^{137}Cs dans le bassin versant de la Seine et dans le lit du fleuve. Il est probable qu'une faible proportion de ^{137}Cs provienne d'autres sources qui seront discutées dans les chapitres VI et VII de ce mémoire.

L'évolution temporelle des activités en ^{238}Pu (Figure 55) montre un pic proche de 1500 mBq.kg^{-1} , en 1975, faisant suite à une lente augmentation amorcée en 1970. Ce pic est suivi par une décroissance d'allure exponentielle qui s'interrompt brutalement au début des années 90, à des activités d'une centaine de mBq.kg^{-1} . A partir de 1997, les activités en ^{238}Pu se stabilisent à une valeur moyenne d'environ 20 mBq.kg^{-1} . Le pic de 1975 est expliqué par des rejets contrôlés d'une installation nucléaire de la région parisienne de 1975, via la station d'Achères. Il constitue de ce fait un marqueur temporel précieux.

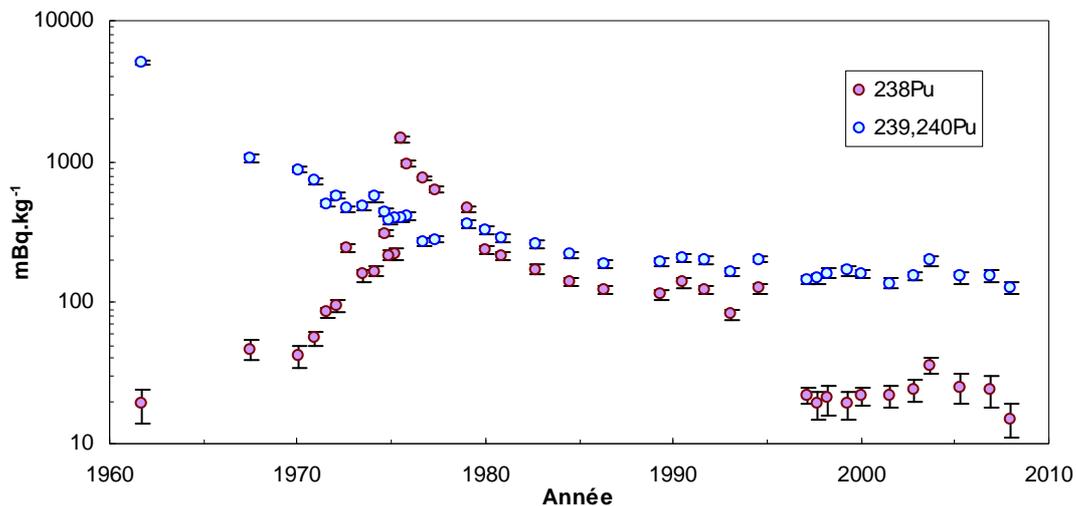


Figure 55 : Evolution temporelle des activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date de 2010 exprimées en $\text{mBq.kg}^{-1}\text{sec} \pm 2\sigma$. Les activités du ^{238}Pu sont corrigées de la décroissance depuis le dépôt (notées $^{238}\text{Pu}^*$).

L'évolution temporelle des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ (Figure 55) montre, quant à elle, un pic proche de 5000 mBq.kg^{-1} , daté de 1961, mais incomplètement décrit du fait des hiatus sédimentaires décrits au Paragraphe 9.2.4. Ces activités élevées ne peuvent être que partiellement attribuées aux retombées

atmosphériques des essais nucléaires ; il s'y rajoute la contribution d'une source industrielle (Chapitre VI). Les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ décroissent ensuite de façon exponentielle jusqu'au milieu des années 80 ; elles stagnent alors vers 200 mBq.kg^{-1} jusqu'en 1995, puis se maintiennent à la valeur de 150 mBq.kg^{-1} jusqu'à la fin de l'enregistrement en 2008.

Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (Figure 56) est également porté après correction de la décroissance du ^{238}Pu ; les valeurs sont cependant peu différentes du fait de 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 (rapport typique des retombées atmosphériques des essais nucléaires des années 1960). La valeur enregistrée en 1961 (0,006) confirme une activité 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 précédemment identifié. Après une décroissance jusqu'en 1980, il varie peu, et est compris entre 0,9 et 0,6 jusqu'en 1995. Suite à une nette rupture en 1995, le rapport isotopique se stabilise à environ $0,15 \pm 0,02$ sur la période 1997 à 2008.

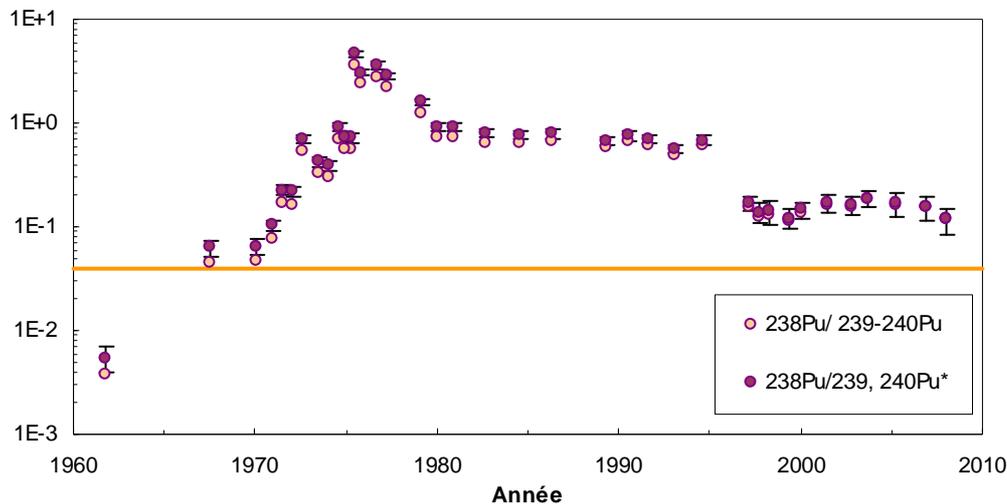


Figure 56 : Evolution temporelle du rapport d'activité $^{238}\text{Pu} / ^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance du ^{238}Pu depuis le dépôt, notées *.

La barre horizontale représente la valeur de 0,04, caractéristique des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

La rupture identifiée invite 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 explication définitive ne peut être validée à ce stade.

Les activités massiques en ^{241}Am (Figure 57) diminuent régulièrement entre 1961 (450 mBq.kg^{-1}) et 2008 (50 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 calculé en tenant compte de la production de ^{241}Am par le ^{241}Pu conduit à des valeurs du même ordre de grandeur (2 à 5 ; d'après

Holm and Persson (1978)) mais ne permettent pas d'exclure un apport provenant des installations nucléaires de la région parisienne.

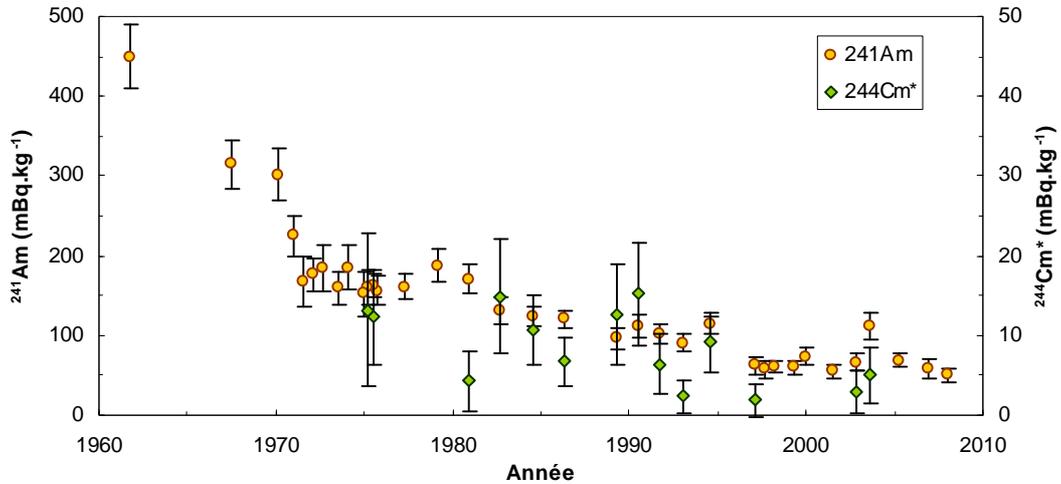


Figure 57 : Evolution temporelle des activités en ^{241}Am et ^{244}Cm dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées * pour le ^{244}Cm , exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$.

La Figure 57 présente également les activités en ^{244}Cm rapportées à la date du dépôt ; elles sont comprise entre 2 et 13 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 30 000 en 1961 et a cru rapidement eu égard à la période du ^{244}Cm .

12.2. Radionucléides d'origine naturelle

Dans cette partie sont présentés les radionucléides des chaînes naturelles du ^{232}Th , ^{235}U et ^{238}U . Bien qu'ils soient d'origine naturelle, les activités de certains de ces radionucléides sont fortement impactées par les rejets de phosphogypses (radioactivité naturelle renforcée).

Les activités en radionucléides de la chaîne du ^{232}Th , mesurées par spectrométrie gamma (^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; activités en ^{208}Tl corrigées du rapport d'embranchement de 0,36) ou déduites des mesures effectuées par ICP-MS (^{232}Th) suivent toutes la même évolution (Figure 58) : augmentation depuis le début de l'enregistrement en 1961 et pic aux alentours de 70 Bq.kg^{-1} en 1973 (soit un excès de 2 à 3 par rapport aux shales), puis décroissance jusqu'en 2008. Comme les phosphorites, matière première pour la production d'acide phosphorique, les phosphogypses sont réputés déficitaires en Th (Metzger et al., 1980). Le pic observé en ^{232}Th et ses descendants est manifestement associé aux rejets de phosphogypses, ainsi que l'absence de fractionnement entre les radionucléides de la chaîne. Ceci évoque une dissolution incomplète de minéraux thorifères résistants et présents en traces dans les

phosphorites comme la monazite. L'excès en lanthanides (Paragraphe 11.3), peut aussi s'expliquer de cette façon.

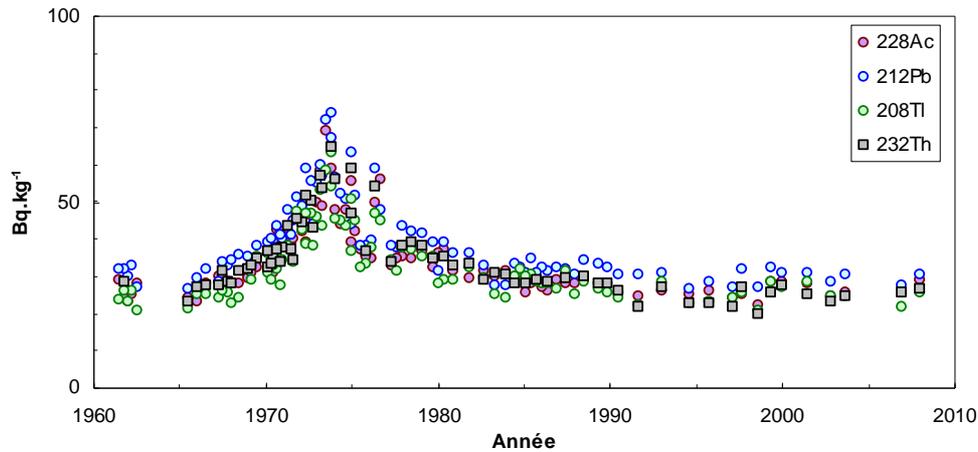


Figure 58 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{232}Th : ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; les activités en ^{232}Th ont été calculées à partir des mesures effectuées par ICP-MS ; les activités en ^{208}Tl ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les activités en ^{212}Bi , très voisines de celles en ^{212}Pb , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$.

Dans la série de ^{235}U , les activités en ^{227}Th sont supérieures à 40 de Bq.kg^{-1} , elles sont en excès d'un facteur 2 environ par rapport à celles de ^{235}U . Elles suivent la même évolution temporelle que celles du P, de ^{238}U ou du ^{232}Th et sont liées aux rejets de phosphogypses (Figure 59). Elles sont d'ailleurs mesurables uniquement pendant la période de ces rejets. Le déséquilibre ^{235}U - ^{227}Th résulte vraisemblablement d'un fractionnement au cours du traitement chimique dans lequel le Th est beaucoup moins soluble que l'U, 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}Pa ; période 32700 ans). Le rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ est de l'ordre de 15 ± 4 , c'est-à-dire légèrement inférieur à la valeur attendue de 20, pour un sédiment naturel. La mesure de ^{235}U par spectrométrie gamma est cependant délicate.

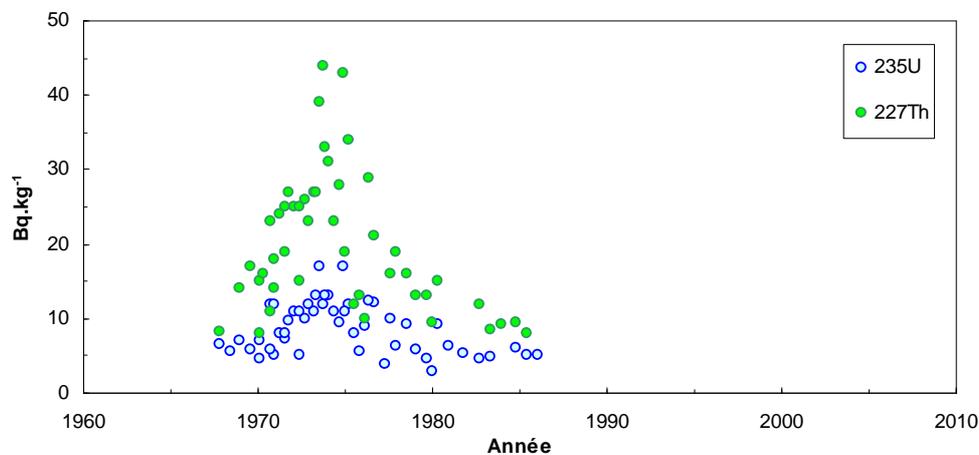


Figure 59 : Evolution temporelle des activités en ^{235}U et ^{227}Th ; valeurs en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$.

Les activités en radionucléides de la chaîne du ^{238}U , mesurées par spectrométrie gamma (^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb) ou déduites des mesures effectuées par ICP-MS (^{238}U) suivent la même évolution que celles précédemment décrites et sont liées aux rejets de phosphogypses (Figure 60). On note toutefois un net fractionnement entre les radionucléides du début de la chaîne (^{238}U et ^{234}Th) et le ^{226}Ra et ses descendants. Ce fractionnement résulte (comme déjà évoqué pour l' ^{235}U) de la répartition de ces 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 (comme 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}U - ^{227}Th , l' ^{238}U et le ^{234}Th sont ici à l'équilibre : cet équilibre a été atteint après production des phosphogypses, le ^{234}Th étant le descendant direct et de courte période (24 jours), de l' ^{238}U . Les activités en ^{226}Ra atteignent plus de 1500 Bq.kg^{-1} . C'est environ 50 fois plus que ce qui serait observé en l'absence de toute influence industrielle.

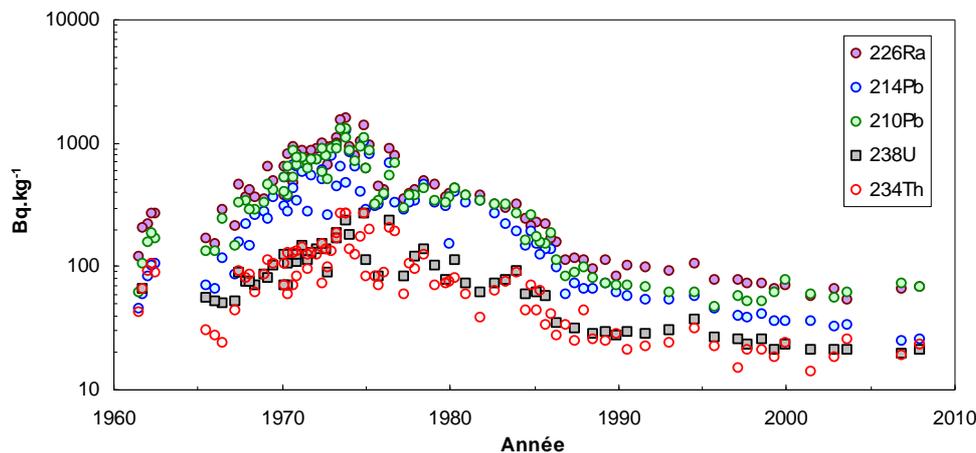


Figure 60 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne de l' ^{238}U : ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb ; les activités en ^{238}U ont été calculées à partir des mesures effectuées par ICP-MS ; les activités en ^{214}Bi , très voisines de celles en ^{214}Pb , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$.

13. Conclusion

La sédimentation dans la Darse des Docks présente des caractéristiques idéales pour retracer l'histoire de la contamination dans l'estuaire fluvial de la Seine. En effet, la sédimentation est régulière et active, et aucune marque de bioturbation ou d'érosion n'est détectée par imagerie SCOPIX® des carottes. Seule la base du profil est perturbée par deux hiatus sédimentaires. Les sédiments déposés dans la Darse des Docks sont fins et présentent donc une bonne affinité pour les contaminants métalliques et les radionucléides que nous étudions. De plus, à l'échelle de notre échantillonnage, les sédiments présentent peu de variations granulométriques, ce qui permet une comparaison plus aisée des analyses effectuées entre les différents échantillons. A plus petite échelle,

nous observons la présence de fines lamines, témoins de l'influence des cycles de marées sur la sédimentation. Cette influence reste faible puisque la sédimentation est essentiellement dominée par le cycle hydrologique, avec des apports de MES conséquents en période de crue. La sédimentation dans la Darse des Docks a subi un ralentissement depuis 1990, le site se comblant peu à peu. L'enregistrement sédimentaire reste tout de même complet.

Plusieurs carottes ont été prélevées dans la Darse des Docks dans le but d'obtenir un profil de contamination complet. Il a été, par conséquent, nécessaire de coupler ces différents supports pour obtenir un profil de contamination unique. Une fois ce travail effectué, les sédiments ont été datés en grande partie par l'identification de trois événements enregistrés dans les carottes : (1) les retombées atmosphériques des essais nucléaires, (2) l'accident de Tchernobyl, (3) les rejets autorisés d'une installation nucléaire. La datation de ces objets a permis de représenter les analyses des divers éléments mesurés sous forme de séries temporelles de concentration.

Les analyses des éléments majeurs effectuées sur les sédiments de la Darse des Docks ne révèlent pas d'anomalie particulière, mis à part dans le cas du P qui présente un enrichissement dans les années 1970 du fait de rejets industriels au niveau de l'agglomération de Rouen (rejets de phosphogypses). Le Ca, majoritairement lié aux carbonates, présente également des teneurs élevées dans les sédiments ; cela est dû à la nature crayeuse du bassin de la Seine. Parmi les éléments-traces, différentes évolutions sont observées. Certains éléments présentent des profils stables dans le temps et des FE proches de 1. Ils ne semblent touchés par aucune contamination (Ge, Rb, Ta...). D'autres éléments présentent des enrichissements en diminution constante au cours du temps (Zn, As, Ag...). Si ces contaminants proviennent du bassin versant de la Seine, nous repérerons une contamination identique dans les sédiments de Bouafles (Chapitre III). Enfin, les concentrations de plusieurs éléments sont impactées par les importants rejets de phosphogypses des années 1970. Les éléments stables ne sont pas les seuls à être influencés par ces rejets. Les radionucléides des chaînes du ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th montrent aussi des activités anormalement élevées dans les années 1970. Les sédiments de la Darse des Docks sont également marqués par des radionucléides d'origine artificielle : le ^{137}Cs essentiellement issu des retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, les isotopes du Pu et le ^{241}Am issus des retombées atmosphériques des essais nucléaires et des rejets contrôlés d'une installation nucléaire. Les sources des différentes contaminations observées dans les sédiments de la Darse des Docks sont étudiées plus précisément dans les Chapitre VI et VII.

CHAPITRE III :
Enregistrement sédimentaire
de la contamination
en amont de l'estuaire de la Seine

1. Introduction

Le carottage dans la Darse des Docks a permis d'étudier l'évolution de la contamination en éléments métalliques et en radionucléides au cours du temps dans l'estuaire fluvial de la Seine. Les sources de certaines contaminations présentes dans les sédiments carottés sont en partie connues. Cependant, avec ce seul site de carottage, il est impossible de savoir si un contaminant provient uniquement d'une source intra-estuarienne (e.g. les rejets de phosphogypses) ou s'il existe une contribution du bassin versant. Afin de pouvoir évaluer l'importance des contaminations intra-estuariennes, il s'est donc avéré nécessaire d'effectuer une opération semblable à celle réalisée dans la Darse des Docks sur un site localisé en amont du barrage de Poses, dans la Seine fluviale. L'enjeu a donc été de trouver un site de bon enregistrement sédimentaire en amont du barrage, mais restant relativement proche de l'exutoire afin d'être représentatif de l'ensemble des apports du bassin versant. Ce chapitre est construit comme le précédent. Il présente la façon dont le site de carottage a été choisi, ainsi que sa description. Il décrit ensuite la technique de carottage et d'échantillonnage puis présente les résultats des analyses sédimentaires et géochimiques. Une fois la datation de la carotte établie, ainsi que le fonctionnement sédimentaire du site qu'elle révèle, ce chapitre analyse les séries temporelles des différents éléments stables et radionucléides analysés dans les sédiments.

2. Choix du site de Bouafles

Les sites immergés présentant un enregistrement sédimentaire continu tels que celui de la Darse des Docks sont rares en Seine fluviale. De plus, il est souvent difficile de s'assurer que la sédimentation n'ait subi aucune perturbation post-dépôt. Il est possible de contourner ces difficultés en choisissant un site actuellement émergé mais recevant le plus régulièrement possible des apports de sédiments. Les plaines d'inondation peuvent répondre à ce critère : elles sont inondées en période de crue, époque durant laquelle la Seine transporte l'essentiel de ses MES. Depuis le début du siècle, des bassins ont été créés afin de limiter les crues de la Seine, les plaines d'inondation sont donc moins souvent immergées. Il reste cependant quelques zones peu surélevées par rapport au lit du fleuve, tels que d'anciens bras de la Seine régulièrement inondés l'hiver.

Les équipes du PIREN-Seine (Le Cloarec et al., 2011 ; Meybeck et al., 2007) ont déjà sélectionné et étudié des sites recevant des apports réguliers de la Seine. L'un d'entre eux, situé à Bouafles (PK 170), nous a semblé idéal pour notre étude pour plusieurs raisons :

- Ce site est situé à seulement 30 km en amont de l'exutoire du bassin versant de la Seine (Poses, PK 202), il est donc représentatif des apports de l'ensemble du territoire drainé par la Seine.

- C'est un ancien bras de la Seine qui fonctionne depuis 1960 comme une plaine d'inondation : des sédiments s'y déposent à chaque crue, ce qui implique un bon enregistrement de la contamination issue du bassin versant.
- Le profil de ^{137}Cs publié par Le Cloarec et al. (2011) et Meybeck et al. (2007) présente un très bon enregistrement des retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, ce qui permet d'obtenir deux repères temporels dans les sédiments carottés.
- Le site est facile d'accès et nous disposons de quelques informations historiques sur son comblement.

Ces différents atouts nous ont conduits à le choisir comme témoin de la contamination du bassin versant de la Seine depuis 50 ans. Nous allons maintenant décrire les différentes évolutions subies par ce site depuis le début du XX^e siècle.

3. Evolution du remplissage sédimentaire du site de Bouafles

Le site de carottage choisi, situé à Bouafles (département de l'Eure), se trouve sur la rive droite de la Seine (PK 170 ; Figure 61).



Figure 61 : Localisation du site d'étude (Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>).

Afin de mieux décrire la dynamique sédimentaire de ce site, et donc de dater plus précisément les carottes prélevées, des informations sur l'historique de ce site ont été recueillies, notamment, à partir des témoignages du Service de la Navigation de la Seine, ainsi que de M. Potel, maire de Tosny, et de M. Marc, agriculteur exploitant la prairie où a été prélevée la carotte.

A Bouafles, la Seine comprenait au XIX^e siècle de nombreux bras et îlots comme en témoigne une carte de 1898 (Figure 62). Sur cette carte, le site de carottage se trouve au nord-ouest de "La Grande Ile" dans le "Bras de Bouafles".

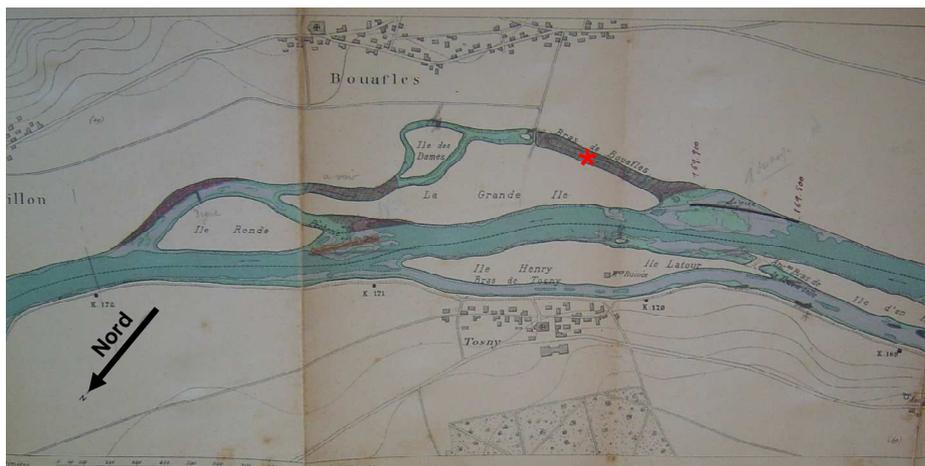


Figure 62 : Carte de 1898 représentant une portion de la Seine à Bouafles.
L'astérisque rouge indique le site de carottage
(Source: Service de navigation de la Seine ; communiquée par P. Bonté).

Afin de faciliter la navigation, de nombreux remaniements des berges ont été effectués au début du XX^e siècle, éliminant la présence de la plupart des îles visibles sur la Figure 62, par le comblement de différents bras. Le bras de Bouafles a reçu des matériaux provenant du dragage de la Seine (Service de la Navigation de la Seine, com. pers.) au début du XX^e siècle ; ces apports n'ont toutefois pas permis son comblement total, et ce bras est resté en eau de façon permanente jusqu'au début des années 1960 (M. Marc, com. pers.). La sédimentation a ensuite perduré, le comblement de ce bras se poursuivant de façon naturelle. Par la suite, le site a émergé en étiage, alors qu'il se trouvait immergé en période de crue. La sédimentation est alors devenue discontinue, ayant lieu exclusivement entre décembre et avril. Des sédiments ont ainsi continué de se déposer presque chaque année. Entre 1990 et 1995, une levée de terre a été construite dans le bras pour limiter les inondations (M. Marc, com. pers. ; Figure 63).

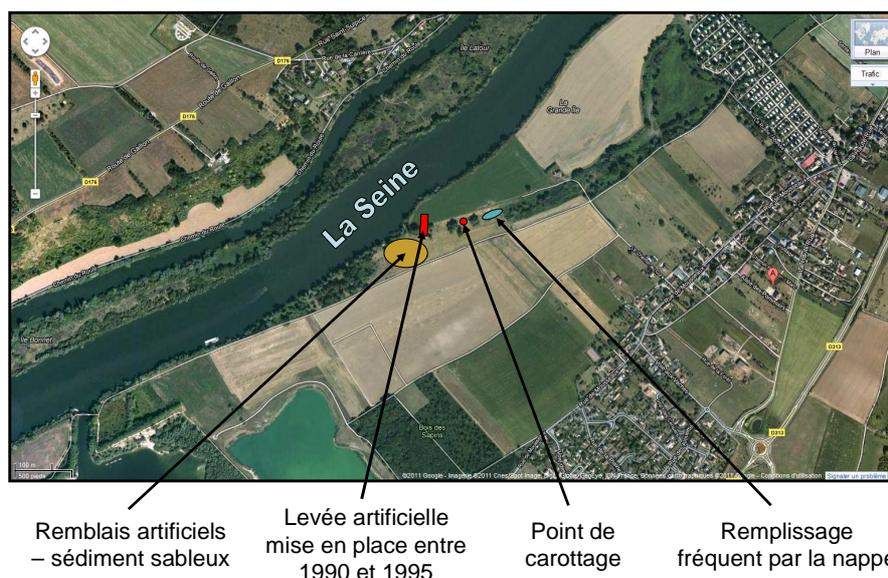


Figure 63 : Vue aérienne actuelle du site de carottage à Bouafles avec indications historiques (Source de la photographie : Google Maps, <http://maps.google.fr/maps>).

Plusieurs remblais artificiels ont été effectués à la fois en amont du bras mort, dans le champ (présence d'une grande butte de sédiments sableux, Figure 63), et autour de l'île Ronde (Figure 62). Mise à part la levée artificielle construite au début des années 1990, il semble qu'il n'y ait eu aucun remblai artificiel depuis les apports de sédiments dragués au début du XX^e siècle dans le bras de Bouafles.

A partir de l'été 1976, des bovins ont accès au bras de Bouafles qui est suffisamment asséché en période d'étiage pour qu'un pâturage s'y établisse. Il est donc probable que les troupeaux aient perturbé les dépôts à partir de cette période.

Si la topographie du site a certainement beaucoup évolué lors du XX^e siècle, le cours de la Seine semble avoir été fixé : les deux photographies aériennes de 1947 et 2009 montrent des morphologies très similaires, hormis l'ouverture de ballastières à l'amont du site dans la plaine alluviale (Figure 64). Sur ces deux photographies, les anciennes îles qui existaient avant la fermeture de ce bras sont facilement repérables.

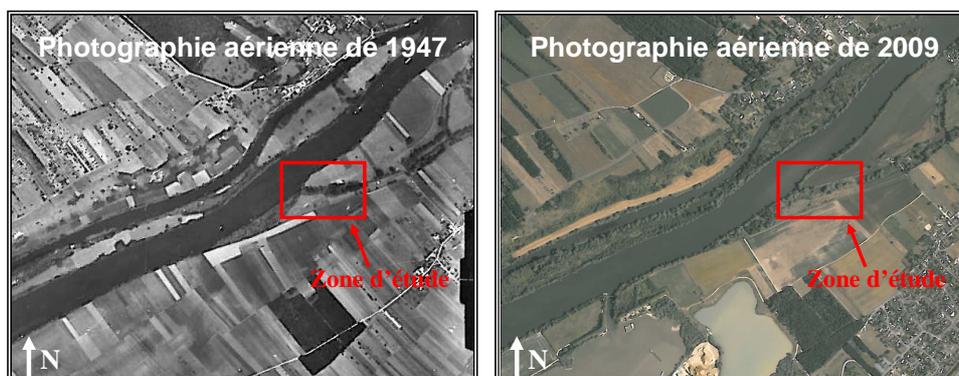


Figure 64 : Photographies aériennes de la partie sud du village de Bouafles en 1947 et en 2009 (Photographies IGN).

L'ancien bras de Bouafles dans lequel a été effectué le carottage est encore visible sur le terrain : la trace de ce bras est nettement marquée par une légère dépression en connexion avec la Seine. A la suite des différents témoignages obtenus sur ce site, nous pouvons considérer que la sédimentation y est discontinue à l'échelle annuelle (dépôt uniquement en crue), mais continue à l'échelle pluriannuelle puisque des sédiments s'y déposent chaque année. Lors de faibles crues, il est tout de même possible que la Seine n'ait pu inonder ce qui s'avère être *in fine* une partie proximale de plaine d'inondation.

4. Prélèvement des carottes sédimentaires

Les équipes du PIREN-Seine ont prélevé des carottes à divers endroits du bras mort. D'après leurs indications, le taux de sédimentation est variable à l'intérieur même de l'ancien bras de Bouafles : il est logiquement plus important à proximité du lit principal de la Seine et diminue quand on remonte ce bras. Souhaitant traverser de façon certaine les sédiments mis en place avant les années 1950 (Figure

65), nous avons effectué le carottage à environ 150 m du lit de la Seine où l'on observe un taux de sédimentation plus faible.



Figure 65 : Localisation du point de carottage (Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>).

Trois carottes ont été prélevées à 50 cm les unes des autres le 6 avril 2010 à l'aide d'un carottier à percussion (Figure 66). Elles ont été prélevées dans des tubes en PVC de 10 cm de diamètre et de 2 m de longueur. Le sédiment étant très compact, les carottages se sont avérés difficiles.



Figure 66 : Carottier à percussion déployé sur le site de Bouafles (Crédit photo : P. Lesueur).

Une fois les carottes prélevées, l'ogive et le "fond de chemise", extraits de la "peau d'orange", ont été découpés et conservés dans un sac plastique. Le sédiment s'étant tassé dans le tube lors du carottage, la partie vide du tube a été découpée, puis les carottes fermées. Les carottes extraites ont été nommées : BOUA-01-2010, BOUA-02-2010, BOUA-03-2010.

Le tassement engendré par le carottage a pu être évalué par des mesures effectuées sur le terrain (Figure 67) :

- la hauteur de tube dépassant du sol, une fois celui enfoncé à son maximum (H_{air}).

- la hauteur entre la surface du sédiment et celle du tube (H_{vide}).

Connaissant la longueur des tubes (H_{tube}), ces mesures ont permis de déduire l'épaisseur de sédiment carotté après tassement par carottage ($H_{tube}-H_{vide}=H_{séd}$), ainsi que la hauteur de sédiment réellement prélevée ($H_{tube}-H_{air}$). Le calcul du tassement (T) s'est effectué à partir de l'équation suivante :

$$T = \frac{H_{vide} - H_{air}}{H_{tube} - H_{air}} \times 100 \quad \text{Équation 4}$$

Cela revient à faire le rapport entre l'épaisseur de sédiment manquante à cause du tassement et l'épaisseur de sédiment sans tassement.

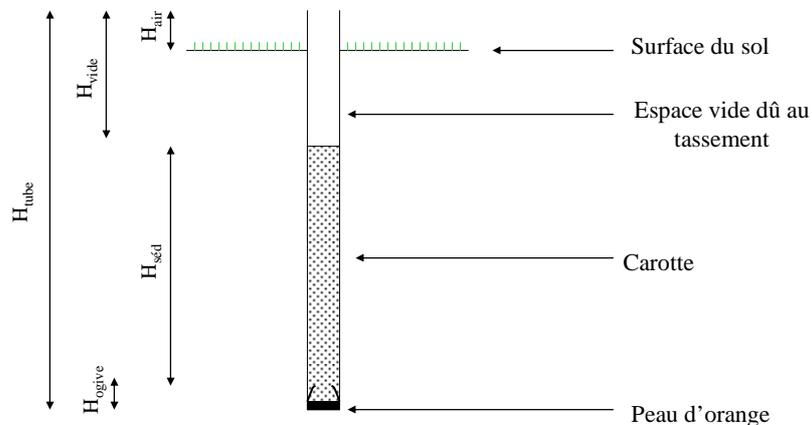


Figure 67 : Schéma en coupe illustrant la méthode de mesure du tassement du sédiment engendré par le carottage.

Les tassements sont évalués à :

- 24% pour la carotte BOUA-01-2010 ;
- 30% pour la carotte BOUA-02-2010 ;
- 33% pour la carotte BOUA-03-2010.

Les sédiments se sont donc tassés lors de l'opération de carottage. Les sédiments étant déjà bien compactés dans cette plaine d'inondation, le tassement engendré par le carottier à percussion est surprenant. Il sera nécessaire de tenir compte de ce tassement pour travailler sur l'évolution de la topographie du site (Paragraphe 9.3), afin de pouvoir effectuer une correction des niveaux apparents et obtenir des profondeurs réelles.

5. Ouverture, description et échantillonnage des carottes

Seules les carottes BOUA-01-2010 et BOUA-02-2010 ont été ouvertes, la carotte BOUA-03-2010 étant conservée comme archive. Le sédiment a été difficile à découper à cause de son tassement important et de la présence de nombreuses racines en surface. Quelques ruptures du sédiment se sont

formées à l'ouverture des carottes. La carotte BOUA-01-2010 a été photographiée, puis ses variations lithologiques ont été représentées sur un log sédimentaire. La carotte BOUA-02-2010 a été uniquement photographiée. Les sédiments prélevés sont dans l'ensemble de nature silteuse, avec quelques niveaux plus fins, en particulier entre 23 et 30 cm. Ils comportent une part importante de matière organique. Les variations lithologiques de ces carottes ont été représentées (log sédimentaire sur la Figure 68).

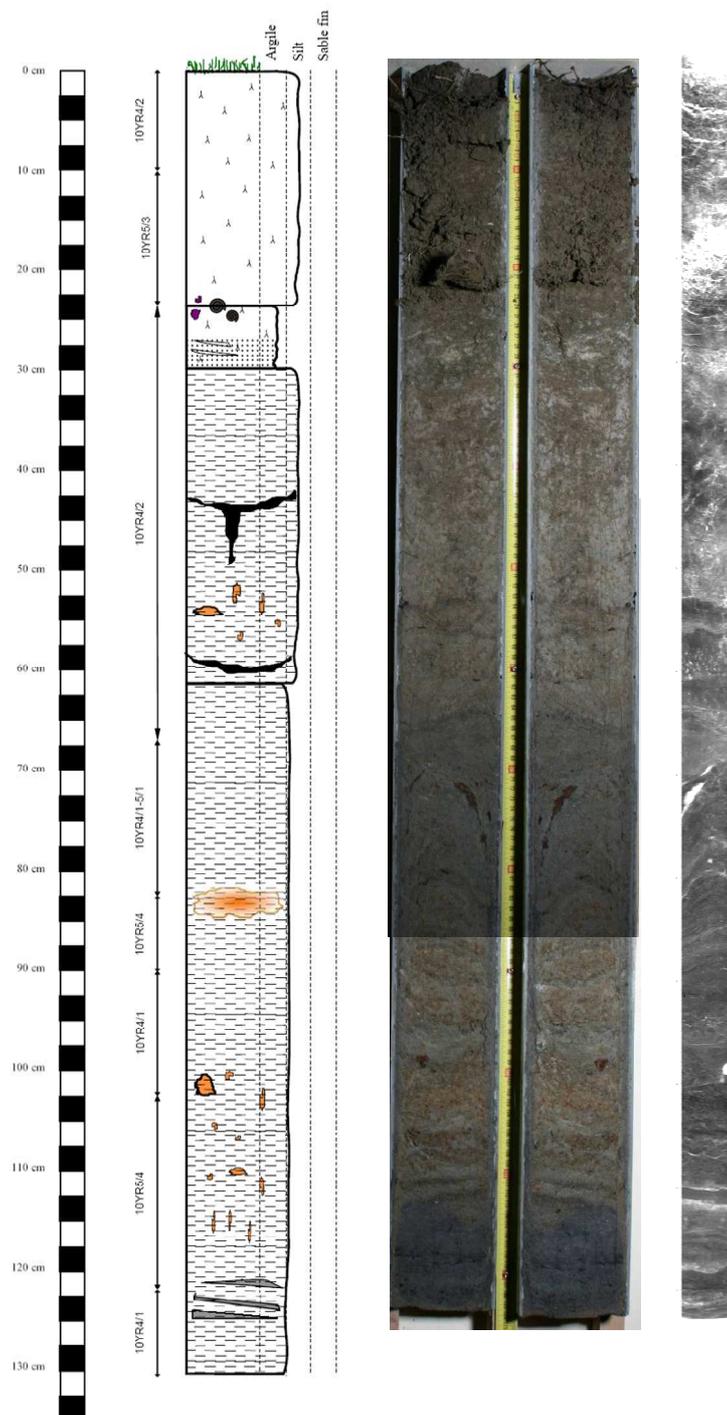


Figure 68 : Dessin de la carotte BOUA-01-2010, photographies et image SCOPIX® de la carotte BOUA-02-2010.

La carotte BOUA-01-2010 a été échantillonnée par tranches d'un centimètre, les échantillons étant conditionnés en sacs plastique. Par la suite, une partie de sédiment frais a été conservée pour effectuer les analyses granulométriques (environ 10 g) ; le reste de l'échantillon a été lyophilisé et finement broyé.

Une plaquette d'un demi-centimètre d'épaisseur a été prélevée sur la carotte BOUA-02-2010 à l'université de Bordeaux I (UMR CNRS 5805 EPOC) afin d'être soumise à une analyse radiographique (SCOPIX®). La carotte présente une bioturbation marquée essentiellement en surface (0 à 60 cm de profondeur) où l'on repère de fines traces blanches sur le positif de cliché radiographique (Figure 68). Les fissures formées à l'ouverture de la carotte, repérables par des marques blanches plus épaisses, se trouvent également dans la partie supérieure de la carotte. On observe quelques lamines vers 80 cm de profondeur légèrement incurvées vers le haut du fait de la contrainte exercée par le carottier à percussion et du frottement des sédiments sur les parois du tube. Malgré un échantillonnage resserré, les séries temporelles obtenues dans la suite de cette étude présenteront un léger lissage dû à cette inflexion. Globalement, le sédiment présente une nature physique homogène.

6. Caractéristiques des sédiments déposés dans le bras mort de Bouafles

Les analyses sédimentaires ont été effectuées sur les carottes prélevées à Bouafles suivant le même protocole que celle des carottes de la Darse des Docks ; la méthodologie est décrite dans l'Annexe C ; il est possible de s'y reporter pour plus de détails.

6.1. Evolution de la distribution des paramètres granulométriques dans les sédiments de Bouafles

Les analyses granulométriques ont été effectuées sur 29 échantillons de la carotte BOUA-01-2010. La granulométrie des échantillons se révèle relativement constante sur toute la longueur de carotte, avec une médiane autour de 14 μm (Figure 69) et un grain moyen autour de 12 μm . Les échantillons sont légèrement plus grossiers à la base de la carotte avec une médiane qui atteint 20 μm . L'échantillon de surface présente également une granulométrie plus grossière. Le classement des particules est mauvais ou très mauvais sur l'ensemble des échantillons, ce qui signifie que les sédiments sont apportés suivant différentes dynamiques ou comme des mélanges. Les crues de la Seine peuvent être d'intensités variables ; de plus, pendant un épisode de crue, on observe différentes dynamiques de transport des sédiments (Dupont et al., 2001 ; Meybeck et al., 1998). Les courbes granulométriques présentent une asymétrie vers les petites tailles (Chamley, 2004), correspondant à la décantation des particules les plus fines en fin de crue. Les échantillons comportent entre 15 et 30 % de particules de la taille des argiles et 1 à 23 % de sables, l'essentiel étant composé de particules de la

taille des silts, soit 58 à 74% (Figure 69). Les échantillons de Bouafles sont donc dans l'ensemble légèrement plus fins que ceux de la Darse des Docks.

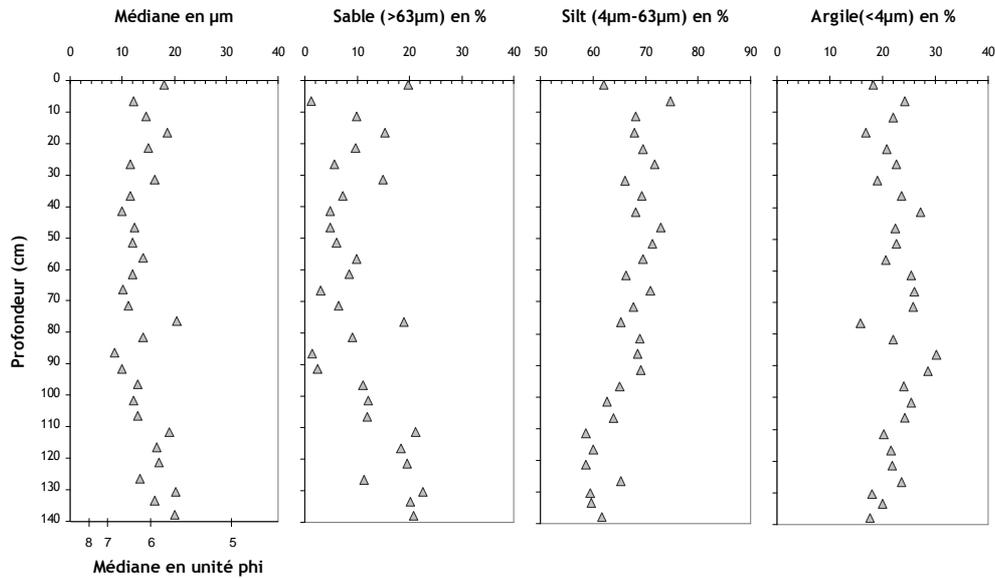


Figure 69 : Granulométrie des échantillons issus de la carotte BOUA-01-2010 : médiane et proportion en sable, silt et argile, en % de la masse totale.

Les échantillons présentant une granulométrie plus fine que ceux de la Darse des Docks, une normalisation des données géochimiques sera nécessaire pour comparer les deux sites. Cette normalisation sera également nécessaire pour comparer les échantillons les plus anciens, présentant une granulométrie légèrement plus grossière, avec les échantillons les plus récents.

6.2. Identification et quantification des cortèges argileux

Les sédiments de Bouafles contiennent essentiellement de la kaolinite, de l'illite et de la smectite associée à un minéral interstratifié chlorite-smectites en proportion peu variable au cours du temps. La teneur en kaolinite varie de 20 à 40 %, celle de l'illite de 5 à 15 %, et celle des smectites associées à un minéral interstratifié chlorite-smectite est de 50 à 70 % avec un échantillon où ce dernier est remplacé par la smectite. On note également un faible pourcentage (0 à 4 %) de minéral interstratifié illite-chlorite à 70 cm.

Le cortège argileux est donc un peu différent entre les sites de Bouafles et de la Darse des Docks, mais ces différences ne sont pas suffisamment significatives pour émettre des hypothèses quand à l'origine des apports.

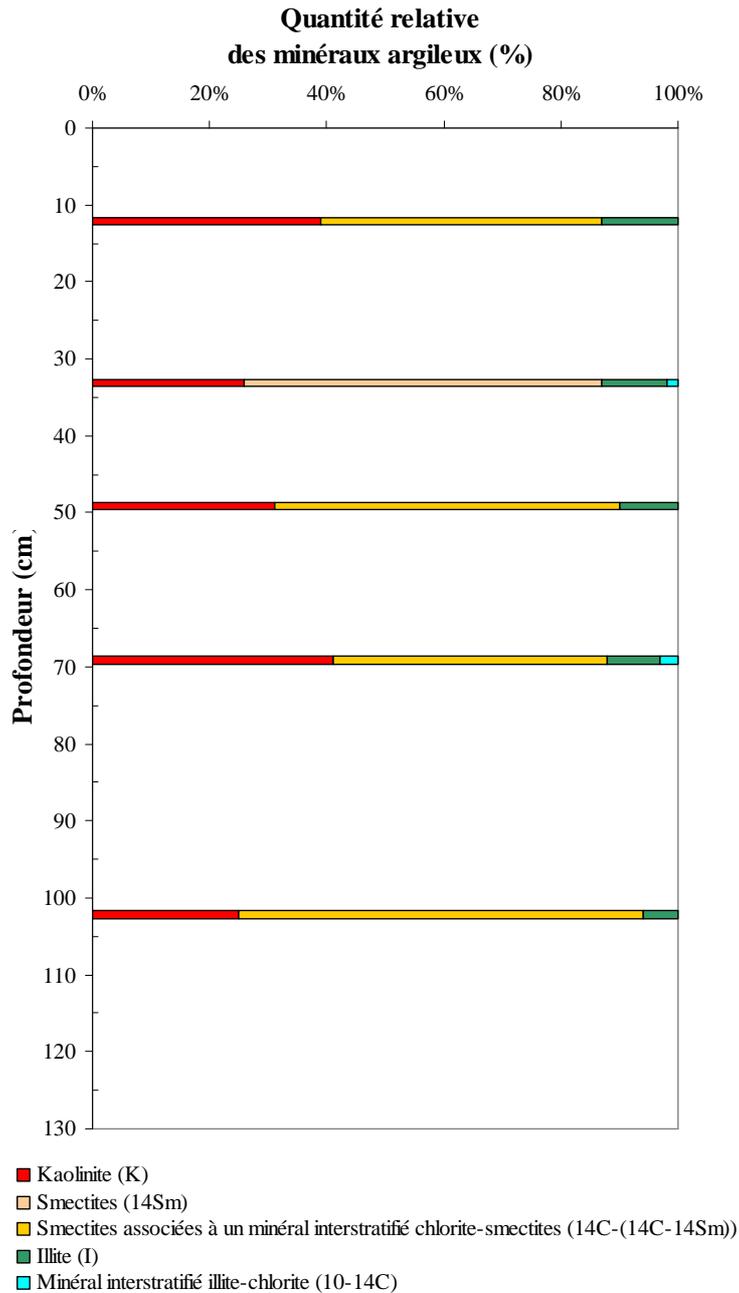


Figure 70 : Evolution de la composition du cortège argileux en fonction de la profondeur dans la carotte BOUA-02-2010.

7. Analyses des éléments stables : méthodes et gammes de concentrations

Les analyses des éléments stables ont été effectuées sur 23 tranches de 1 cm de la carotte BOUA-01-2010 : un échantillon de 1 cm tous les 5 cm a été analysé jusqu'à 90 cm de profondeur, puis un échantillon tous les 10 cm de 90 à 140 cm de profondeur. Les éléments analysés sont les mêmes que ceux étudiés sur les carottes de la Darse des Docks. Les analyses ont été effectuées dans le même laboratoire : le SARM-CRPG à Nancy (Annexe D). Les Figure 71 et Figure 72 représentent les

gamme de concentrations observées pour les éléments majeurs et les éléments-traces, respectivement. En rouge sont représentées les teneurs des éléments dans les shales.

Tout comme pour le site de la Darse des Docks, deux éléments, le Ca et le P, présentent des concentrations supérieures à celles de la référence shales ; toutefois, le P présente ici des valeurs maximales nettement moins importantes. Les autres éléments sont en déficit par rapport à la référence shales ; comme sur le site de la Darse des Docks, les déficits compensent les excès de concentration en Ca et P, ainsi que la perte au feu qui est en moyenne de 28 % dans les sédiments de Bouafles. Les shales ne comportant pas autant de carbonates, ils sont composés d'une plus grande proportion d'Al : 8,8 %, contre 4,3 % en moyenne pour les sédiments de Bouafles.

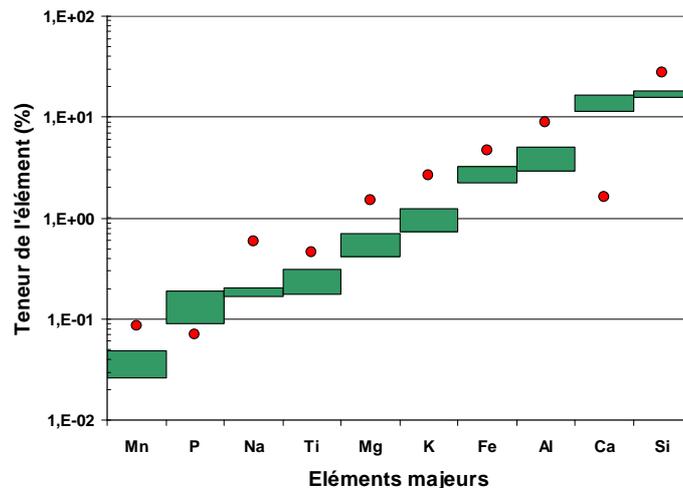


Figure 71 : Gamme des concentrations mesurées en % de sédiment sec de chaque élément majeur dans les sédiments de Bouafles en vert. Valeur de la référence shales en rouge (Li, 2000).

Le Mn est l'élément majeur le plus faiblement représenté dans les sédiments de Bouafles ; sa teneur varie entre 0,03 et 0,05 %, ce qui est relativement peu élevé en comparaison aux shales (0,085 %) ou aux MES des grands fleuves réputés non pollués qui contiennent 0,12 % de Mn. Les concentrations en Na sont en moyenne de 0,2 % dans les sédiments de Bouafles, alors que Thévenot et al. (2002) attribuent une teneur de 1,7% au fond général du bassin versant de la Seine. Les MES des fleuves réputés non pollués (Jambon and Thomas, 2009) présentent une teneur en Na de 0,6 % donc plus proche de celle des sédiments de Bouafles. Les teneurs en Ti varient de 0,18 à 0,31 % dans les sédiments de Bouafles ; celles en Mg varient entre 0,4 et 0,7 % ; celles en K entre 0,7 et 1,3 %. Ces 3 éléments présentent encore de façon systématique des teneurs inférieures à la référence shales et au MES des grands fleuves non pollués. Selon Thévenot et al. (2002), la teneur en Al du fond général du bassin versant de la Seine est de 3,3 %, et selon Meybeck et al. (1998), elle est de 4,5 %. Les concentrations observées à Bouafles sont en accord avec cette seconde valeur, puisque les concentrations en Al sont comprises entre 2,9 et 5,0 %, et sont en moyenne de 4,3 %. Selon Thévenot et al. (2002), la teneur en fer du fond général du bassin versant de la Seine est de 1,5 % : les sédiments de Bouafles présentent des concentrations supérieures avec des teneurs comprises entre 2,2 et 3,2 %.

Le P présente une concentration moyenne de 0,14 % dans les sédiments de Bouafles et il apparaît que le fond géochimique de la Seine ne contient que 0,07 % de P. Des apports anthropiques sont à l'origine de cet excès de P : les engrais phosphatés apportés aux terres agricoles sont en partie lessivés et rejoignent les cours d'eau. L'excès de Ca s'explique par la présence d'une importante fraction de carbonate de calcium (CaCO_3) dans les formations géologiques du bassin versant. Les carbonates représentent près de 35 % de la composition des sédiments de Bouafles. De ce fait, Si, élément le plus représenté dans les shales avec une teneur de 27 %, présente une teneur moyenne dans les sédiments de Bouafles de 17 %, ce qui équivaut à 36 % de SiO_2 .

La Figure 72 présente la gamme des teneurs des différents éléments-traces enregistrés dans les carottes de Bouafles. Les éléments sont présentés selon le même ordre que la figure équivalente pour le site de la Darse des Docks. Quelques éléments présentent systématiquement de larges excès de concentrations par rapport à la référence shales : Bi, Cd, Sb, Ag, Sn, Cu, Pb, Sr, Zn. D'autres présentent de forts excès dans les sédiments durant certaines époques : W, Cs, As, Ni, Cr, Zr. Enfin, certains éléments présentent des teneurs similaires à celles des shales : In, Ta, Ge, Mo, Be, U, Hf, Th, Nb, Ln, Ga, Co, Y, V, Rb, Ba. Les légers déficits observés ont généralement pour origine la présence de sédiments plus grossiers ou plus carbonatés que la référence shales utilisée.

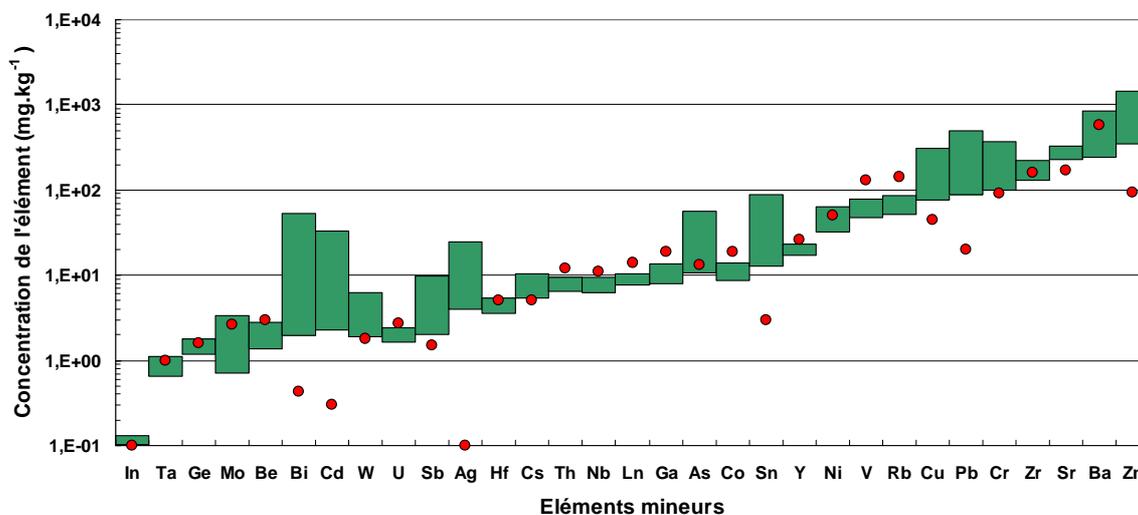


Figure 72 : Gammes des concentrations mesurées en mg.kg^{-1} de sédiment sec de chaque élément-trace dans les sédiments de Bouafles en vert (Ln représente l'ensemble des lanthanides) ; valeur de la référence shales en rouge (Li, 2000).

Pour certains éléments, les concentrations observées correspondent à celles du fond géochimique du bassin versant de la Seine (Thévenot et al., 2002) : Be, Co, V, Sr ; d'autres présentent des valeurs supérieures : As, Ni et Ba, et enfin un grand nombre présentent des valeurs très supérieures aux valeurs naturelles : Cd, Sb, Ag, Cu, Pb, Cr et Zn. Comme nous l'avons déjà vu (Chapitre II), si l'Ag est en excès par rapport aux shales et au fond géochimique de la Seine, les teneurs de ces deux références sont très différentes. Le calcul des FE en Ag est à prendre avec précaution.

Enfin, les variations de concentrations de plusieurs éléments sont très importantes : Bi, Cd, Sb, Ag, As, Sn, Pb, Ba, Zn. Les apports anthropiques délivrant ces contaminants ont donc beaucoup évolué au cours du temps. Les séries temporelles de ces éléments nous en apprendront davantage (Paragraphe 11).

8. Analyses des radionucléides : méthodes et gammes de concentrations

La Figure 73 représente les gammes d'activités des radionucléides mesurées dans les sédiments des carottes de Bouafles.

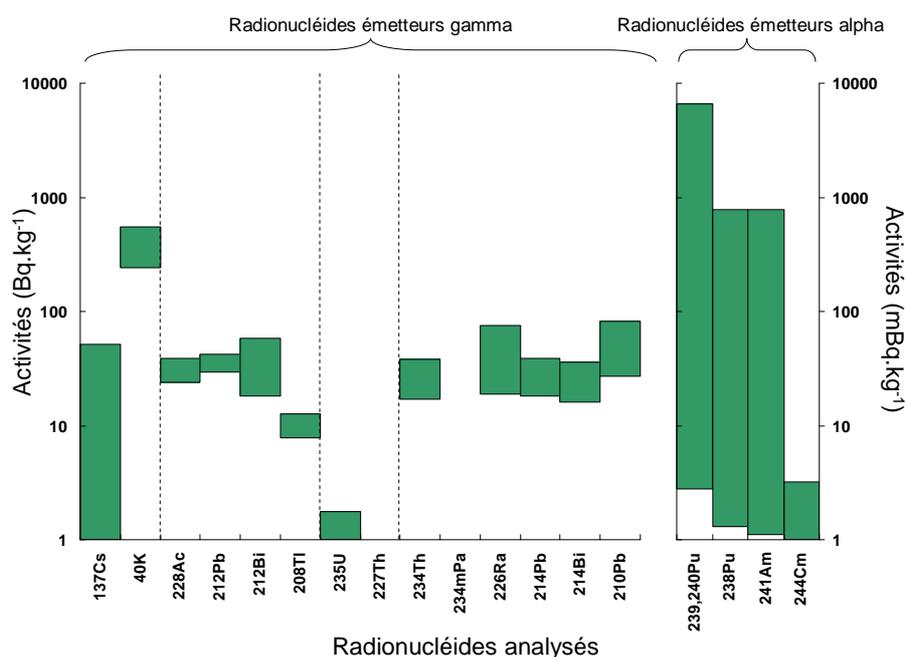


Figure 73 : Gammes des activités mesurées de chaque radionucléide dans les sédiments de Bouafles ; à gauche, les radionucléides émetteurs γ ; à droite, les radionucléides émetteurs α .

Le ¹³⁷Cs est le seul radionucléide artificiel émetteur gamma à être détecté dans ces sédiments (valeur maximale 52 Bq.kg⁻¹). Le ⁶⁰Co n'est pas détecté. Outre le ⁴⁰K (concentrations comprises entre 241 et 550 Bq.kg⁻¹), les autres radionucléides émetteurs gamma appartiennent aux séries naturelles de ²³²Th, ²³⁵U et ²³⁸U. L'²⁴¹Am n'est détecté que par spectrométrie alpha (activité maximale de 770 mBq.kg⁻¹).

Les radionucléides de la famille du ²³²Th présentent des activités similaires autour de 30 Bq.kg⁻¹, sauf ²⁰⁸Tl qui présente une activité autour de 10 Bq.kg⁻¹, conformément à son rapport d'embranchement (0,36). L'activité du ²³²Th a été calculée à partir des concentrations en Th stable, les activités obtenues sont conformes aux activités des autres radionucléides de la série.

Les radionucléides de la chaîne de l'²³⁵U présentent des activités très faibles : l'activité de l'²³⁵U de 0,8 à 1,8 Bq.kg⁻¹, tandis que l'activité du ²²⁷Th se trouve systématiquement sous la limite de détection.

Les radionucléides de la famille de ^{238}U présentent des activités autour de 25 Bq.kg^{-1} , sauf le ^{226}Ra et ^{210}Pb qui présentent des activités un peu plus élevées, de l'ordre de 45 Bq.kg^{-1} tandis que le $^{234\text{m}}\text{Pa}$ n'est pas détecté.

Les radionucléides émetteurs alpha présentent des activités beaucoup moins élevées (exprimées en mBq.kg^{-1}) très variables au cours du temps. Les concentrations de $^{239,240}\text{Pu}$ varient de 2,8 à 6560 mBq.kg^{-1} , celles de ^{238}Pu de 0 à 774 mBq.kg^{-1} , celles de ^{241}Am de 1,1 à 770 mBq.kg^{-1} et celles de ^{244}Cm de 0,7 à $3,2 \text{ mBq.kg}^{-1}$.

Les concentrations en radionucléides d'origine naturelle ne semblent pas perturbées par des apports anthropiques ; elles sont peu variables. La concentration moyenne en ^{228}Ac et celle en ^{212}Pb des sédiments de Bouafles (respectivement 31 Bq.kg^{-1} et 34 Bq.kg^{-1}) sont similaires à celles relevées en amont de Poses sur la fraction fine des sédiments de surface (respectivement 35 Bq.kg^{-1} et 37 Bq.kg^{-1} , sédiments $< 50 \mu\text{m}$; (Boust et al., 2007)). De même, les concentrations moyennes en ^{234}Th , ^{214}Pb et ^{210}Pb des sédiments de Bouafles (respectivement 25 Bq.kg^{-1} , 28 Bq.kg^{-1} et 48 Bq.kg^{-1}) sont également comparables à celles de la fraction fine des sédiments de surface (respectivement 21 Bq.kg^{-1} , 40 Bq.kg^{-1} et 73 Bq.kg^{-1} , sédiments $< 50 \mu\text{m}$; (Boust et al., 2007)). Les différences observées entre les activités des deux stocks de particules sont dues à leur différence de granulométrie des sédiments.

Les radionucléides (^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am) d'origine artificielle présentent au contraire de larges gammes de concentrations. Ces variations seront discutées dans le paragraphe 12, où les résultats sont présentés sous forme de séries temporelles.

9. Datation de la carotte

La reconstitution de l'historique de la contamination particulaire en amont de Poses implique la datation des sédiments carottés à Bouafles, ce qui permettra également d'établir une comparaison avec les données obtenues dans les sédiments de la Darse des Docks. Pour dater la carotte de référence, deux méthodes ont été combinées : (1) nous avons identifié les différents repères chronologiques connus (e.g. accident de Tchernobyl), (2) nous avons travaillé sur les variations de hauteur d'eau de la Seine pour déterminer les durées d'inondation du site.

9.1. Mise en évidence de repères chronologiques

Les repères de datation des dépôts sont fixés essentiellement grâce aux analyses des activités de radionucléides artificiels. Ces différents repères chronologiques sont récapitulés dans le Tableau 5.

Tableau 5 : Repères chronologiques obtenus sur la carotte BOUA-01-2010

Années	Profondeur du profil (cm)	Evènements
2004,07	0	Dernière inondation par la Seine sur le site de carottage
1987	33,5	Retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl (max de ^{137}Cs)
1978	52,5	Rejets d'une installation nucléaire de la région parisienne (max de ^{238}Pu)
1963	70,5	Retombées atmosphériques des essais nucléaires (max de ^{137}Cs)
1954	86,5	Début de la présence du ^{137}Cs dans l'environnement (échantillon le plus profond contenant du ^{137}Cs)

La carotte a été prélevée en avril 2010. La sédimentation n'a lieu, sur ce site, qu'en période d'inondation. Le haut de la carotte sera donc daté à la date de la dernière inondation connue depuis 2010, soit 2004.

Le 26 avril 1986, l'accident de Tchernobyl a provoqué la libération d'éléments radioactifs dans l'atmosphère dont le ^{137}Cs , qui s'est déposé sur le bassin versant de la Seine. Fin avril, début mai 1986, la crue printanière de la Seine se termine, le site de carottage n'est donc plus inondé. Il est donc fort probable que les apports sédimentaires marqués par cet accident nucléaire n'aient été enregistrés que lors de la crue suivante. Ce maximum de ^{137}Cs , repéré à 33,5 cm, est donc daté à 1987,0.

A partir de 1954, une installation nucléaire a rejeté du Pu. Ces rejets contrôlés ont potentiellement marqué les sédiments des carottes prélevées à Bouafles et dans la Darse des Docks, notamment par les activités du ^{238}Pu . Le maximum des rejets a eu lieu au cours de l'année 1975. Les analyses effectuées sur les échantillons de la Darse des Docks montrent un rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ maximum qui atteint $3,64 \pm 0,24$: il signe donc un rejet de type industriel. On date donc cet échantillon à 1975,5. A Bouafles, le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ maximum mesuré est de $1,78 \pm 0,12$. Le maximum des rejets n'a donc certainement pas été enregistré ici. Le rejet maximal de ^{238}Pu ayant été effectué au cours de l'année 1975, il est possible que la crue de 1975 ait été achevée au moment du rejet. De plus, les débits maximaux ont été faibles au cours des années 1976 et 1977, et la quantité de sédiment déposé est donc plus faible ; cela appuie l'hypothèse que le maximum des rejets ne soit pas bien enregistré. Par comparaison aux rapports isotopiques du Pu sur la carotte Darse des Docks, le maximum de ^{238}Pu mesuré ici doit correspondre à 1978 ; il se trouve à 52,5 cm de profondeur.

Les essais nucléaires atmosphériques auxquels ont procédé les grandes puissances entre 1945 et 1980 constituent à ce jour le seul apport conséquent de radionucléides artificiels à l'échelle planétaire. Le maximum de dépôt de ^{137}Cs provenant de ces retombées atmosphériques a eu lieu à la date de 1963 (e.g. Ikeuchi, 2003 ; Jouanneau et al., 1999 ; Renaud and Roussel-Debet, 2008 ; Sayles et al., 1997). Il a été repéré à 70,5 cm de profondeur dans la carotte.

Enfin, avant le début des essais nucléaires, il n'existait pas de ^{137}Cs dans l'environnement. Les essais nucléaires ont débuté en 1949, mais le ^{137}Cs est difficilement détectable dans les diverses entités naturelles avant 1954 (Renaud and Roussel-Debet, 2008). Le début de la présence de ^{137}Cs dans les carottes est donc attribué à la date de 1954, soit à 86,5 cm de profondeur dans la carotte de Bouafles.

Nous allons maintenant tenter d'affiner la datation entre ces différents repères : la démarche consiste à déduire des chroniques de hauteur de la Seine, le nombre de jours pour lesquels le site a été inondé puis d'estimer un dépôt annuel proportionnel à ce nombre de jours d'inondation.

9.2. Relations entre les débits et les hauteurs d'eau de la Seine

L'historique des hauteurs d'eau de la Seine reconstituées à partir de ses débits mesurés va permettre d'identifier ensuite la chronique des inondations du site de carottage.

Les données disponibles sont les suivantes :

- historique des débits enregistrés à Poses (PK 202) depuis 1941 jusqu'à nos jours (<http://seine-aval.crihan.fr/web/>) ;
- historique des hauteurs d'eau à Gaillon (PK 162, 8 km en amont de Bouafles) de 1991 à 2005 (données fournies par la DIREN).

Pour connaître les périodes durant lesquelles le site de carottage a été inondé, il est nécessaire d'avoir l'historique des hauteurs d'eau de la Seine sur l'ensemble de la période 1954-2004. Or, seule la période 1991-2005 est disponible. A partir des hauteurs d'eau mesurées durant la période 1991-2005, et des débits évalués pendant la même période, il est possible d'établir une relation entre ces deux paramètres (Figure 74) qui permettra de passer des débits à l'historique des hauteurs d'eau de la Seine à Gaillon.

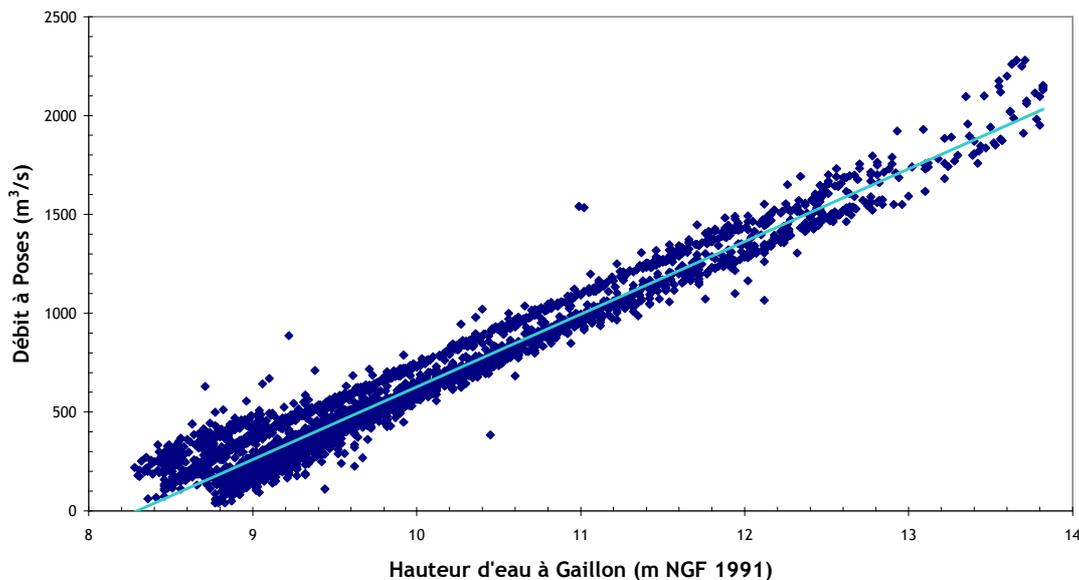


Figure 74 : Relation entre débits à Poses et hauteurs d'eau à Gaillon de la Seine entre 1991 et 2005.

La Figure 74 représente les débits à Poses en fonction des hauteurs d'eau à Gaillon à partir des valeurs mesurées (en bleu foncé). La corrélation (en bleu clair) entre débits et hauteurs d'eau est bonne ($R^2=0,95$). L'équation de la droite de corrélation ($y= 368x-3049$) permet ainsi de calculer les hauteurs d'eau de la Seine avant 1991 à proximité de Poses.

Sur le graphique, deux droites semblent se séparer : la corrélation entre débit et hauteur d'eau n'est pas tout à fait la même avant 2001 et après. Il s'agit probablement d'un changement dans le protocole de mesure des hauteurs d'eau, puisqu'au niveau des débits, tous les changements de protocole sont connus et qu'aucun ne correspond au début d'année 2001. En l'absence d'informations sur cette rupture, l'ensemble des mesures a été conservé pour établir une relation entre débits et hauteurs d'eau.

Il est à noter que la corrélation semble moins étroite pour les faibles et très fortes hauteurs d'eau. Cela n'est pas problématique : lors des faibles hauteurs d'eau (étiage), le site étudié de Bouafles n'est jamais inondé, tandis que lors de fortes hauteurs d'eau (forte crue), le site est forcément inondé. Ce sont donc les valeurs intermédiaires les plus importantes pour notre recherche : pour ces valeurs (hauteurs d'eau comprises entre 10 et 13 m NGF), l'erreur n'est que de $\pm 0,2$ m.

La relation permettant de passer des débits aux hauteurs d'eau est la suivante :

$$H = 0,0027Q + 8,3 \quad \text{Équation 5}$$

Q : débit de la Seine en $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$.

H : hauteur d'eau de la Seine en m NGF.

9.3. Définition de l'altitude du seuil d'inondation du site

Maintenant que nous avons accès à l'historique des hauteurs d'eau de la Seine à proximité de Poses, nous cherchons à connaître pour chaque année, la hauteur d'eau de la Seine nécessaire à l'inondation du point de carottage. Nous distinguons deux périodes pour calculer ces hauteurs seuils : avant 1992 et après, l'année 1992 correspondant à la mise en place d'une levée artificielle dans le bras de Bouafles.

9.3.1. Période 1992-2011

En aval du point de carottage, le propriétaire du champ a façonné une levée artificielle entre 1990 et 1995 : cet aménagement est fixé à 1992 (Figure 75). La hauteur d'eau à partir de laquelle le point de carottage est inondé entre 1992 et 2011 est donc limitée par l'altitude de cette levée. Cette dernière est considérée comme étant stable dans le temps.

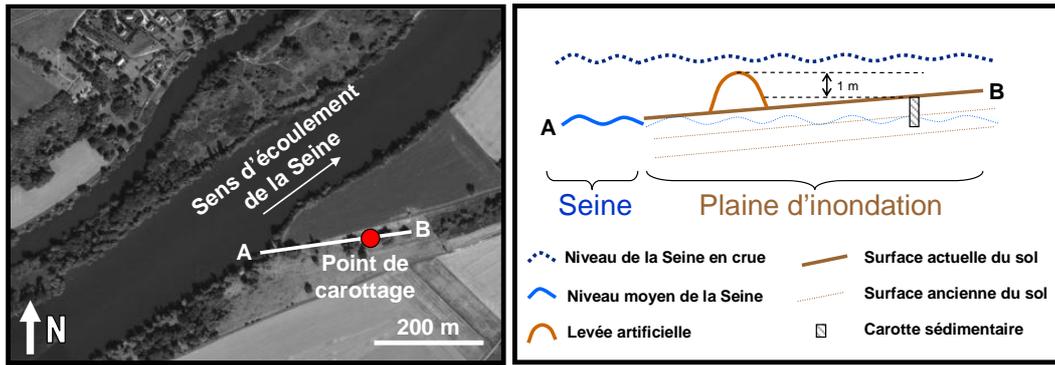


Figure 75 : Photo aérienne du site de carottage avec localisation du point de carottage et de la coupe schématique dessinée à droite (Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>).

Le site de carottage a été dernièrement inondé en 2004 et 2011 (témoignages des habitants de Bouafles) et il n'a pas subi d'inondation entre ces deux dates. L'altitude du seuil d'inondation est donc comprise entre la plus forte hauteur d'eau enregistrée entre 2005 et 2010 (année du carottage) et la hauteur d'eau maximale enregistrée pour les années 2004 et 2011. En 2004, le débit maximum de la Seine a été de $1490 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, soit une hauteur d'eau calculée selon la formule présentée ci-dessus de 12,3 m et une hauteur d'eau mesurée à Gaillon de 11,9 m (léger décalage entre valeurs mesurées et valeurs calculées) ; en 2011, il a été de $1520 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, soit une hauteur d'eau calculée de 12,4 m. Entre 2004 et 2011, l'année présentant le plus fort débit est l'année 2007 avec un débit maximal de $1372 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, soit une hauteur d'eau calculée de 12,1 m. L'altitude du seuil d'inondation du site de carottage est donc située autour de 12 m (Figure 76).

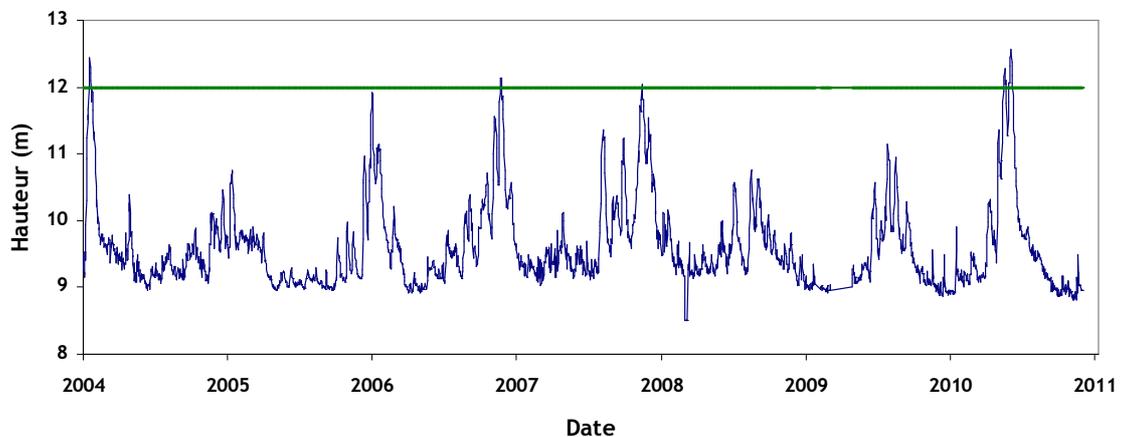


Figure 76 : Hauteur d'eau de la Seine entre 2004 et 2011 (valeurs calculées) et détermination de l'altitude de la levée artificielle en vert.

La légère différence entre valeur mesurée et valeur calculée du maxima de l'année 2004 complique le raisonnement puisque la valeur mesurée est inférieure à la hauteur maximale de l'année 2007. L'altitude de la levée est toutefois fixée à 12,0 m.

9.3.2. Avant 1992

L'altitude actuelle de la levée artificielle est estimée à 1 m au dessus du point de carottage (observations terrain + données topographiques ; Figure 77).

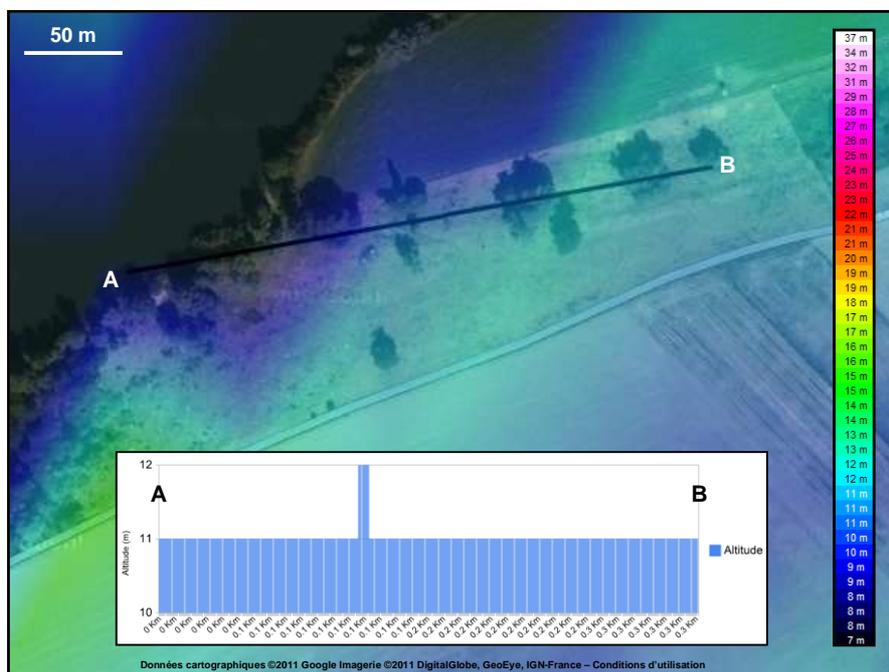


Figure 77: Coupe topographique dans le bras mort de Bouafles ;
 le point à 12 m d'altitude représente la levée artificielle ;
 le point de carottage est actuellement situé à 11 m d'altitude
 (Source : <http://www.cartes-topographiques.fr/France.html>).

Avant 1992, l'eau n'avait pas d'obstacle à franchir avant d'atteindre le point de carottage. L'altitude du seuil d'inondation est alors considérée comme l'altitude du point de carottage. Les profondeurs indiquées dans le Tableau 6 sont utilisées pour estimer l'altitude du point de carottage au cours du temps ; une correction due au tassement induit par le carottage (mesuré sur site) a été effectuée. Le tassement artificiel dû au carottier est de 24 %. Le tassement de consolidation naturel n'est pas mesurable par les moyens techniques dont nous disposons, il est donc négligé.

Tableau 6: Profondeurs corrigées des repères chronologiques
 (corrections faites pour s'affranchir du tassement dû au carottage).

Date (années)	Profondeur (cm)	Profondeur corrigée (cm)
2004	0	0
1987	33,5	41,5
1978	52,5	65,1
1963	70,5	87,4
1954	86,5	107,3

L'altitude de la levée artificielle a été estimée à 12 m, et cette levée se situe à 1 m au dessus de l'altitude actuelle du point de carottage. L'altitude du seuil au-delà duquel le site est inondé peut maintenant être établie pour chaque année entre 1954 et 1992. L'exemple suivant (Équation 6 et Équation 7) illustre la démarche, pour l'année 1990.

Le taux de sédimentation moyen entre 1987 et 2004 est donné par :

$$S_{1987-2004} = \frac{P_2 - P_1}{T_1 - T_2} = \frac{41,5 - 0}{2004 - 1987} = \frac{41,5}{17} = 2,44 \text{ cm.an}^{-1} \quad \text{Équation 6}$$

$S_{1987-2004}$: taux de sédimentation moyen entre 1987 et 2004 (cm.an^{-1}).

P_1 : profondeur corrigée du repère chronologique 1 (cm).

P_2 : profondeur corrigée du repère chronologique 2 (cm).

T_1 : année du repère chronologique 1 (an).

T_2 : année du repère chronologique 2 (an).

L'altitude du point de carottage en 1990 est calculée à partir de son altitude en 2004 (11 m) et du taux de sédimentation moyen entre 1990 et 2004 ($2,44 \text{ cm.an}^{-1}$) par la formule suivante :

$$A_{1990} = A_{2004} - [(2004 - 1990) \times S_{1987-2004}] = 10,66 \text{ m} \quad \text{Équation 7}$$

A_x : altitude du point de carottage pour l'année X (m).

$S_{1987-2004}$: taux de sédimentation (m.an^{-1}).

Cette démarche est répétée pour chaque année entre 1954 et 1991, en recalculant le taux de sédimentation déduit du Tableau 6 pour chaque période concernée.

9.4. Altitude du seuil d'inondation correspondant à chaque année

L'altitude du seuil d'inondation augmente de façon plus ou moins régulière d'année en année entre 1954 et 1992 (Figure 78). En 1992, la construction d'une levée artificielle augmente brutalement cette altitude (Figure 78). A partir de cette date, l'altitude du seuil d'inondation est stabilisée (Figure 78).

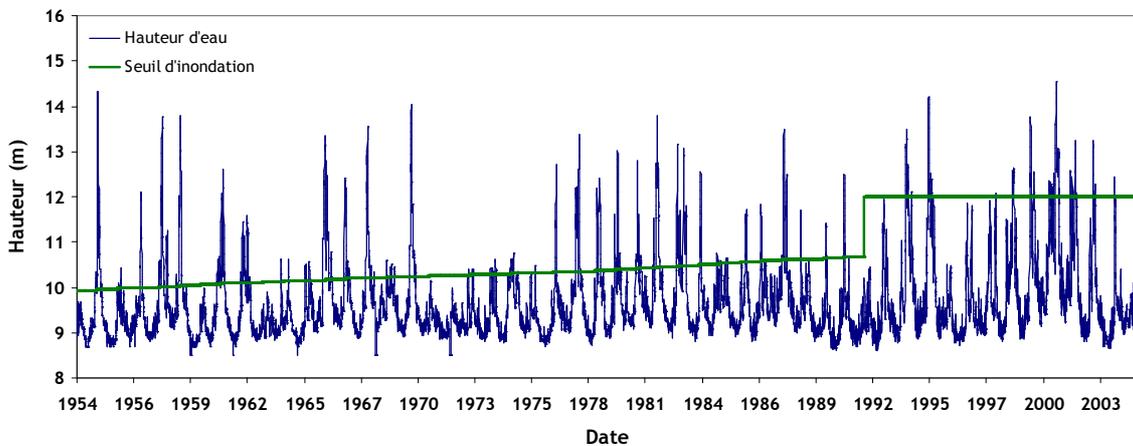


Figure 78 : Reconstitution de l'historique des hauteurs d'eau de la Seine entre 1954 et 2004 (bleu) et altitude du seuil d'inondation du site de Bouafles (vert).

9.5. Dénombrement des jours d'inondation du site chaque année

A partir de la chronique des débits mesurés à Poses, la hauteur d'eau de la Seine a été établie pour chaque jour depuis 1954. Puis, le nombre de jours satisfaisant la relation suivante est comptabilisée pour chaque année :

$$\text{Si } H_{jj/mm/aaaa} > HS_{aaaa} \quad \text{Équation 8}$$

$H_{jj/mm/aaaa}$: hauteur d'eau calculée à la date $jj/mm/aaaa$ (m) .

HS_{aaaa} : altitude du seuil d'inondation pour l'année $aaaa$ (m).

Nous obtenons alors l'historique du nombre de jours par an d'inondation du site. Les années où le site n'est pas inondé sont repérables. Elles correspondent à des années sans enregistrement sédimentaire.

9.6. Quantité de sédiment déposée chaque année

Le nombre de jours d'inondation est très variable selon les années (Figure 79). Dans la suite, la quantité de sédiment déposée est considérée comme proportionnelle au nombre de jours d'inondation.

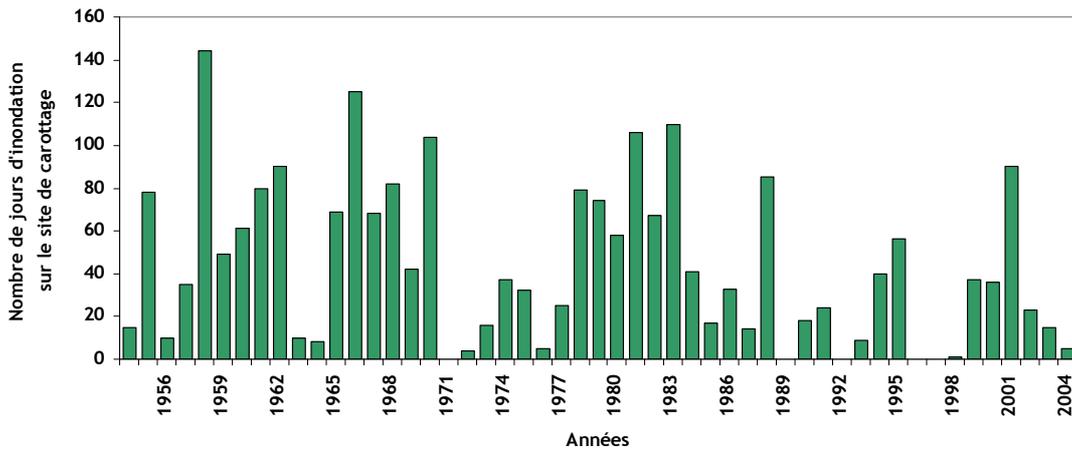


Figure 79 : Nombre de jours d'inondation sur le site de carottage à Bouafles pour chaque année entre 1954 et 2004.

Pour chacune des périodes suivantes (limitées par les repères chronologiques) : 1954-1963, 1963-1978, 1978-1987, 1987-2004, le nombre de jours d'inondation est comptabilisé. Les profondeurs relevées sur la carotte (profondeur de départ) sont reprises de façon à pouvoir reporter les profondeurs établies directement sur la carotte. Pour chaque période, l'épaisseur de sédiment représentant une journée d'inondation (Tableau 7) est déterminée (ce chiffre ne représente pas le taux de sédimentation réel puisque le tassement par carottage n'est plus pris en compte).

Tableau 7: Longueur de carotte pour chaque jour de crue à chaque période.

Période	Nombre de jours d'inondation	Longueur de carotte (cm)	Epaisseur de sédiment sur la carotte représentant chaque jour de crue (cm/jour de crue)
1987-2004	453	33,5	0,074
1978-1987	585	19	0,032
1963-1978	627	18	0,029
1954-1963	562	16	0,028

Durant la période 1987-2004, l'épaisseur de sédiment déposé pour une journée de crue est deux fois plus importante que celle des périodes précédentes, ce qui peut en partie s'expliquer par un tassement naturel plus important en profondeur qu'en surface. Il est également à noter que les teneurs en MES dans l'eau de la Seine sont très importantes dans les années 1990 (Annexe I), ce qui explique que l'épaisseur moyenne de sédiment déposé par jour de crue soit plus importante.

Pour chaque année, le nombre de jours d'inondation estimé est multiplié par la longueur de carotte représentant une journée d'inondation durant la période correspondante. Cela permet d'obtenir la longueur de carotte représentant l'année en question (Figure 80). Le cumul de ces différentes longueurs permet de situer la profondeur correspondant à chaque année sur la carotte.

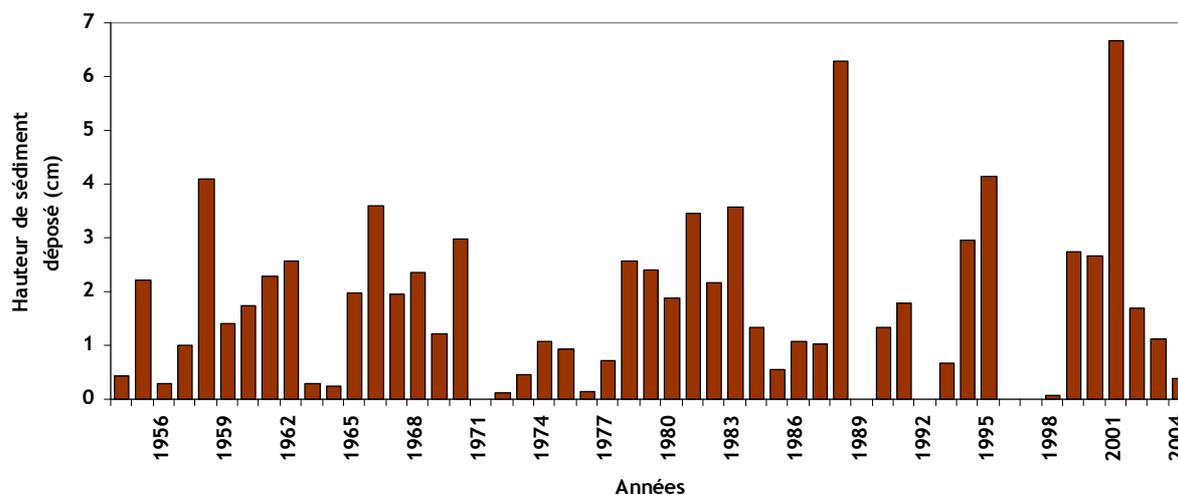


Figure 80 : Epaisseur de sédiment déposé chaque année.

A partir de taux de sédimentation moyens fournis par nos repères chronologiques (Tableau 5), les périodes d'inondation permettent d'accéder à l'épaisseur de sédiment déposée chaque année. La méthode utilisée comporte des incertitudes ; il est cependant plus juste d'utiliser ce raisonnement, que d'utiliser des taux de sédimentation linéaires pour dater la carotte.

Dans un premier temps, nous avons obtenu des taux de sédimentation moyens par période ce qui élimine, en partie, le problème de tassement naturel, les périodes les plus anciennes étant représentées par un sédiment plus tassé.

9.7. Construction du modèle d'âge pour la carotte BOUA-01-2010

A ce stade, une profondeur sur la carotte peut être affectée à une année enregistrée. En extrapolant les résultats obtenus, il est possible d'attribuer une date à chaque échantillon analysé, c'est-à-dire tous les centimètres (Tableau 8 ; Figure 81).

Les périodes de crue de la Seine se situant entre novembre et avril de l'année suivante, les calculs ont été faits de façon à n'attribuer aucun dépôt de sédiments pendant les 6 autres mois.

Tableau 8 : Datation de chaque tranche d'échantillon entre 0 et 86,5cm de profondeur.

Profondeur (cm)	Date	Profondeur (cm)	Date	Profondeur (cm)	Date
0,5	2003,29	29,5	1988,18	58,5	1970,04
1,5	2002,33	30,5	1988,12	59,5	1969,17
2,5	2002,13	31,5	1988,06	60,5	1968,29
3,5	2001,89	32,5	1987,32	61,5	1968,14
4,5	2001,29	33,5	1987,00	62,5	1967,95
5,5	2001,23	34,5	1986,03	63,5	1967,17
6,5	2001,18	35,5	1984,32	64,5	1966,97
7,5	2001,13	36,5	1983,33	65,5	1966,29
8,5	2001,07	37,5	1983,23	66,5	1966,17
9,5	2001,02	38,5	1983,14	67,5	1966,06
10,5	2000,85	39,5	1983,05	68,5	1965,91
11,5	2000,17	40,5	1982,87	69,5	1965,16
12,5	2000,00	41,5	1982,15	70,5	1962,33
13,5	1999,31	42,5	1981,94	71,5	1962,20
14,5	1999,13	43,5	1981,75	72,5	1962,07
15,5	1995,31	44,5	1981,18	73,5	1961,31
16,5	1995,24	45,5	1981,02	74,5	1961,14
17,5	1995,16	46,5	1980,22	75,5	1960,97
18,5	1995,08	47,5	1980,01	76,5	1960,82
19,5	1994,32	48,5	1979,24	77,5	1959,23
20,5	1994,21	49,5	1979,07	78,5	1958,98
21,5	1994,10	50,5	1978,26	79,5	1958,31
22,5	1993,97	51,5	1978,13	80,5	1958,21
23,5	1991,25	52,5	1978,00	81,5	1958,11
24,5	1991,06	53,5	1975,28	82,5	1958,01
25,5	1990,20	54,5	1974,94	83,5	1957,02
26,5	1988,92	55,5	1973,32	84,5	1955,23
27,5	1988,30	56,5	1970,27	85,5	1955,09
28,5	1988,24	57,5	1970,15	86,5	1954,83

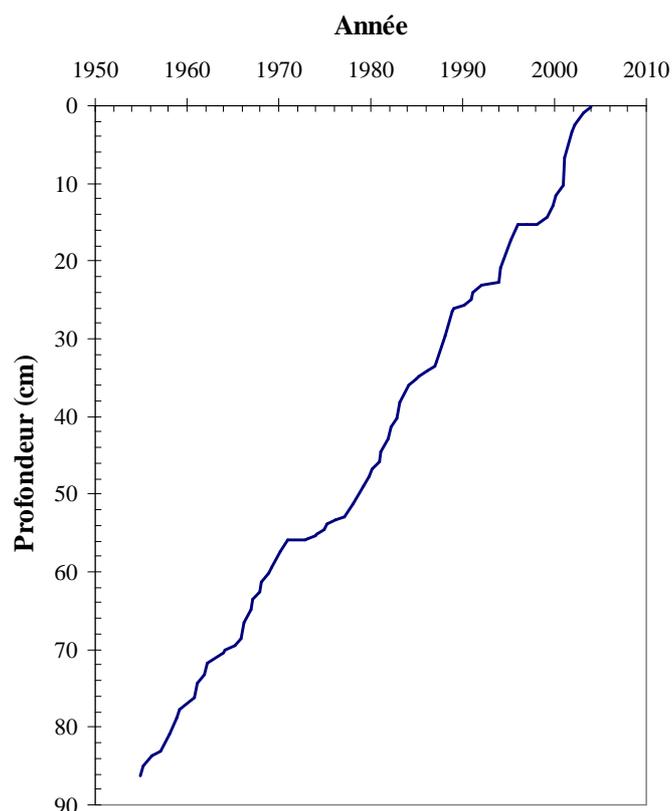


Figure 81: Evolution de la sédimentation au cours du temps sur le site d'étude de la plaine d'inondation de Bouafles.

Au-delà de 86,5 cm de profondeur, il n'y a plus de repères chronologiques. A partir du calcul du taux de sédimentation moyen de l'ensemble de la carotte, soit $1,72 \text{ cm.an}^{-1}$, la carotte est datée jusqu'à sa base en extrapolant de façon linéaire (Tableau 9).

Tableau 9 : Datation de chaque échantillon entre 86,5 et 133,5cm de profondeur.

Profondeur (cm)	Date	Profondeur (cm)	Date	Profondeur (cm)	Date
87,5	1953,42	102,5	1944,75	117,5	1936,08
88,5	1952,84	103,5	1944,17	118,5	1935,50
89,5	1952,27	104,5	1943,60	119,5	1934,92
90,5	1951,69	105,5	1943,02	120,5	1934,35
91,5	1951,11	106,5	1942,44	121,5	1933,77
92,5	1950,53	107,5	1941,86	122,5	1933,19
93,5	1949,95	108,5	1941,28	123,5	1932,61
94,5	1949,38	109,5	1940,71	124,5	1932,03
95,5	1948,80	110,5	1940,13	125,5	1931,46
96,5	1948,22	111,5	1939,55	126,5	1930,88
97,5	1947,64	112,5	1938,97	127,5	1930,30
98,5	1947,06	113,5	1938,39	128,5	1929,72
99,5	1946,49	114,5	1937,82	129,5	1929,14
100,5	1945,91	115,5	1937,24	130,5	1928,57
101,5	1945,33	116,5	1936,66	133,5	1926,83

9.8. Conclusion partielle

L'analyse des variations des hauteurs d'eau de la Seine, couplée à l'évolution de la topographie du site a permis de préciser la datation entre les repères chronologiques identifiés dans les carottes de Bouafles. A en juger par la Figure 81, il semble que les taux de sédimentation soient globalement constants. Cependant, dans le détail, de nombreuses et courtes variations apparaissent : si certaines années, le dépôt est nul, d'autres correspondent à 6 cm de dépôt carotté. Si globalement, sur de longues périodes de temps telles qu'une décennie, le taux de sédimentation est relativement stable dans le bras mort de Bouafles, il est donc très variable à l'échelle de l'année.

10. Reconstitution de l'historique du remplissage sédimentaire du site

L'eau du bras de Bouafles circulait librement jusqu'à la fin du XIX^e siècle ; un courant permanent étant présent dans ce bras, les sédiments fins devaient peu s'y déposer. Au début du XX^e siècle, des matériaux de dragages furent apportés dans la partie aval du bras qui ne devient alors plus en communication avec le lit principal que par sa partie amont : l'eau ne circule plus librement et les sédiments transportés sont alors piégés. Ce bras reste continuellement en eau jusqu'au début des années 1960 ; la végétation terrestre ne devait donc pas être encore présente au point de carottage à cette époque et la bioturbation était donc limitée à la présence de la faune ayant colonisé les sédiments déposés. Au début des années 1960, suite à un comblement progressif et naturel de ce bras, les sédiments émergent en étiage ; les apports de sédiments se font alors uniquement en période de crue. La végétation colonise ces sédiments induisant de la bioturbation. Le comblement du bras continue progressivement, de façon irrégulière, au rythme des crues dont l'importance est variable. Dans les années 1970, les faibles crues ralentissent probablement ce comblement ; dans les années 1980, les crues sont plus importantes, la quantité de sédiment déposée redevient plus importante. A partir de 1976, le site de carottage est régulièrement occupé par des bovins, ce qui doit engendrer une perturbation importante des sédiments de surface. Au fil des années, l'altitude du point de carottage augmente, les inondations sont donc de moins en moins fréquentes et de plus en plus brèves. Dans les années 2000, ces inondations deviennent rares, mais encore possibles lors de crues très importantes telle que celle de 2011.

11. Séries temporelles des éléments stables

A partir de la datation des carottes sédimentaires, les profils des éléments mesurés sur la carotte BOUA-01-2010 peuvent être présentés sous forme de séries temporelles. Ces résultats sont présentés en concentration brute dans les sédiments pour les éléments majeurs et sous forme de FE par rapport à la référence shales pour les éléments-traces ; la classification des éléments est la même que celle du chapitre précédent.

11.1. Evolutions temporelles des concentrations en éléments majeurs

Les éléments majeurs (Figure 82) présentent, dans l'ensemble, des profils de concentrations peu variables dans le temps. On note toutefois quelques variations, en particuliers avant 1950.

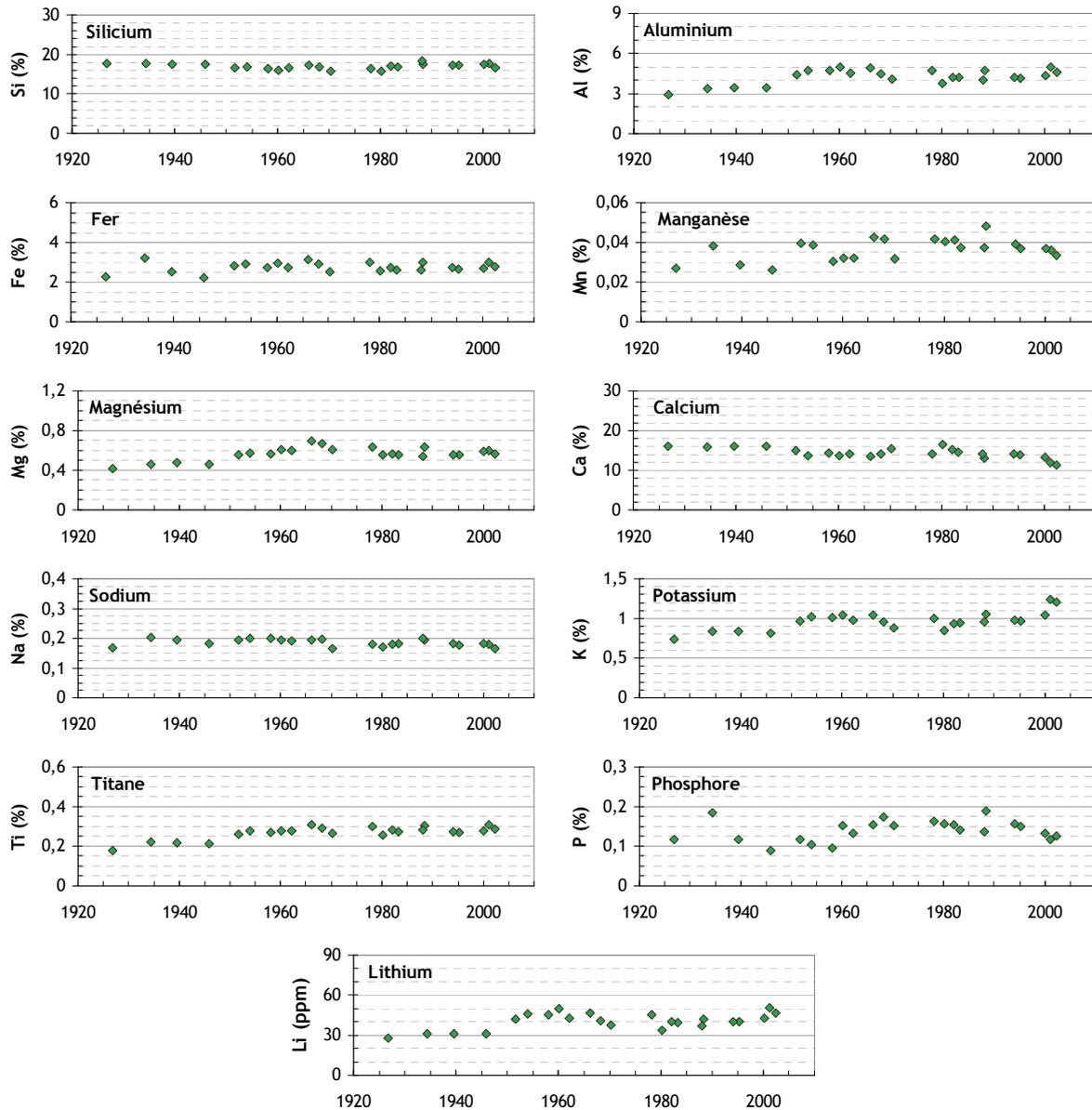


Figure 82 : Série temporelle des concentrations en éléments majeurs (%) et en lithium (ppm) des sédiments de Bouafles.

Les concentrations en Si sont stables sur l'ensemble du profil (15 à 18 %). Les concentrations en Al sont comprises entre 2,9 et 3,4 % entre 1920 et 1950 ; après 1950, elles sont plus élevées, variant entre 3,8 et 5,0 %. Les faibles teneurs observées sur la période la plus ancienne sont dues à une granulométrie différente des sédiments ; comme nous l'avons déjà vu, les sédiments de la base de la carotte sont plus sableux, et contiennent moins d'argiles (phyllosilicates). La normalisation à l'Al est donc importante pour interpréter la contamination des sédiments les plus anciens, mais également pour comparer ces données à celles des autres sites d'étude. Le Fe présente des concentrations peu variables

après 1950 (2,5 et 3,1 %) ; avant 1950, les quelques mesures réalisées présentent plus de variations (2,2 et 3,2 %). Les teneurs en Mn varient entre 0,03 et 0,05 %, celles en Mg entre 0,4 et 0,7 %, celles en Na de 0,17 à 0,20 %, celles en K de 0,7 à 1,2 % et celles en Ti de 0,18 à 0,31 %. Pour ces éléments, les variations observées sont minimes et souvent similaires à celles de l'Al, elles sont donc fonction de l'abondance de la fraction fine des sédiments. Les teneurs en Li varient entre 28 et 51 ppm ; ces variations suivent également celles des teneurs en Al.

Le Ca présente des concentrations comprises entre 11,4 et 16,5 %. Ces concentrations du même ordre de grandeur, mais légèrement moins élevées que celles des sédiments de la Darse des Docks, s'expliquent aussi par la composition crayeuse des formations du bassin versant. Cependant, ici, le Ca présente des concentrations moins importantes et plus stables que sur le site de la Darse des Docks.

Le P présente des concentrations variant de 0,09 à 0,19 %. Elles sont moins élevées que celles des sédiments de la Darse des Docks, mais révèlent tout de même un excès qui peut être dû aux lessivages des terres agricoles auxquelles sont apportés des engrais phosphatés.

11.2. Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des éléments-traces

Les séries temporelles des FE des éléments-traces sont classées de la même façon que celles du site de la Darse des Docks, en 4 séries :

- Série 1 : éléments-traces dont les teneurs dans les sédiments sont accrues par les rejets de phosphogypses sur le site de la Darse des Docks entre 1965 et 1980.
- Série 2 : éléments-traces dont les teneurs dans les sédiments sont peu variables au cours du temps.
- Série 3 : éléments-traces dont les teneurs dans les sédiments diminuent constamment depuis le milieu du XX^e siècle jusqu'à nos jours.
- Série 4 : terres rares.

Les éléments de la série 1 (Figure 83) qui présentent tous une contamination très prononcée dans les années 1970 pour le site de la Darse des Docks, présentent ici des profils différents. Be, Th, U, Y ne présentent pas (ou peu) d'enrichissement par rapport aux shales (profils stables, FE proche de 1). Ni est très légèrement enrichi sur l'ensemble du XX^e siècle. Mo est appauvri avant 1960 (problème de choix de la concentration dans les shales), et s'enrichit par la suite avec des valeurs variant entre 1 et 3. Les FE de Ba, Cu, Sr diminuent progressivement au cours du temps passant de 3 en 1925 à 1 en 2002 pour le Ba, de 11 à 3 pour le Cu, et de 6 à 2 pour le Sr. Enfin, Cr, Cd et Bi présentent des valeurs maximales en 1960, avec un FE maximal de 8 pour le Cr, de 200 pour le Cd, et de 250 pour le Bi. Les séries temporelles de concentration du Cd, du Cu et du Cr présentent des variations similaires à celle d'une carotte prélevée par les équipes du PIREN-Seine en 2003 sur ce même site (Le Cloarec et al., 2011).

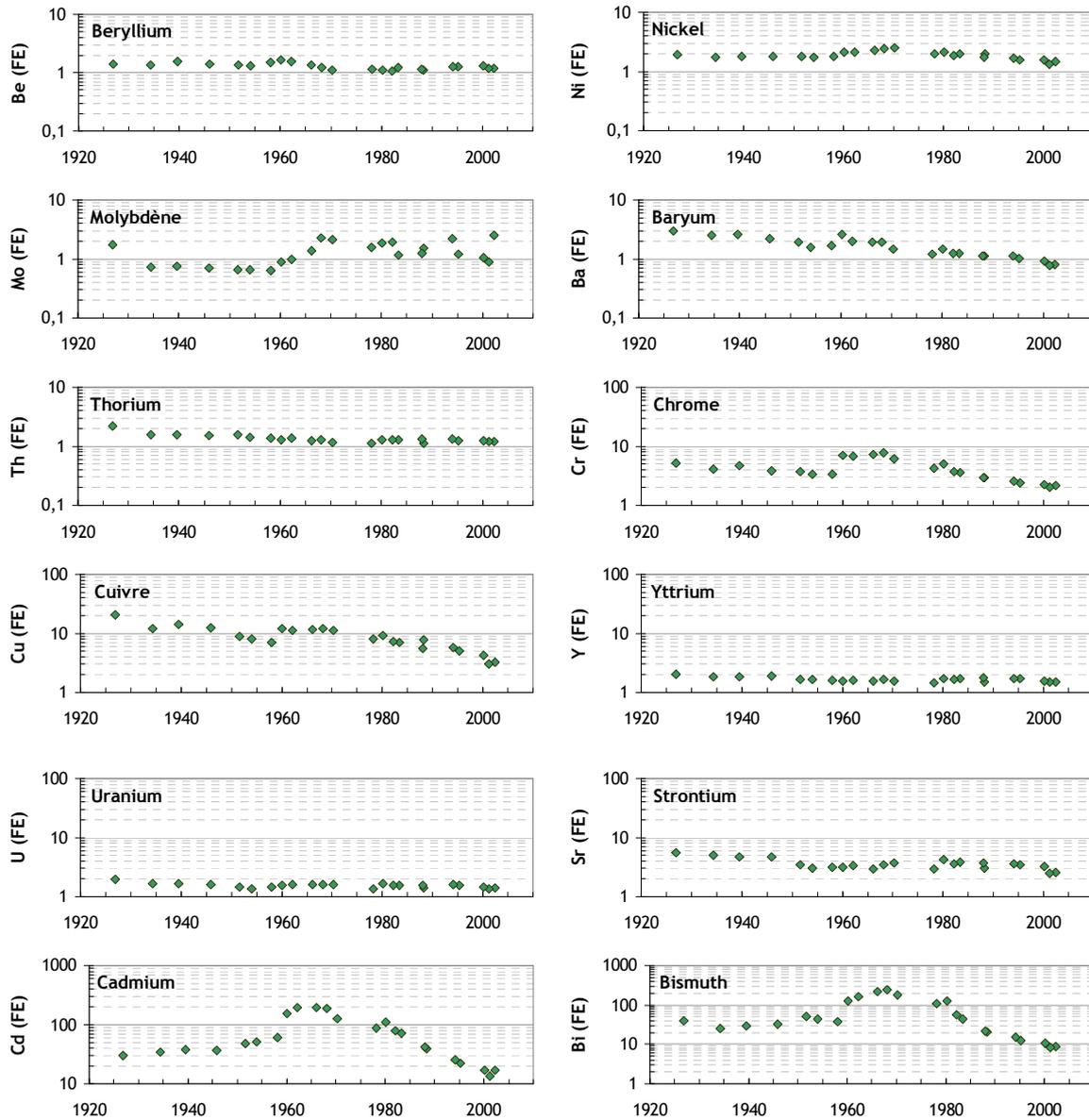


Figure 83 : Séries temporelles des FE des éléments-traces de la série 1 sur le site de Bouafles.

Le Cd et le Bi présentent des séries temporelles de concentrations tout à fait similaires. La Figure 84 indique une très bonne corrélation entre les teneurs de ces deux éléments. Ces constats nous laissent donc penser que ces deux éléments sont issus d'une même source anthropique, non identifiée.

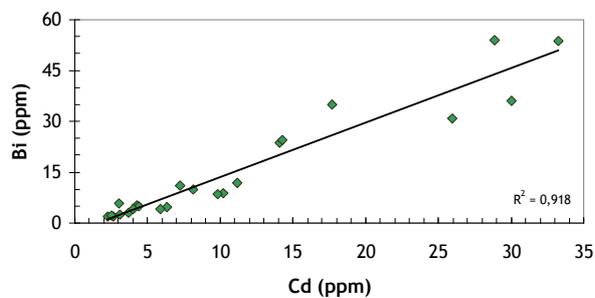


Figure 84 : Relation entre les concentrations en Bi et Cd dans les sédiments de Bouafles.

Les éléments de la série 2 présentent des profils stables sur le site de Bouafles tout comme sur le site de la Darse des Docks (Figure 85) : V, Co, Ga, Rb ne présentent pas d'enrichissement par rapport aux shales ; alors que Ge, Zr, Nb, Cs, Hf et Ta présentent tous un enrichissement par rapport aux shales, avec un FE de 2 à 5 selon les éléments. Etant donnée la constance des FE au cours du temps de ces différents éléments, il est très probable que les enrichissements soient d'origine naturelle, et invitent à reconsidérer la valeur de référence pour ces éléments.

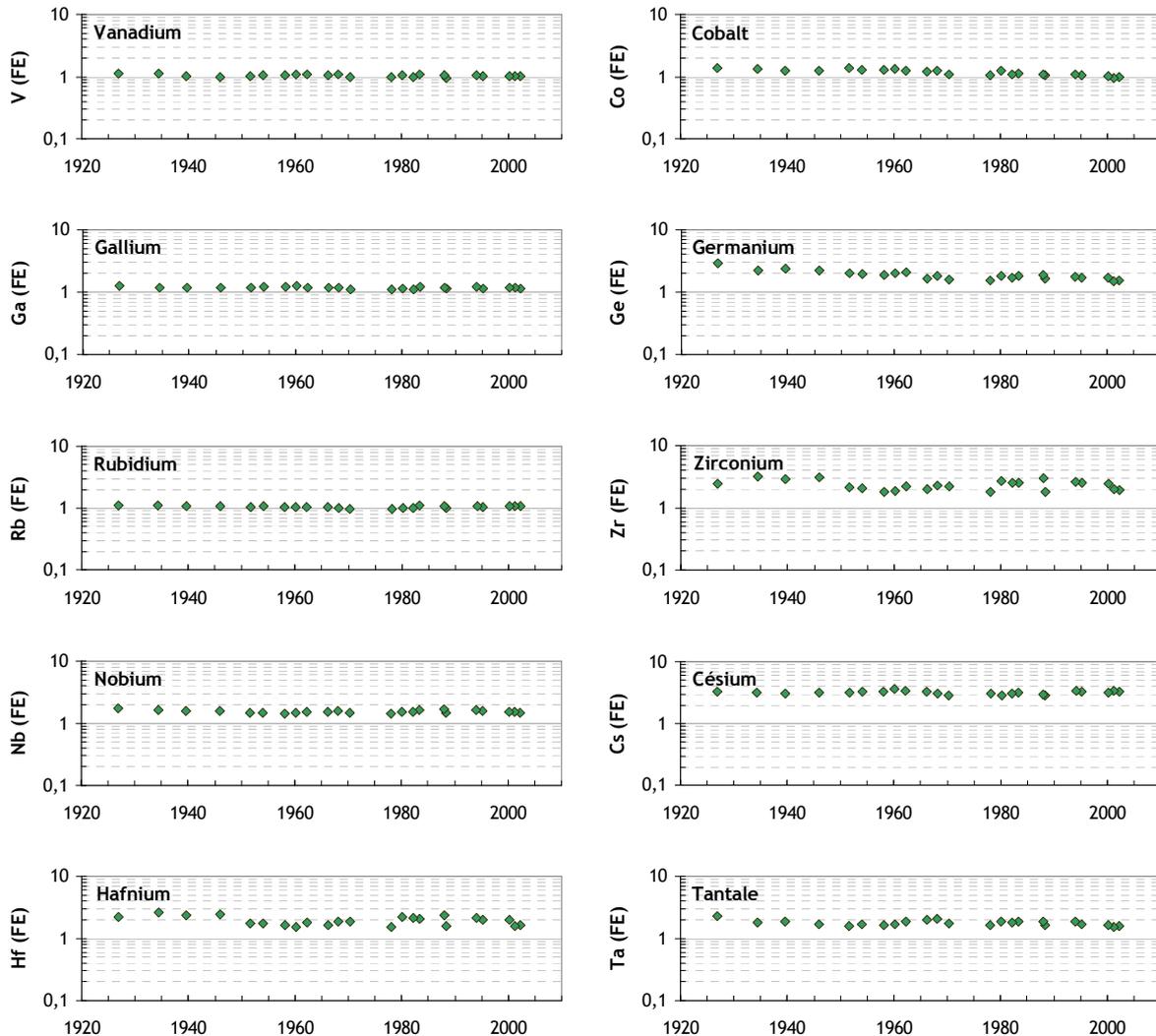


Figure 85 : Séries temporelles des FE des éléments-traces de la série 2 sur le site de Bouafles.

Les éléments de la série 3 présentent des profils similaires à ceux de la Darse des Docks avec des FE en constante diminution au cours du temps au cours de la période 1960-2010 (Figure 86). Les FE d'Ag et W sont maximaux au début des années 1960, tout comme ceux du Cd et Bi, tandis que les autres éléments (As, Zn, Sn, Sb et Pb) présentent un FE maximal dans la première partie du XX^e siècle.

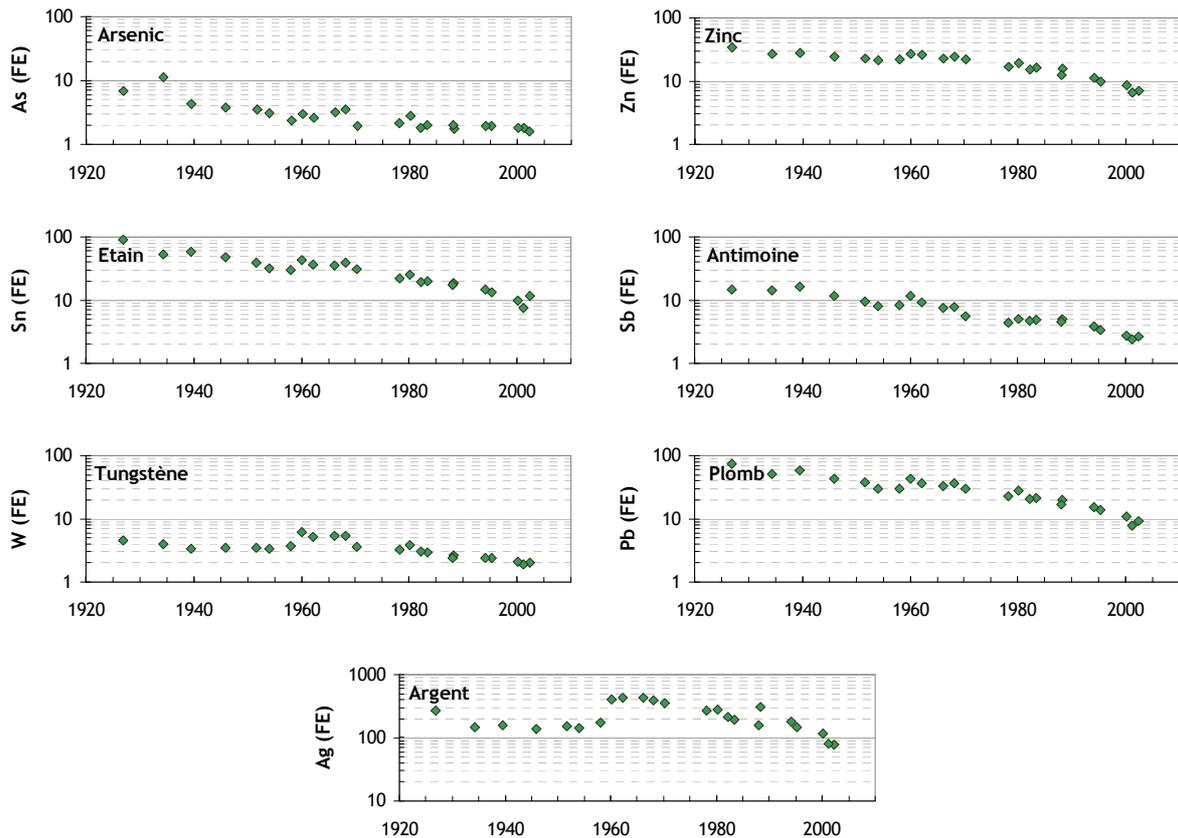


Figure 86 : Séries temporelle des FE des éléments-traces de la série 3 sur le site de Bouafles.

Les séries temporelles de concentration du Pb, du Zn, de l'As et du Sb présentent des variations similaires à celle de la carotte prélevée par les équipes du PIREN-Seine en 2003 sur ce même site (Le Cloarec et al., 2011). Les enrichissements de ces éléments sont liés aux activités industrielles que nous détaillerons dans le chapitre VI.

Les 7 éléments de cette troisième série présentent des FE particulièrement élevés. On notera tout de même que selon Thévenot et al. (2002), le Pb et surtout l'Ag présentent des concentrations naturelles plus élevées dans le fond géochimique du bassin versant de la Seine que dans les shales, ce qui ne justifie toutefois pas de tels FE.

11.3. Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des terres rares

Les terres rares présentent toutes des profils similaires avec des teneurs peu variables au cours du temps (Figure 87). Leurs FE sont proches de 1, ils ne présentent donc pas d'enrichissement par rapport aux shales, contrairement au site de la Darse des Docks où leurs teneurs sont influencées par les rejets de phosphogypses.

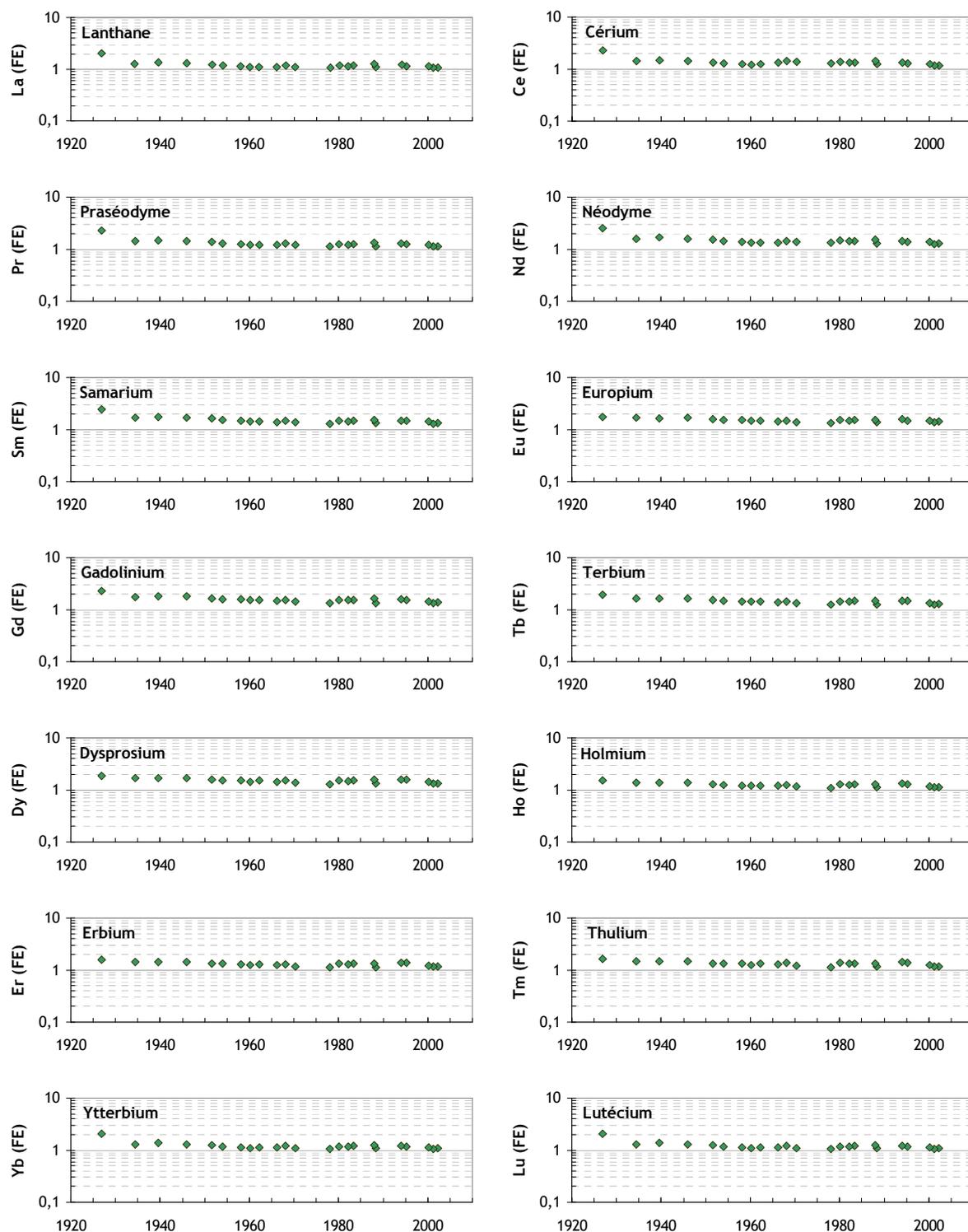


Figure 87 : Séries temporelle des FE des terres rares sur le site de Bouafles.

Sur le site de Bouafles, les terres rares ne présentent pas d'anomalie significative ni en Ce, ni en Eu. La Figure 88 présente le spectre de TR d'un échantillon de la carotte de Bouafles (échantillon représentatif de l'ensemble des échantillons dont les sédiments ont été déposés après 1950), ce spectre est similaire à celui des MES des fleuves (Martin and Meybeck, 1979).

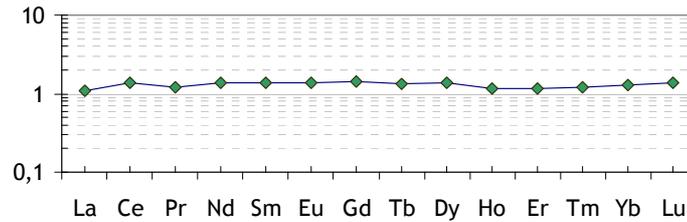


Figure 88 : Spectre des teneurs en terres rares normées aux shales de l'échantillon BOUA-01-2010-057, prélevé à 56,5 cm de profondeur sur la carotte de Bouafles et daté à 1970,3.

12. Evolution temporelle des activités des radionucléides

Comme pour les éléments stables, les radionucléides sont présentés suivant la même logique que celle suivie pour le site de la Darse des Docks.

12.1. Radionucléides d'origine artificielle

La Figure 89 présente les activités en ^{137}Cs avec : (1) les valeurs brutes, telles qu'elles sont au moment du prélèvement de la carotte en avril 2010, (2) les valeurs corrigées de la décroissance grâce à la date du dépôt déduite du modèle d'âge : on obtient alors l'activité telle qu'elle était au moment du dépôt des sédiments dans le bras de Bouafles. Jusqu'en 1954, le ^{137}Cs ne présente pas d'activité décelable dans l'environnement. En 1963, son activité atteint une valeur maximale de 154 Bq.kg^{-1} à l'époque du dépôt, comme conséquence des retombées atmosphériques des essais nucléaires. Le pic de ces retombées est bien marqué sur la carotte ; il s'étend de 1958 à 1970. Un deuxième pic moins marqué est visible entre 1983 et 1994 : la valeur maximale atteinte au moment du dépôt est de 46 Bq.kg^{-1} . Ce pic attribué aux retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl, présente ici des activités moins élevées que dans les sédiments de la Darse des Docks. Trois explications peuvent être avancées pour expliquer cette différence :

- la crue de 1986 est terminée au moment de l'accident de Tchernobyl (en mai de cette année), le ^{137}Cs pourra donc marquer les sédiments du bras de Bouafles seulement l'année suivante et les valeurs maximales de ces retombées ne sont alors pas enregistrées sur ce site.
- le taux de sédimentation est plus faible à Bouafles que dans la Darse des Docks ; même avec un pas d'échantillonnage plus resserré sur la carotte de Bouafles, le signal est tout de même lissé.
- la bioturbation étant plus importante à Bouafles que dans la Darse des Docks, elle contribue aussi à mélanger le sédiment, et donc à atténuer les valeurs maximales.

Entre ces valeurs extrêmes, les activités corrigées de ^{137}Cs sont de l'ordre de 20 Bq.kg^{-1} . Après 1995, elles sont de l'ordre de 10 Bq.kg^{-1} .

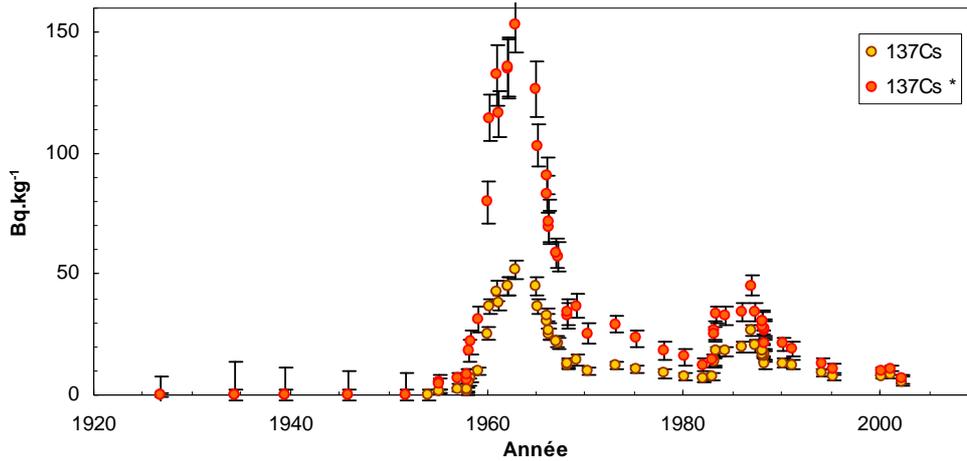


Figure 89 : Evolution temporelle des activités en ^{137}Cs sur le site de Bouafles. Les valeurs en jaune (^{137}Cs) représentent les données brutes telles qu'elles étaient à la date du prélèvement de la carotte. Les valeurs en orange ($^{137}\text{Cs}^*$) représentent les données corrigées de la décroissance radioactive depuis le dépôt. Les 5 premiers points de la série correspondent à des valeurs inférieures à la limite de détection ($2,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$).

Avant 1945, le ^{137}Cs n'avait jamais été libéré dans l'environnement et son activité dans les sédiments est donc nulle. Entre 1945 et 1954, le ^{137}Cs est présent dans l'environnement en très faible quantité : son activité dans les sédiments est sous la limite de détection notée avec des valeurs nulles sur la figure.

Les isotopes du Pu (238 , 239 et 240) proviennent, en amont de l'estuaire de la Seine, de deux sources principales :

- les retombées des tirs atmosphériques d'armes nucléaires réalisés entre 1954 et 1980.
- les rejets contrôlés d'une installation nucléaire de la région parisienne.

Le ^{238}Pu est décelable dans les sédiments déposés après 1950 (Figure 90). Dans les années 1970, les crues de la Seine ont été faibles et, par conséquent, les dépôts sédimentaires dans le bras de Bouafles ont été moindres. Durant cette période, 1 cm de sédiment peut correspondre aux dépôts de plusieurs années : les valeurs maximales dans le signal de ^{238}Pu s'en trouvent donc atténuées. Les valeurs d'activité du ^{238}Pu se stabilisent autour de 30 mBq.kg^{-1} à partir de 1990 jusqu'à nos jours. Comme nous l'avons vu précédemment, chaque année l'enregistrement sédimentaire ne peut s'effectuer que pendant les quelques mois de crue, parfois moins. Il est probable que la valeur maximale du pic de l'année 1975 ne puisse être distinguée. De plus, le rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ qui atteint une valeur de 3,6 dans les sédiments de la Darse des Docks ne dépasse pas ici celle de 1,8.

Le $^{239,240}\text{Pu}$ est décelé plus tôt que le ^{238}Pu dans les sédiments du site de Bouafles, mais présente des activités infimes entre 1920 et 1950 (Figure 90). Il est surprenant de déceler du $^{239,240}\text{Pu}$ avant 1954 ; il est possible qu'il s'agisse d'un artefact lié à la technique de carottage ou d'un problème de datation des niveaux les plus profonds de la carotte. En 1963, il atteint une activité maximale de

4540 mBq.kg⁻¹, à la suite du maximum des retombées atmosphériques des essais nucléaires ; puis, son activité diminue nettement à partir de 1973 (environ 400 mBq.kg⁻¹) pour se stabiliser autour de 150 mBq.kg⁻¹ à partir de 1990.

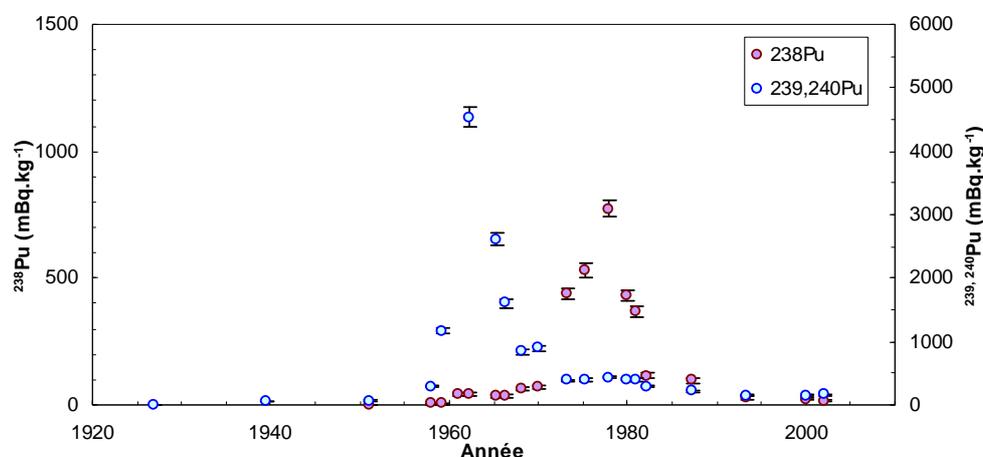


Figure 90 : Séries temporelles des activités en ²³⁸Pu et ^{239,240}Pu sur le site de Bouafles.

Les retombées des essais nucléaires ont un rapport isotopique ²³⁸Pu/^{239,240}Pu de 0,04 au moment de leur dépôt. Ce rapport décroît progressivement dans le temps : il est aujourd'hui d'environ 0,028 ; son évolution est représentée en orange sur la Figure 91. Du fait des deux origines de Pu en amont du barrage de Poses, les rejets d'une installation nucléaire de la région parisienne ont fait varier le rapport isotopique habituellement observé dans les environnements touchés par les retombées des essais nucléaires du début des années 1960.

Sur la Figure 91, on observe deux types de données représentant le rapport ²³⁸Pu/^{239,240}Pu. Tout comme sur la Figure 89, une de ces séries représente le rapport isotopique dans la carotte au moment du prélèvement de cette dernière en 2010 (en beige) et la deuxième série représente les valeurs du rapport ²³⁸Pu/^{239,240}Pu corrigées de la décroissance à la date du dépôt des sédiments (cette deuxième série a été corrigée de la décroissance du ²³⁸Pu de période 87,7 ans ; les isotopes 239 et 240 du Pu ayant une très longue période, la correction n'a pas été effectuée).

Avant 1966, le rapport ²³⁸Pu/^{239,240}Pu est inférieur à celui attendu pour les retombées des essais nucléaires : il y a donc un apport supplémentaire en ^{239,240}Pu dans les sédiments. Des rejets de radionucléides émetteurs alpha ont été effectués au début des années 1960 avec un rapport isotopique différent de celui des retombées atmosphériques des essais nucléaires par une installation nucléaire de la région parisienne. Il est possible que ces rejets puissent avoir un rapport isotopique ²³⁸Pu/^{239,240}Pu inférieur à celui des retombées atmosphériques des essais nucléaires, ce qui expliquerait que les sédiments de Bouafles présentent un rapport inférieur à celui attendu.

A partir de 1973, le rapport isotopique ²³⁸Pu/^{239,240}Pu devient supérieur à celui des retombées atmosphériques des essais nucléaires. Des rejets de ²³⁸Pu sont certainement à l'origine d'un rapport isotopique dans les sédiments plus fort que celui attendu pour les dépôts atmosphériques des essais nucléaires.

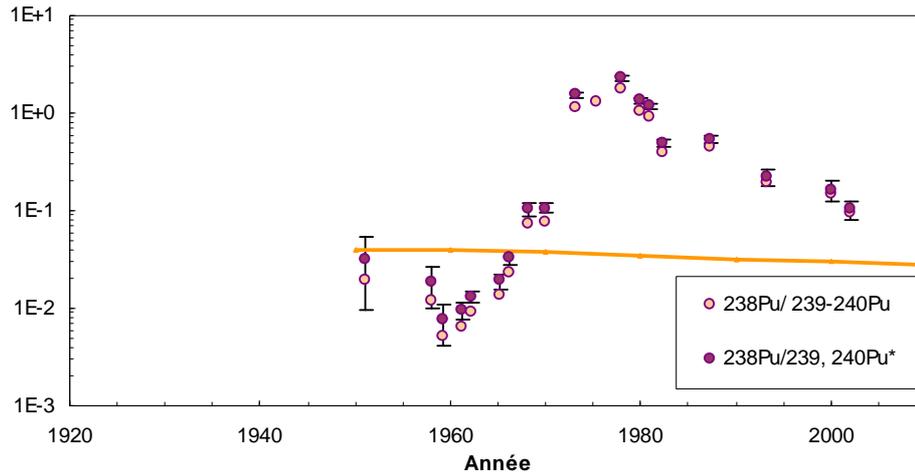


Figure 91 : Evolution du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de Bouafles ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance du ^{238}Pu depuis le dépôt, notées * ; la ligne orange représente les valeurs caractéristiques des retombées des essais nucléaires atmosphériques.

L'activité de l' ^{241}Am est très faible jusqu'à la fin des années 1950 (Figure 92), puis elle augmente brutalement pour atteindre une valeur maximale de 770 mBq.kg^{-1} en 1965. Elle diminue ensuite lentement pour se stabiliser autour de 70 mBq.kg^{-1} à partir des années 1990. L' ^{241}Am peut provenir soit des retombées atmosphériques des essais nucléaires, mais également des rejets des installations nucléaires de la région parisienne. Il est ainsi probable que ces rejets contenaient également de l' ^{241}Am .

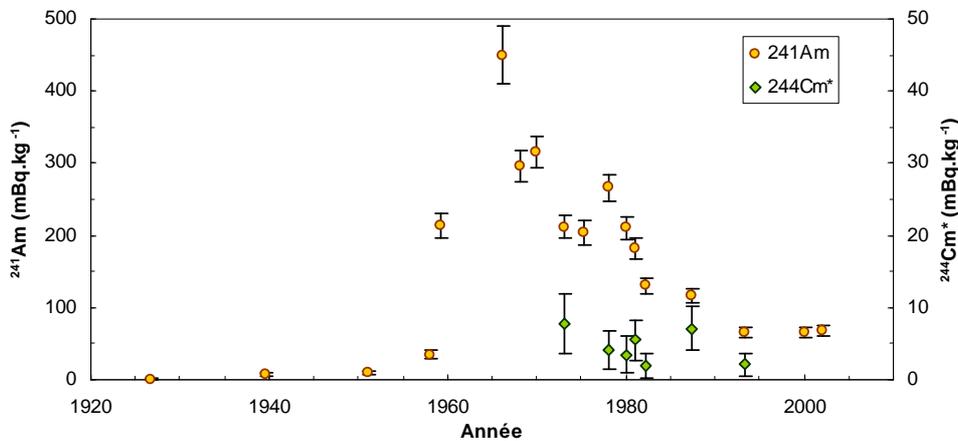


Figure 92 : Evolution temporelle des concentrations en ^{241}Am et ^{244}Cm dans les sédiments de Bouafles ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées * pour le ^{244}Cm .

Le ^{244}Cm n'est pas détecté dans les sédiments de Bouafles avant le début des années 1970. Les activités en ^{244}Cm rapportées à la date du dépôt sont comprises entre 2 et 8 mBq.kg^{-1} . Les rapports $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$ sont compris entre 16 et 65. Tout comme sur le site de la Darse des Docks, ces valeurs signent la présence d'un apport provenant vraisemblablement des installations nucléaires de la région parisienne.

12.2. Radionucléides d'origine naturelle

Les activités du ^{40}K ont été calculées à partir des concentrations en K stable mesurées par ICPMS (1 Bq.kg $^{-1}$ de ^{40}K correspond à 262,6 ppm de K stable). Les activités du ^{40}K , comprises entre 192 et 325 Bq.kg $^{-1}$, sont dépendantes de la granulométrie du sédiment. Le profil du ^{40}K est donc logiquement similaire à celui de l'Al (Figure 82).

Le ^{232}Th et ses descendants sont uniquement d'origine naturelle. La série temporelle de Bouafles du ^{232}Th présente des activités assez constantes au cours du temps (Figure 93). Les différents radionucléides sont à l'équilibre, avec une activité de l'ordre de 35 Bq.kg $^{-1}$. Les écarts observés peuvent être liés à l'incertitude de la mesure qui diffère selon les éléments et selon les activités, de 1 à 40 Bq.kg $^{-1}$.

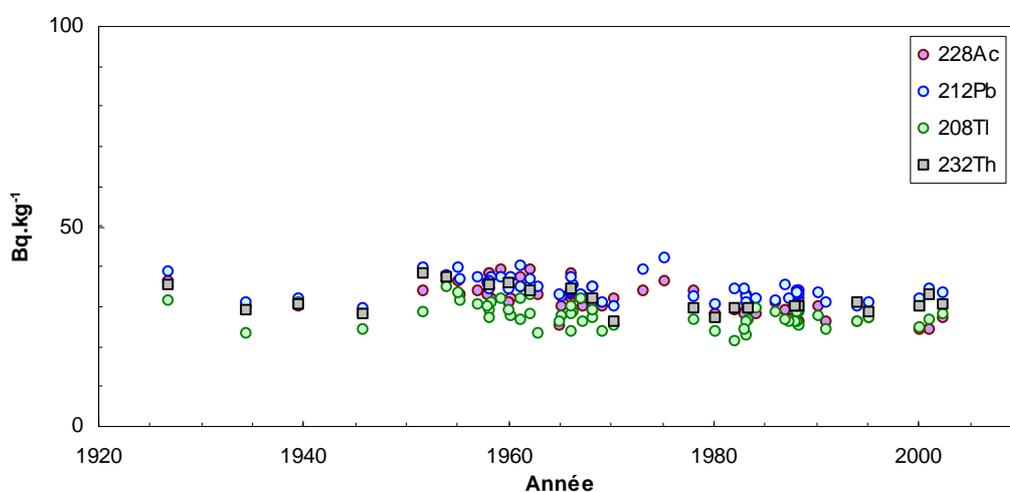


Figure 93 : Evolution temporelle des concentrations des radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{232}Th : ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; les activités en ^{232}Th ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en ^{208}Tl ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les concentrations en ^{212}Bi , très voisines de celles en ^{212}Pb , ne sont pas représentées ; valeurs exprimées en Bq.kg $^{-1}$ sec.

Comme pour les éléments stables, les variations de concentrations peuvent être liées à la granulométrie des sédiments : par exemple, les activités plus importantes en ^{228}Ac et ^{212}Pb vers 1975 sont rencontrées dans du matériel plus fin.

L' ^{235}U présente des activités très faibles qui ne dépassent pas 2 Bq.kg $^{-1}$ sur le site de Bouafles. La Figure 94 présente les activités de cet élément (l'échelle choisie est la même que celle utilisée pour les activités de ^{235}U des sédiments de la Darse des Docks). Son descendant, le ^{227}Th , n'est jamais détecté dans les sédiments de Bouafles. Ces deux radionucléides semblent se trouver en concentration naturelle dans ces sédiments.

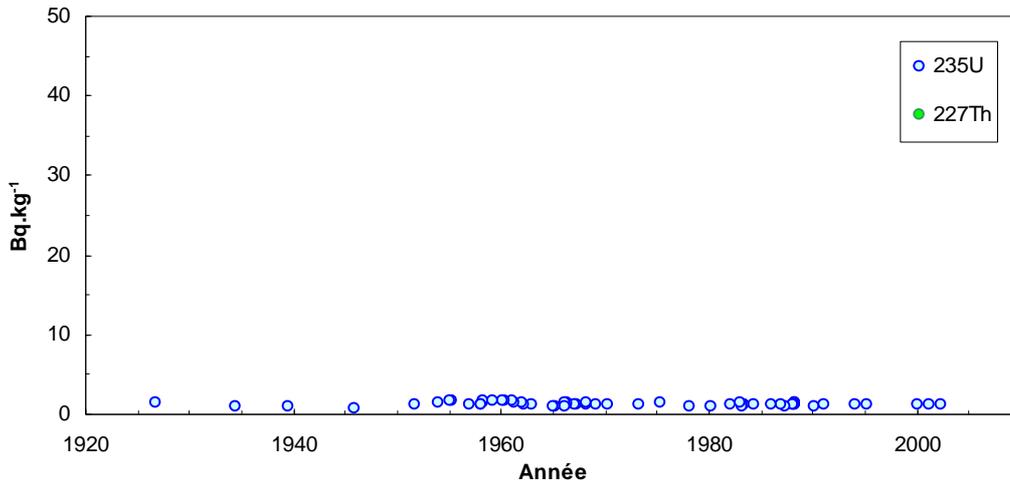


Figure 94 : Evolution temporelle des concentrations en ^{235}U ; valeurs en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$.

L'U naturel tel qu'il est extrait de son minerai contient 99,275 % de l'isotope 238 (12 346 Bq), 0,719 % de l'isotope 235 (575 Bq). L'activité de l' ^{235}U dans les sédiments de Bouafles est en moyenne de $1,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Le rapport d'activité $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ est donc de 21,5 ; on peut déduire l'activité théorique du ^{238}U à 28 Bq.kg^{-1} . Elle est compatible avec l'activité réellement mesurée, aux incertitudes près (Figure 95).

Enfin, la série de l' ^{238}U présente des activités stables au cours du temps dans les sédiments de Bouafles. Les activités du ^{210}Pb et ^{226}Ra présentent des valeurs légèrement supérieures au reste des éléments de la chaîne : ^{214}Pb , ^{238}U et ^{234}Th . Ces écarts peuvent être liés à l'incertitude des mesures qui sont relativement importantes : $\pm 24 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{226}Ra , $\pm 6 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{214}Pb , $\pm 17 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{210}Pb , et $\pm 20 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{234}Th .

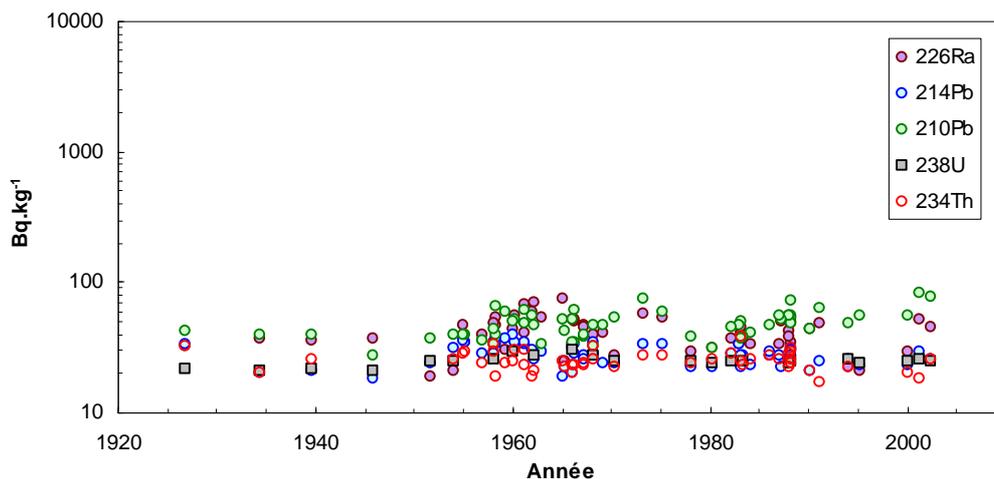


Figure 95 : Evolution temporelle des activités des radionucléides émetteurs γ de la chaîne de l' ^{238}U : ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb ; les activités en ^{238}U ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en ^{214}Bi , très voisines de celles en ^{214}Pb , ont été omises ; activités exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$.

L'échelle de représentation est la même que celle utilisée pour le site de la Darse des Docks. Dans les sédiments de la Darse des Docks, de forts apports anthropiques font varier les activités des

radionucléides d'origine naturelle ; ce n'est pas le cas sur ce site, où les activités mesurées semblent seulement dues aux apports naturels du bassin versant.

13. Conclusion

Le fonctionnement hydrosédimentaire du site de Bouafles est radicalement différent de celui observé sur le site de la Darse des Docks. Cet ancien bras de la Seine, fonctionne depuis 1960 comme une plaine d'inondation proche du lit du fleuve, recevant des apports sédimentaires uniquement en période de hautes eaux saisonnières (crues), à la condition que les débits soient suffisamment élevés. Les différences majeures d'enregistrement sédimentaire avec le site de la Darse des Docks sont les suivantes : (1) l'enregistrement sédimentaire n'a lieu qu'une partie de l'année, pouvant être inexistant lors de quelques années assez bien identifiées ; (2) le site est marqué par la bioturbation, en particulier durant les 30 dernières années, qui engendre une atténuation des signaux enregistrés ; (3) le taux de sédimentation est plus faible : $1,8 \text{ cm.an}^{-1}$ en moyenne. Ces particularités ont des conséquences dans la qualité de l'enregistrement de certains événements ponctuels par rapport à ce qui est enregistré dans les carottes de la Darse des Docks. Malgré ces limitations, nous bénéficions en ce site fluvial d'un enregistrement sédimentaire relativement complet.

La carotte de Bouafles a été datée en utilisant des repères chronologiques fournis par les analyses des radionucléides émetteurs alpha et gamma. Pour affiner cette datation, les variations des hauteurs d'eau de la Seine ont été couplées à l'évolution de l'altitude du point de carottage dans le but de déterminer les périodes d'inondation du site et leurs durées.

Les sédiments déposés à Bouafles sont globalement silteux ; ils présentent une granulométrie assez similaire à ceux de la Darse des Docks, ce qui facilite les comparaisons des données géochimiques entre les sites ; malgré cela, pour plus de rigueur, la comparaison des données d'un site à l'autre s'effectuera après normalisation à l'Al. Les sédiments de la Darse des Docks présentent des teneurs stables en éléments majeurs, mis à part les teneurs en P qui présentent de légers enrichissements. Si de nombreux éléments-traces présentent des teneurs stables (V, Co, Ga, Ge, Rb, Zr, Nb, Cs, Hf, Ta, Mo, Be, Ni, Y, U, terres rares), d'autres présentent des FE élevés décroissant au cours du temps : Zn, As, Sn, Sb, Pb, Ag, Ba, Cu, Sr, ou encore des FE maximaux dans les années 1960 : Cr, Cd, Bi, W. Dans cette carotte sédimentaire, sont également enregistrés divers événements marqués par l'apport de radionucléides. Des teneurs élevées dans les années 1960 en ^{137}Cs , $^{238,339,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am témoignent des retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires. Tout comme sur le site de la Darse des Docks, une anomalie de ^{238}Pu est détectée au milieu des années 1970 du fait d'un rejet effectué par une installation nucléaire de la région parisienne en 1975. L'excès de ^{137}Cs au milieu des années 1980 est issu des retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl. Du fait de la bioturbation et de l'absence de dépôt en période d'étiage, ces deux derniers événements sont enregistrés de façon moins précise sur ce site que sur le site de la Darse des Docks. Les radionucléides

d'origine naturelle ne présentent quant à eux aucun enrichissement.

Cette plaine d'inondation témoigne de la contamination de l'ensemble du bassin versant de la Seine ; elle a été étudiée par les équipes du PIREN-Seine (Billen et al., 2009 ; Le Cloarec et al., 2007 ; Le Cloarec et al., 2011 ; Meybeck et al., 1998 ; Meybeck et al., 2004 ; Priadi et al., 2010 ; Thévenot et al., 2009 ; Thévenot et al., 2002 ; Thévenot et al., 2007) ; les travaux présentés ici apportent une contribution significative à ceux déjà réalisés : premières séries temporelles à l'aval du bassin versant de la Seine en certains éléments stables, et en radionucléides émetteurs alpha, notamment.

Les résultats des analyses géochimiques issues du site de Bouafles seront essentiels dans la suite de ce travail pour identifier les contaminations intra-estuariennes et les quantifier. Les carottes prélevées à Bouafles dans le but de servir de site témoin de la contamination du bassin versant permettent également de compléter l'historique de la contamination du bassin versant de la Seine par les mesures de différents éléments non étudiés dans les sédiments jusqu'alors.

CHAPITRE IV :
Enregistrement sédimentaire
de la contamination
à l'embouchure de la Seine

1. Introduction

Les deux chapitres précédents ont permis de reconstituer l'historique de la contamination en éléments-traces et en radionucléides dans l'estuaire fluvial de la Seine et en amont de l'estuaire, à partir de deux sites où la bonne qualité de l'enregistrement sédimentaire a pu être démontrée. Ce quatrième chapitre est consacré à l'étude d'un troisième site à l'embouchure de la Seine. Dans le but de déterminer l'historique des apports en contaminants en aval de l'estuaire, nous y avons recherché un enregistrement sédimentaire exploitable. Comme l'embouchure de la Seine est le siège d'apports sédimentaires marins, une carotte sédimentaire bien choisie devrait permettre d'accéder à l'historique des apports en contaminants issus de la Manche et d'évaluer leur pénétration dans l'estuaire fluvial via le phénomène de pompage tidal (Chapitre VII).

La prospection d'un site de bon enregistrement sédimentaire sur une longue période de temps est difficile dans l'estuaire aval, où les sédiments sont soumis à des phénomènes hydrologiques très variables engendrant des érosions fortes et fréquentes des sédiments. Le choix d'un site de carottage est donc délicat ; dans le cas présent, ce choix a été facilité par l'existence de carottes déjà prélevées et caractérisées à l'embouchure de la Seine. Ce chapitre est construit de la même façon que les deux précédents : nous verrons comment le site d'étude a été choisi ; nous décrirons ce site, puis les carottes qui y ont été prélevées. Nous présenterons les analyses géochimiques effectuées, puis leur datation et enfin les séries temporelles de concentrations des éléments-traces et des radionucléides.

2. Choix du site

Deux carottes longues ont été prélevées sur la Vasière Nord en 2002. Elles ont fait l'objet d'analyses sédimentaires et géochimiques qui n'avaient pas été exploitées jusqu'alors. La Vasière Nord, constituée d'apports de sédiments fins rythmés par le forçage essentiel de la marée, nous a semblé être un site approprié pour notre étude. Elle a fait l'objet d'études concernant son évolution et son fonctionnement sédimentaire (Cuvilliez, 2008 ; Cuvilliez et al., 2009 ; Deloffre, 2005 ; 2006 ; Deloffre et al., 2007 ; Hoyez and Cuvilliez, 2002 ; Lesourd, 2000 ; Lesourd et al., 2003 ; Lesueur et al., 1999). Une étude a également été menée sur l'accumulation des métaux lourds dans cette vasière macrotidale (Cundy et al., 2005). Il existe des perturbations évidentes (érosions, bioturbation) dans l'enregistrement sédimentaire de ce site, mais aucun site non perturbé n'a été jusqu'alors décrit dans l'embouchure de la Seine. Parmi les deux carottes prélevées, une a été sélectionnée (carotte VKN01) et a fait l'objet d'analyses similaires à celles effectuées sur les carottes de la Darse des Docks et de Bouafles.

3. Description de la Vasière Nord

3.1. Localisation du site

La Vasière Nord est située sur la rive droite de l'embouchure de la Seine (PK 351 à PK 358). La carotte étudiée a été prélevée sur la partie nue de la haute slikke (Figure 96), au PK 355 environ (le Pont de Normandie traverse la Vasière Nord au niveau du PK 353).



Figure 96 : Localisation de la Vasière Nord et du point de carottage
(Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>).

3.2. Evolution récente de l'embouchure de la Seine

Avant la canalisation de son chenal, l'embouchure de la Seine constituait un vaste espace où les lits des chenaux se déplaçaient sans cesse. D'importants travaux d'endiguement ont été menés à la fin du XIX^e siècle et au cours du XX^e siècle pour stabiliser le lit du fleuve et l'approfondir. Les zones marginales de l'estuaire ont alors subi de fortes sédimentations et leurs surfaces se sont considérablement réduites, les terres émergées gagnant sur les vasières (Figure 97).

La Vasière Nord est le reliquat intertidal de l'estuaire "sauvage". Les travaux d'endiguement ont imposé un axe unique au cours du fleuve et l'actuelle Vasière Nord s'est développée au nord de cet axe. Elle constitue une zone en grande partie intertidale sur laquelle la sédimentation est très active. Les nombreux aménagements, en particulier la construction de la digue submersible nord, réalisée à sa proximité, ont entraîné une continentalisation importante de cet espace intertidal (en gris sur la Figure 97, bas). Le schorre a progressé vers le sud, réduisant la surface de la vasière nue (slikke) de 35 % entre 1974 et 1999 (CSLHN, 1999). Pour enrayer ce phénomène, les digues ont été abaissées au niveau d'une brèche, permettant une circulation de l'eau, et une érosion partielle des sédiments accumulés.

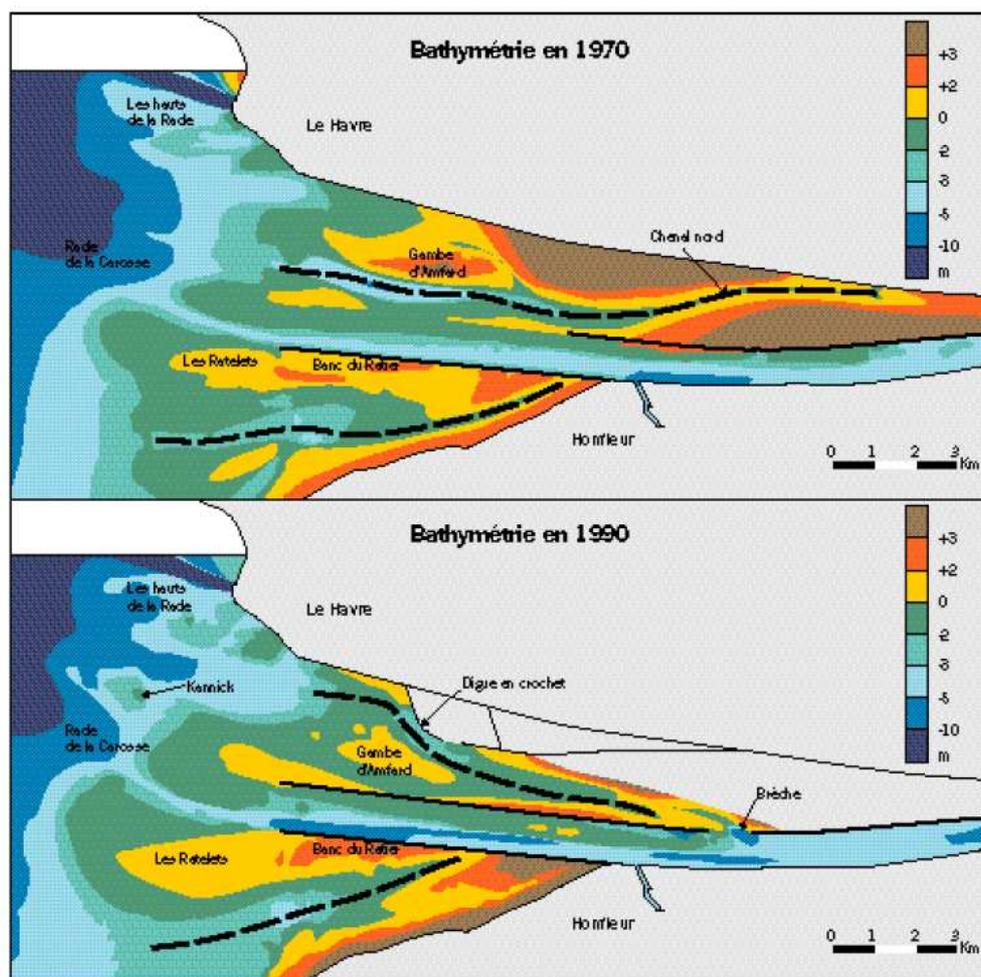


Figure 97 : Cartes récentes de la bathymétrie dans l'estuaire aval ; situations en 1970 et 1990, simplifiées et redessinées d'après les sondages du Port de Rouen. Les axes des chenaux nord et sud sont matérialisés par des tirets, de part et d'autre du chenal de navigation limité par des digues submersibles à marée haute, marquées par des traits noirs pleins (Lesueur et al., 1999).

3.3. Dynamique du site

Malgré la brèche, la Vasière Nord s'exhausse. Sur une vasière en comblement, on observe des séquences sédimentaires typiques (Figure 98). Les vasières comportent des sédiments de granulométrie hétérogène avec des zones sableuses et des zones vaseuses : la granulométrie des sédiments est fonction de l'hydrodynamique propre à chacune des zones de la vasière. On observe généralement une évolution de la granulométrie du bas vers le haut de la vasière (Figure 98), avec des sédiments sableux sur la partie la plus proche du chenal principal et des sédiments plus vaseux vers la haute slikke. Le comblement induit donc une séquence de comblement partant des sédiments les plus grossiers en profondeur, auxquels se superpose une alternance de dépôts sableux et de dépôts vaseux, puis des dépôts vaseux vers le haut.

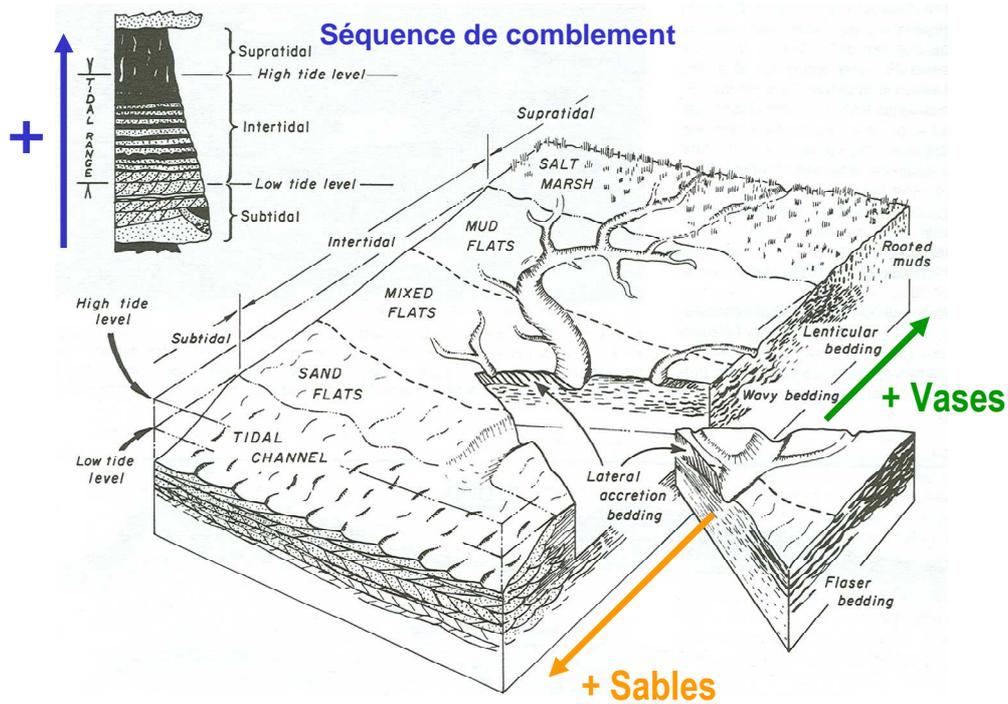


Figure 98 : Morphologie et nature des sédiments d'une vasière intertidale ; séquence de comblement (Dalrymple, 1992).

La granulométrie des sédiments est également fonction de l'emplacement des chenaux transversaux. Le fond du lit des chenaux transversaux est constitué de sédiments grossiers, de coquilles. Lorsqu'un chenal migre, il érode l'une de ses berges (berge concave), lui donnant un profil abrupt, en falaise et des sédiments se déposent progressivement sur l'autre berge (berge convexe) de façon oblique, recouvrant ainsi les dépôts coquilliers (Figure 99).

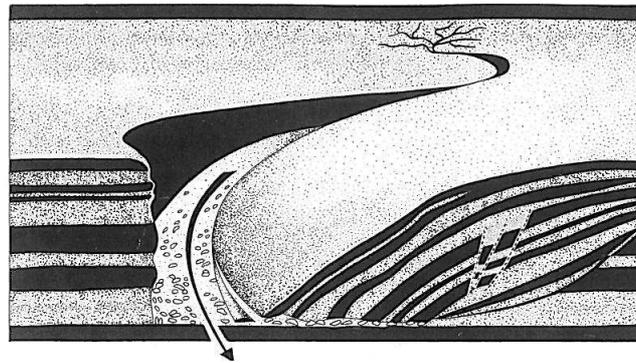


Figure 99 : Diagramme schématique de migration d'un chenal sur une vasière (Reineck and Singh, 1973).

La carotte étudiée (VKN01) correspond dans son ensemble au schéma précédent. L'étude de la carte bathymétrique de 1960 montre que le site de carottage se situait alors dans ou à proximité immédiate du chenal principal de navigation de l'époque, soit au nord de l'actuel chenal principal de l'estuaire de la Seine (Figure 100). Après la construction de la digue submersible nord, ce chenal s'est comblé très rapidement (Lesueur et al., 1999). A partir des années 1970, le point de carottage que nous étudions, n'était plus dans le chenal, mais sur la Vasière Nord, qui s'est ensuite comblée.

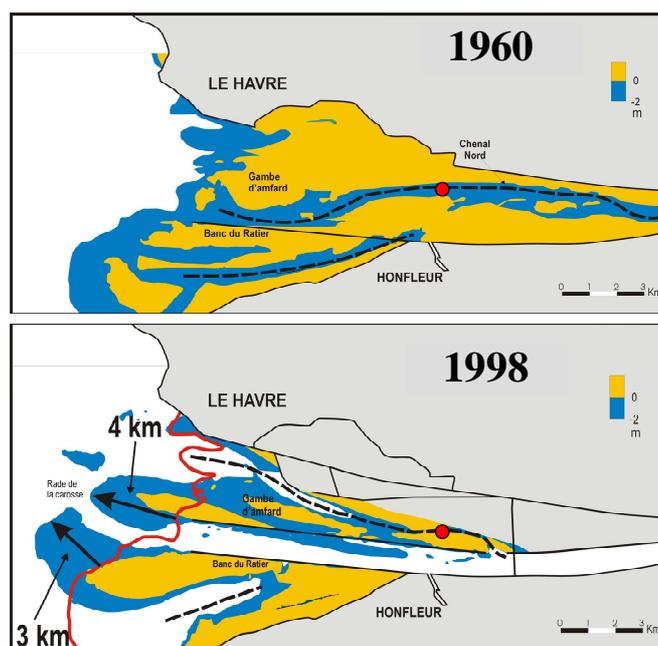


Figure 100 : Evolution morphologique de l'estuaire aval de la Seine en 40 ans (Lesueur et al., 1999) ; les points rouges indiquent le site de carottage.

Sur les sites de la Darse des Docks et de Bouaffles, les analyses sédimentaires et géochimiques nous ont permis de mieux comprendre la dynamique sédimentaire. Sur le site de la Vasière Nord, les études déjà réalisées vont nous permettre d'interpréter les analyses effectuées sur les sédiments de la carotte que nous allons présenter maintenant. Après la datation de la carotte, nous passerons directement (puisque la dynamique du site est déjà connue), à la présentation des séries temporelles de concentrations des éléments-traces et des radionucléides.

4. Prélèvement et ouverture, description et échantillonnage de la carotte VKVN01

4.1. Prélèvement et ouverture

La carotte VKVN01 a été prélevée à l'aide d'un carottier à percussion le 23 janvier 2002. Sa longueur totale est de 708 cm ; elle a été divisée en six tronçons. Les deux tronçons de surface ont été prélevés dans un tube en PVC de 10 cm de diamètre ; ils représentent 185 cm. Les 4 tronçons inférieurs ont été prélevés dans un tube en aluminium de 7 cm de diamètre. L'ensemble des tronçons a été aussitôt ouvert au laboratoire (M2C Caen).

4.2. Description lithologique

Une description de faciès sédimentaires a alors été effectuée (Figure 101). La texture du sédiment est facilement déterminable à l'œil nu : la granulométrie très variable (des argiles aux sables fins) est typique des sédiments dits hétérolithiques des milieux à marées. Des traces de bioturbation sont observées dans les seuls tronçons de surface de la carotte.

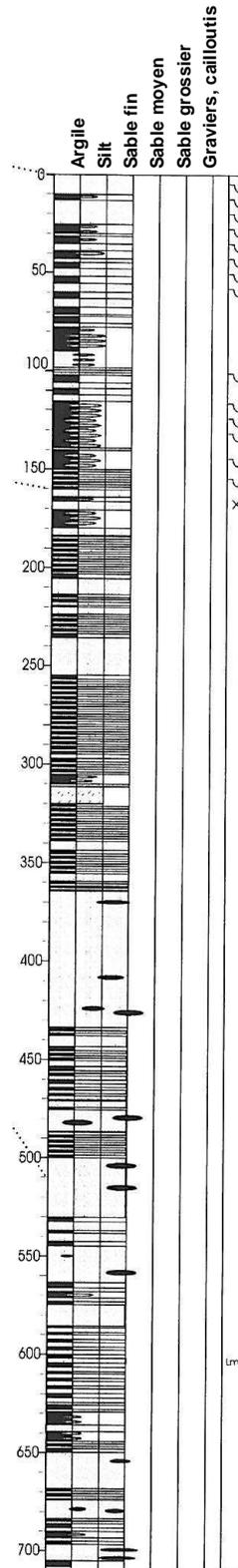


Figure 101 : Description lithologique de la carotte VKVN01 (P. Lesueur et N. Delsinne).

Des lentilles argileuses, correspondant à des dépôts non consolidés de vase, sont identifiées au sein de certains niveaux sableux (Figure 102). A l'échelle de l'ensemble de la carotte, les niveaux sableux sont davantage présents et épais en profondeur, tandis qu'en surface les niveaux sableux sont plus minces, d'épaisseurs semblables à celles des niveaux argileux.

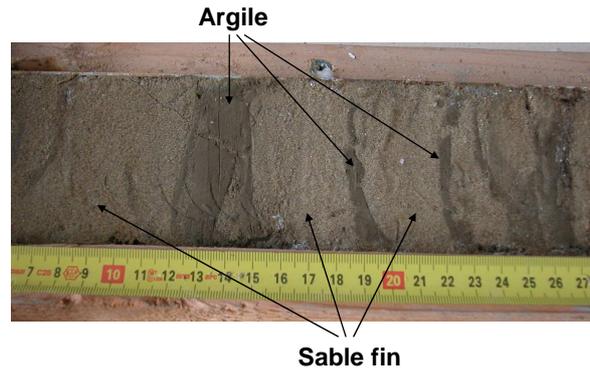


Figure 102 : Extrait de tronçon de la carotte VKVN01.

La carotte VKVN01 a fait l'objet d'une analyse SCOPIX® au laboratoire EPOC (UMR CNRS 5805, Bordeaux 1) ; elle révèle des sédiments de nature contrastée (Figure 103). Les lamines présentent des épaisseurs très variables de l'ordre du mm à plusieurs cm. Certains passages sont très sableux (0 à 10 cm, 235 à 255 cm, ...) ; d'autres au contraire sont plus argilo-silteux (265 à 305 cm, 595 à 605 cm, ...). De nombreuses marques de bioturbation sont présentes vers le haut (101 à 111 cm, 131 à 141 cm, ...), témoignant de l'installation de la haute slikke.

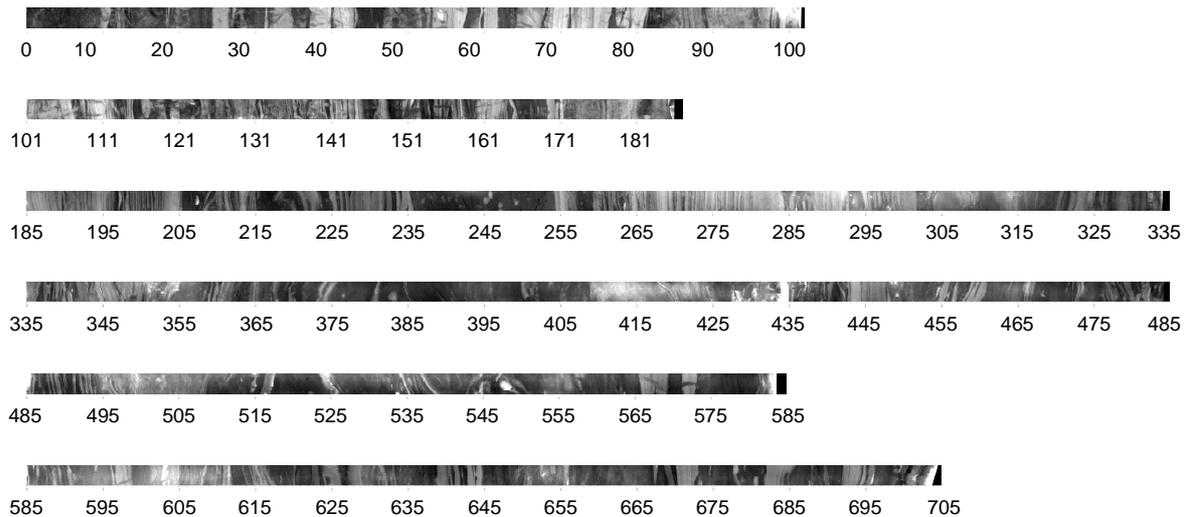


Figure 103 : Images SCOPIX® après analyses de la carotte VKVN01 : les profondeurs sont exprimées en cm.

Certaines parties de la carotte présentent une lamination très resserrée (Figure 104), qui correspond à l'enregistrement de dépôts de marée avec leurs fluctuations de fréquence et d'intensité. Cet enregistrement peut toutefois être perturbé par l'agitation du plan d'eau par les vagues (Deloffre et al., 2006).

La carotte VKVN01 peut donc être interprétée comme une succession de dépôts représentant : (1) à la base, les dépôts globalement sableux du chenal principal de la Seine, (2) le comblement de celui-ci (sables vaseux), suivi de (3) l'installation et l'exhaussement de la Vasière Nord par des sédiments de plus en plus fins.

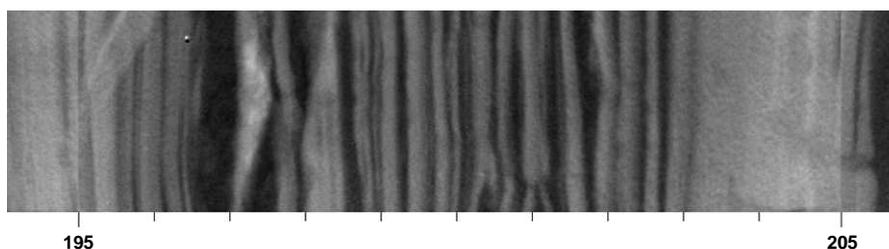


Figure 104 : Extrait de l'image SCOPIX® de la carotte VKVN01 entre 195 et 205 cm de profondeur ; les niveaux les plus clairs sont les plus argileux, les niveaux les plus foncés les plus sableux.

4.3. Echantillonnage

La carotte VKVN01 n'a pas été échantillonnée dans son intégralité. Un premier échantillonnage a eu lieu en 2002 : 22 niveaux ont été sélectionnés pour être prélevés parmi ceux caractérisés par des sédiments fins. L'épaisseur du prélèvement varie de 3 à 6 cm. En 2010, 11 niveaux supplémentaires ont été prélevés sur une épaisseur de 4 à 5 cm. A noter que l'échantillonnage est particulièrement resserré sur la partie supérieure de la carotte avec 12 échantillons sur les 100 premiers centimètres, puis 7 de 100 à 200 cm de profondeur, 5 de 200 à 300 cm de profondeur, et enfin 9 de 300 à 708 cm de profondeur.

Ce choix a été fait d'après l'étude de 6 cartes bathymétriques datées de 1960 à 2002 : le taux de sédimentation s'avère beaucoup plus fort pendant la période ancienne, alors qu'il a ralenti au cours de la période la plus récente (Paragraphe 8). Afin d'obtenir des séries temporelles de bonne résolution pour les années les plus récentes, un plus grand nombre d'échantillons a donc été prélevé en surface. Comme nous ne disposions pas d'un nombre suffisant de niveaux comportant du matériel fin, des niveaux plus sableux ont également été prélevés. Une petite partie des échantillons bruts a été préservée pour les analyses granulométriques ; le reste des échantillons a été séché, broyé, puis analysé. Six autres échantillons ont été prélevés pour l'identification et la quantification du cortège minéralogique argileux.

5. Caractéristiques des sédiments déposés sur la Vasière Nord

5.1. Evolution de la distribution des paramètres granulométriques dans les sédiments de la Vasière Nord

Les échantillons choisis pour les analyses granulométriques sont les mêmes que ceux destinés aux analyses géochimiques. Par conséquent, ils ne visent pas à représenter une granulométrie représentative de l'ensemble de la carotte. Bien que présentées sous forme de profils verticaux, ces données granulométriques ne permettent pas de détecter d'éventuelles évolutions des forçages sédimentaires dans le temps. Cependant, afin d'interpréter les analyses géochimiques, la granulométrie des échantillons est importante. La médiane granulométrique des échantillons analysés varie de 8 à

135 μm (respectivement +6,8 à +2,8 unités phi) ; la valeur maximale correspond à l'échantillon de surface, non représenté sur le premier graphique (Figure 105).

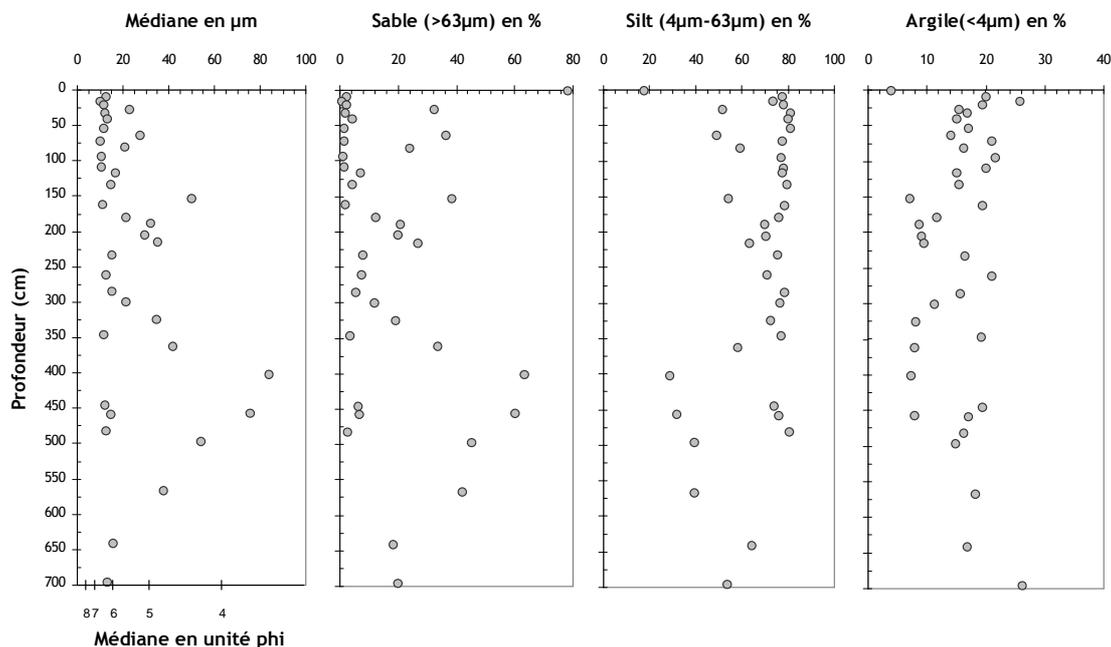


Figure 105 : Granulométrie des échantillons issus de la carotte VKVN01 : médiane et proportions en sable, silt et argile ; la médiane de l'échantillon le moins profond dépasse 100 μm (non visible sur le graphique).

Les valeurs très variables de la médiane, seraient probablement encore plus élevées sur certains niveaux sableux non prélevés de la carotte VKVN01. Les teneurs en sables varient de 1 à 78 %, celles en silt de 18 à 81 %, et celles en argile de 4 à 26 %. Au vu de la variabilité de nature du matériel sédimentaire d'un échantillon à un autre, les analyses géochimiques effectuées sur les échantillons très sableux seront probablement plus difficiles à interpréter. Nous discuterons dans la suite de ce travail du mode de normalisation à appliquer aux données, afin de les interpréter au mieux.

5.2. Identification et quantification des minéraux argileux

Les minéraux argileux de 6 échantillons de la carotte VKVN01 ont été identifiés et quantifiés. La proportion en kaolinite varie de 30 à 50 %, l'illite de 20 à 35 % ; la chlorite absente sur l'échantillon superficiel varie de 5 à 35 % sur le reste de la carotte ; la smectite est présente sur un seul échantillon ; enfin, les interstratifiés smectite-chlorite ont une proportion variant de 10 à 30 %.

La composition du cortège argileux ne montre pas d'évolution majeure au cours du temps (Figure 106). La proportion de chlorite est plus importante que sur les sites de la Darse des Docks, ou encore à Bouafles où elle est absente. Selon Lesourd (2000), les argiles du pôle continental sont composées essentiellement de smectite et de kaolinite, alors que les argiles du pôle marin comportent essentiellement de l'illite et de la chlorite. Dans les travaux de Dubrulle-Brunaud (2007) sur de nombreux sédiments de surface prélevés en 2004 et 2005 dans l'estuaire de la Seine, aucun changement significatif n'est constaté dans les résultats de semi-quantification du cortège argileux

entre l'amont et l'aval de l'estuaire ; de plus, la chlorite est rarement détectée dans l'embouchure, y compris sur les sites de Deauville et de Trouville (Baie de Seine). Sur la Vasière Nord, la chlorite est faiblement présente dans tous les échantillons analysés, sauf l'échantillon le plus superficiel (70 cm de profondeur).

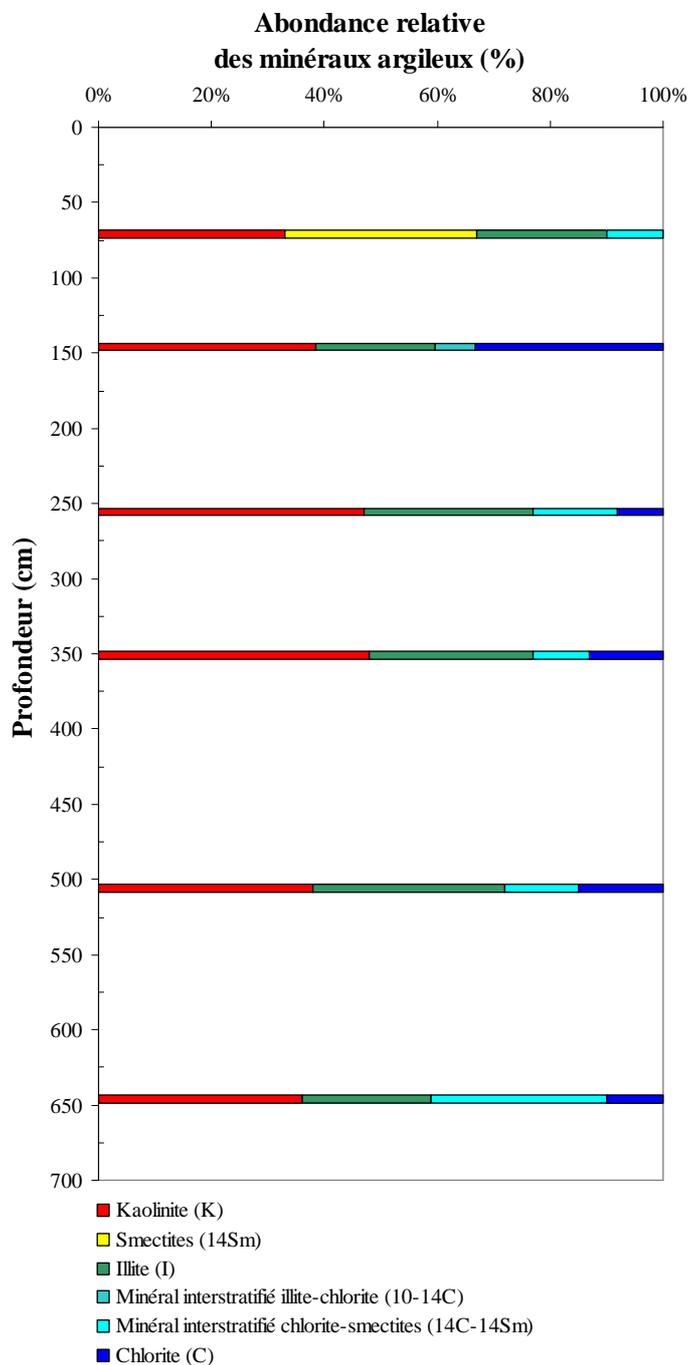


Figure 106 : Evolution de la composition du cortège argileux en fonction de la profondeur dans la carotte VKVN01.

6. Analyses des éléments stables : gammes de concentrations

Les analyses des éléments stables ont été effectuées sur 26 échantillons de la carotte VKVN01. Les éléments analysés sont identiques à ceux analysés sur les sédiments des carottes de la Darse des Docks et de Bouaffles, et les analyses ont été effectuées selon la même méthodologie et dans le même laboratoire (SARM-CRPG, Nancy).

La Figure 107 représente la gamme des concentrations mesurées pour chaque élément. Dans les sédiments de la Vasière Nord, la Si présente des concentrations similaires (19 à 31 %) à celles des shales et supérieures à celles des sédiments des deux sites amont, qui sont déficitaires par rapport aux shales. Dubrulle-Brunaud (2007) a mesuré une concentration de 21,6 % de Si en moyenne dans la fraction fine des sédiments de surface prélevés à Honfleur (PK 358) en 2004-2005, soit des teneurs inférieures à celles mesurées dans les sédiments de la Vasière Nord, ces derniers étant plus sableux. Le Na présente également des teneurs plus élevées que celles des deux sites amont et similaires aux shales. Toutefois, l'embouchure de la Seine étant salée, une faible proportion du Na dissous peut migrer vers les sédiments et s'associer aux minéraux argileux par échange de cations (Berner & Berner, 1996 in Jambon and Thomas, (2009))

Les teneurs en Ca révèlent, comme sur les deux sites amont, un excès par rapport à la référence shales. Le Ca présente une gamme de valeurs étroite : ses teneurs varient peu dans le temps ; elles sont similaires à celles des sites amont, ainsi qu'à celles mesurées dans la fraction fine des sédiments de Honfleur par Dubrulle-Brunaud (2007) en 2004-2005, dont la moyenne est de 12,3 %. Le P présente des concentrations plus faibles que celles des sites de la Darse des Docks et de Bouaffles, et similaires à celles mesurées dans les shales. Mis à part le Si et le Na, les autres éléments (Mn, Ti, Mg, K, Fe, Al) sont en léger déficit par rapport à la référence shales, tout comme ce qui a été observé sur les sédiments des sites amont.

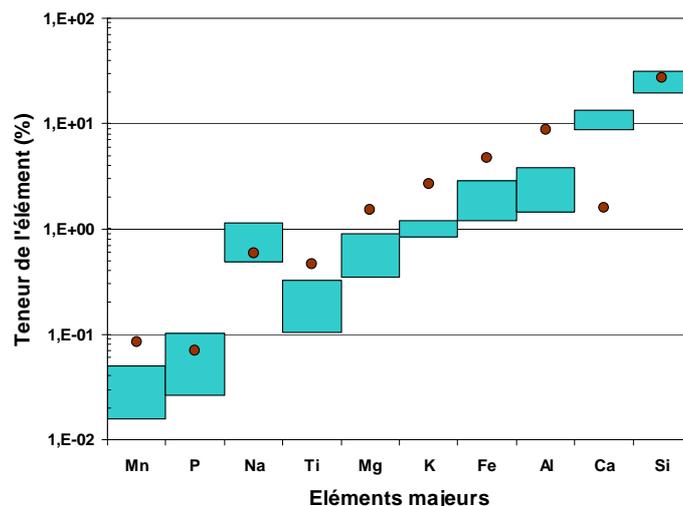


Figure 107 : Gammes des concentrations mesurées en % de sédiment sec de chaque élément majeur dans les sédiments de la Vasière Nord en bleu ; valeur de la référence shales en marron (Li, 2000).

Les éléments-traces présentés sur la Figure 108 sont classés dans le même ordre que les éléments des figures correspondantes des sites de la Darse des Docks et de Bouaffles. Certains sont toujours en déficit par rapport aux shales : Mo, Be, Th, Ga, Co, Ni, V, Rb, Ba. D'autres présentent des excès systématiques : Cd, Ag, Sn, Pb, Sr ; ou à certains niveaux : Bi, Sb, Hf, As, Zr, Zn. D'autres éléments enfin présentent des concentrations similaires à celles des shales : Ge, W, U, Cs, Nb, Ln, Y, Cu, Cr.

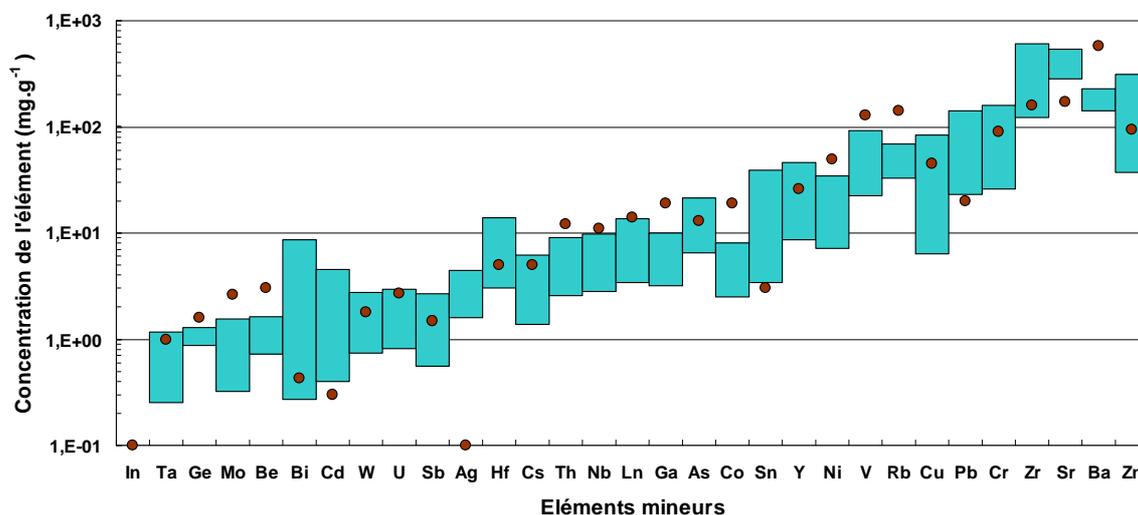


Figure 108 : Gammes des concentrations mesurées en $\mu\text{g.g}^{-1}$ de sédiment sec de chaque élément-trace dans les sédiments de la Vasière Nord en bleu (Ln représente l'ensemble des lanthanides) ; valeur de la référence shales en marron (Li, 2000).

Les excès, par rapport à la référence shales, présentés par certains éléments sont généralement moins importants que les excès évalués dans les sédiments du site de la Darse des Docks. La gamme de valeurs présentée par ces éléments est également réduite par rapport à ce même site. En revanche, la gamme de concentrations des éléments non contaminants (valeur similaire à celle des shales) est plus importante que sur les sites amont ; la composition naturelle des sédiments est donc plus variable sur la Vasière Nord, que dans le haut estuaire.

Les résultats présentés ici ne sont pas normalisés, il est donc nécessaire de rester vigilant sur l'interprétation de ces premiers résultats au regard des analyses granulométriques qui ont été effectuées. Les sédiments sableux contiennent naturellement moins d'éléments-traces, et moins de contaminants. Nous discuterons de la normalisation à adopter dans le paragraphe 11.1.

7. Analyses des radionucléides

La Figure 109 présente les activités minimales et maximales de chaque radionucléide mesuré dans les sédiments de la carotte VKVN01.

Le ^{60}Co , non détecté sur les sites amont, présente ici en surface des activités atteignant 2 Bq.kg^{-1} ; il est issu des rejets de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague (Boust et al., 2002). Sa présence dans les sédiments de la Vasière Nord témoigne de la contribution des apports marins dans son alimentation. Dans la fraction fine des sédiments de surface prélevés à Honfleur en

2004-2005 (Dubrulle-Brunaud, 2007), les activités en ^{60}Co variaient de 1 à 2,5 Bq.kg^{-1} , soit des valeurs similaires à celles observées dans les sédiments de surface de la Vasière. Dans la carotte de la Vasière Nord, le ^{60}Co n'est détecté qu'en surface (0 à 25 cm de profondeur) sur 2 échantillons, du fait de sa courte période. De ce fait, la série temporelle des activités du ^{60}Co ne sera pas représentée par la suite.

Le ^{137}Cs présente des activités maximales (22 Bq.kg^{-1}) plus faibles dans les sédiments de la Vasière Nord que celles des sites amont, mais les activités sont en moyenne plus élevées. Les pics de concentration correspondant aux retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl, ne sont pas observables comme sur les deux sites amont (Paragraphe 10.1.1). Le ^{137}Cs présent sur la vasière peut provenir, outre du bassin versant, de particules marquées par l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague.

L'absence d'enregistrement des retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl peut avoir pour causes : (1) un déficit ou une absence de sédimentation en 1986 ; (2) l'érosion des sédiments déposés en 1986 ; (3) une dilution des MES marquées par ces retombées dans un stock sédimentaire très important arrivant dans l'embouchure, les activités de ^{137}Cs s'en trouvant atténuées ; (4) un pas d'échantillonnage plus large. A noter que les activités en ^{137}Cs mesurées par Dubrulle-Brunaud (2007) dans la fraction fine des sédiments de Honfleur en 2004-2005 sont comprises entre 4 et 11 Bq.kg^{-1} , soit des valeurs similaires aux sédiments de la Vasière Nord.

Le ^{40}K présente des activités variant de 265 à 365 Bq.kg^{-1} . L'activité du ^{40}K est fonction de la granulométrie des sédiments. Ici, les activités enregistrées semblent peu variables malgré l'importance des écarts de la granulométrie des différents échantillons.

Les radionucléides de la famille du ^{232}Th présentent des activités similaires de 25 Bq.kg^{-1} en moyenne, sauf le thallium 208 qui, comme sur les sites amont, présente une activité 3 fois moins importante, soit en moyenne de 8 Bq.kg^{-1} , due à son rapport d'embranchement (0,36). Les activités en ^{228}Ac et ^{212}Pb mesurées dans la fraction fine des sédiments prélevés à Honfleur en 2005, respectivement 33 et 35 Bq.kg^{-1} (Boust et al., 2007), sont supérieures à celles mesurées dans les sédiments de la Vasière Nord. La granulométrie des échantillons en est probablement la cause.

Les radionucléides de la famille de l' ^{235}U n'ont été détectés à aucun niveau de la carotte VKVN01.

Les radionucléides de la famille du ^{238}U présentent des activités de l'ordre de 22 Bq.kg^{-1} , sauf le ^{226}Ra et ^{210}Pb dont les activités sont un peu plus élevées (de l'ordre de 45 Bq.kg^{-1}) ; le $^{234\text{m}}\text{Pa}$ n'est pas détecté. Ces activités sont similaires à celles du site de Bouafles et à celles rapportées par Boust et al. (2007) dans des sédiments fins prélevés à Honfleur en 2005 (Figure 109). Le ^{210}Pb présente dans ces mêmes sédiments une activité de 48 Bq.kg^{-1} (Boust et al., 2007), similaire à celles mesurées dans les sédiments de la Vasière Nord.

Les radionucléides émetteurs alpha sont détectés dans l'ensemble de la carotte. L'activité du $^{239,240}\text{Pu}$ varie de 200 à 3000 mBq.kg^{-1} , et celle du ^{238}Pu varie de 8 à 760 mBq.kg^{-1} . Le Pu présente des valeurs maximales inférieures à celles mesurées sur les deux autres sites, tout comme le ^{137}Cs . Les

activités en $^{239,240}\text{Pu}$ et en ^{238}Pu mesurées dans la fraction fine des sédiments prélevés à Honfleur en 2005 étaient de 214 mBq.kg^{-1} et 18 mBq.kg^{-1} respectivement, donc dans le bas de la gamme de concentrations que présentent les sédiments de la Vasière Nord. La fraction fine des sédiments prélevés à Tancarville (PK 338) en 2005 présente quant à elle des activités en $^{239,240}\text{Pu}$ et en ^{238}Pu de 1090 mBq.kg^{-1} et 350 mBq.kg^{-1} respectivement, donc plus en accord avec la moyenne des mesures effectuées sur les sédiments de la Vasière Nord.

L' ^{241}Am est mesuré par spectrométrie gamma et alpha. Les deux séries de mesures sont en concordance, mais les mesures effectuées par spectrométrie alpha sont plus précises. Les activités de l' ^{241}Am varient de 60 mBq.kg^{-1} à 3000 mBq.kg^{-1} . La fraction fine des sédiments prélevés à Honfleur en 2004-2005, présentaient des activités du même ordre de grandeur : 1 à 2 Bq.kg^{-1} (Dubrulle-Brunaud, 2007). Les activités de l' ^{241}Am sont ici supérieures à celles des sites de la Darse des Docks et de Bouafles.

Enfin, le ^{244}Cm présente des activités variant de 2 à 110 mBq.kg^{-1} , soit très supérieures pour certains échantillons, aux mesures effectuées sur les sédiments de la Darse des Docks qui présentent des activités maximales de 8 mBq.kg^{-1} .

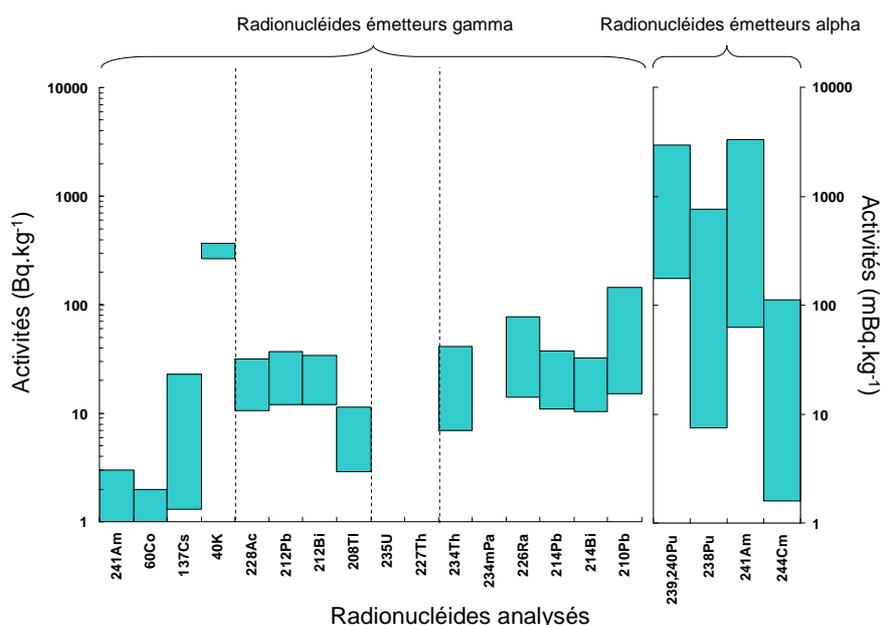


Figure 109 : Gamme des activités mesurées de chaque radionucléide dans les sédiments de la Vasière Nord ; à gauche, les radionucléides émetteurs γ ; à droite, les radionucléides émetteurs α .

Les résultats d'analyses géochimiques effectués sur les sédiments de la carotte VKVN01 sont pour certains difficiles à comparer aux études antérieures effectuées à proximité, d'une part à cause de leur granulométrie variable, d'autre part à cause du fonctionnement hydrosédimentaire complexe de l'embouchure de la Seine où ont lieu des apports de sédiments différents sur des sites voisins.

Nous allons maintenant chercher à dater les sédiments de la carotte VKVN01 afin d'obtenir des séries temporelles de concentrations.

8. Datation de la carotte étudiée

Les repères de datation par les radionucléides, utilisés sur les deux autres sites, n'étant pas clairement visibles sur la Vasière Nord, les dépôts de la carotte sont donc beaucoup plus difficiles à dater. Des relevés bathymétriques effectués par le GPMR (Grand Port Maritime de Rouen) et le GPMH (Grand Port Maritime du Havre) en 1960, 1965, 1970, 1975, 1980 et 2002, permettent d'obtenir des repères de datation sur la carotte en la positionnant sur des profils topographiques transverses (Figure 110).

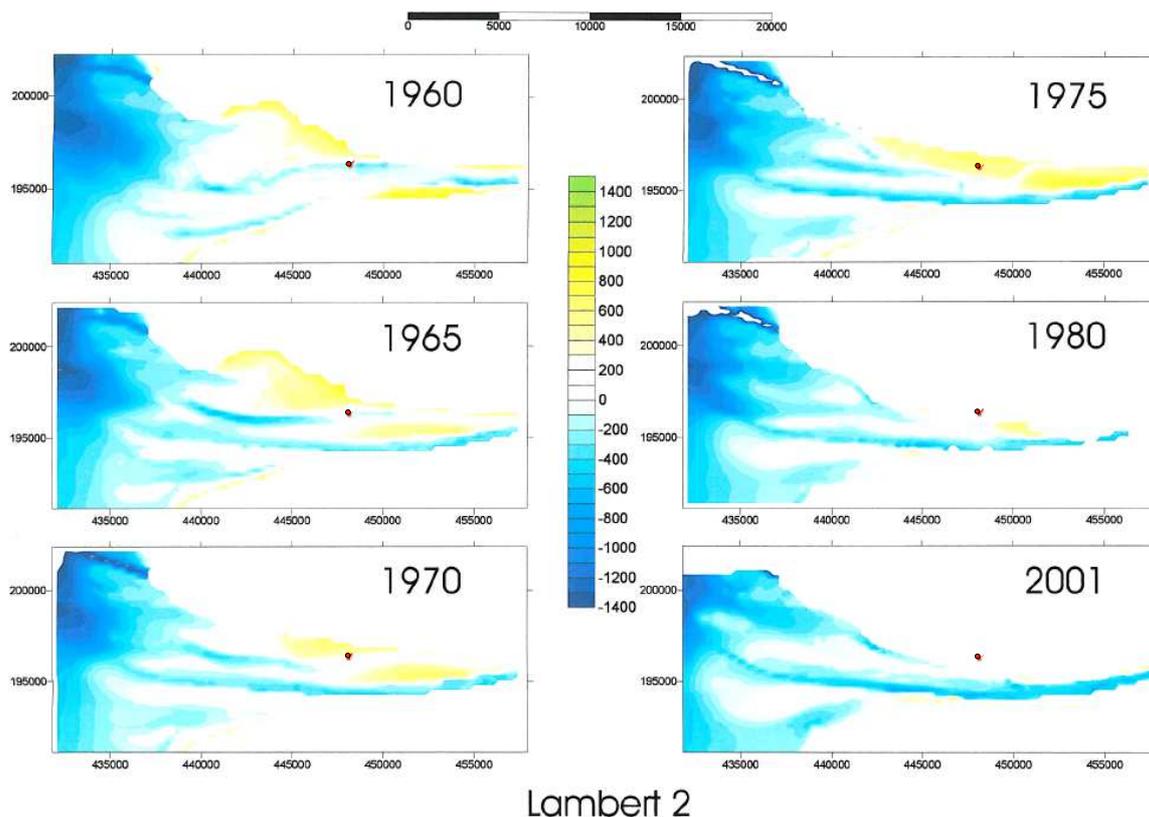


Figure 110 : Cartes bathymétriques de la Vasière Nord datées de 1960 à 2001 ; le point de carottage est indiqué en rouge (données brutes : GPMR et GPMH ; références données par rapport au zéro des cartes marines du Havre ; cartes établies par N. Delsinne).

La Figure 110 présente l'évolution de la topographie de la Vasière Nord de 1960 à 2001 ; les altitudes positives sont représentées par des tons jaunes, les altitudes négatives (bathymétries) par des couleurs bleues. On observe un comblement progressif du site de 1960 à 1975 (Figure 110) : le point de carottage (en rouge sur la figure) passe d'une altitude de -2,3 m CMH (Carte Marine du Havre) à +5,4 m CMH. Les cartes bathymétriques à partir de 1980 ne présentent pas de mesures au niveau du point de carottage, déjà exondé. Le dernier repère chronologique après 1975 est donc la date de prélèvement (2002). La topographie du site a été relevée lors du prélèvement et le point de carottage était à +6,7 m CMH. La datation a donc essentiellement été déterminée à partir de la bathymétrie, avec les erreurs que celle-ci peut apporter. La Figure 111 replace la carotte VKVN01 sur des profils topographiques datés ; nous reportons ainsi des repères de datation.

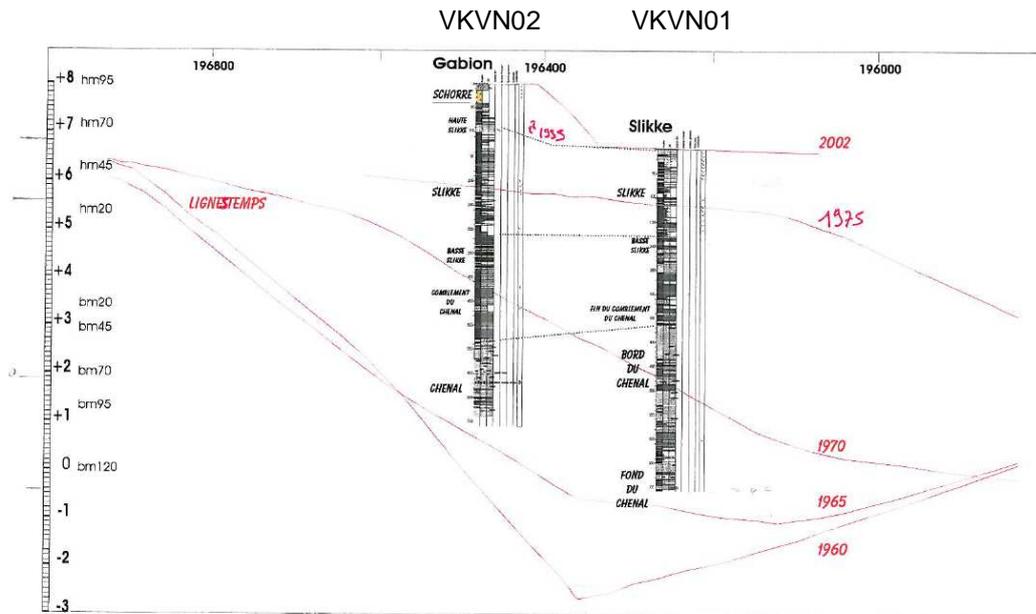


Figure 111 : Profil d'évolution de la topographie de la Vasière Nord au point de carottage ; deux carottes sont représentées : la carotte VKVN01 est à droite (Com. Pers. N. Delsinne).

Faute d'autres données, les données altimétriques ont été admises comme des repères chronologiques et ont permis le calcul de taux de sédimentation moyens (Figure 112). La sédimentation est très active avant 1975 et diminue beaucoup par la suite. Plus le site se comble et s'exhausse, et plus les possibilités de recouvrement par la marée sont faibles, limitées aux plus fortes marées. Les apports sédimentaires diminuent, correspondant surtout à des particules fines (vases). Dans l'embouchure de la Seine et en Baie de Seine, les carottes sédimentaires sont régulièrement datées de cette façon (Boust et al., 2007 ; Delsinne, 2002) et les résultats semblent cohérents.

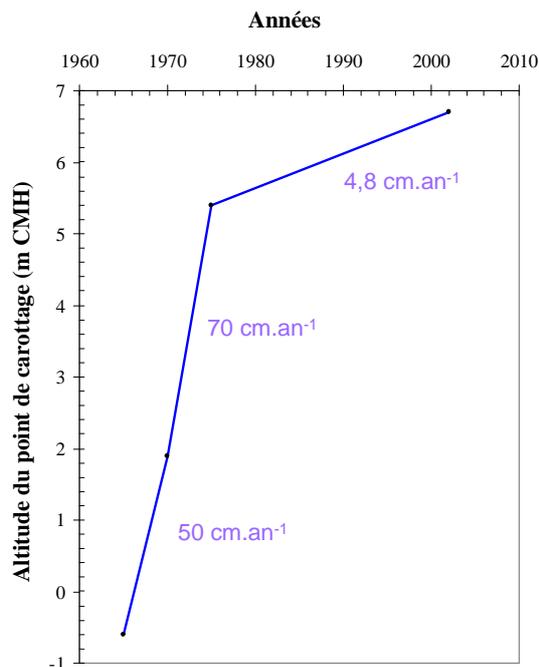


Figure 112 : Comblement de la vasière au point de carottage au cours du temps ; les taux de sédimentation moyens sont indiqués pour chaque période entre les repères de datation.

La Figure 112 indique l'évolution des taux de sédimentation au cours du temps. Entre 1965 et 1975, le taux de sédimentation est très fort : l'ancien chenal en marge duquel a été prélevée la carotte se comble. La sédimentation se poursuit plus lentement sur la vase qui s'étend de plus en plus vers le sud, sa partie nord tendant à se continentaliser.

Nous allons maintenant présenter les séries temporelles de concentrations des éléments stables et des radionucléides mesurés dans les sédiments de la carotte VKVN01.

9. Séries temporelles des éléments stables analysés dans les sédiments de la carotte

VKVN01

La carotte VKVN01 étant maintenant datée, les résultats des analyses géochimiques peuvent être présentés sous forme de séries temporelles. Dans ce paragraphe, les séries temporelles des éléments majeurs vont être présentées sous forme de concentrations, tandis que celles des éléments-traces le seront sous forme de FE.

9.1. Evolutions temporelles des concentrations en éléments majeurs

Les séries temporelles de concentrations des éléments majeurs sont présentées sous forme de valeurs brutes mesurées dans les sédiments (Figure 113). Comme attendu, les concentrations en Si et Al sont anticorrélées. Les concentrations en Si sont très variables d'un échantillon à l'autre ; on ne distingue pas de tendance générale dans l'évolution des concentrations : la Vasière Nord présente manifestement un matériel de composition hétérogène, comme déjà identifié par radiographie X. La série temporelle de l'Al présente des concentrations variant de 1,5 à 3,8 % ; ces concentrations sont globalement plus faibles que sur les deux autres sites, ce qui est normal au vu de la nature plus sableuse des échantillons. Suite à l'analyse de ces deux séries temporelles, on peut distinguer des niveaux plus grossiers aux périodes de 1970, 1983, 1987 et 2002. Globalement, les sédiments de la Vasière Nord sont plus riches en Si que les sédiments de la Darse des Docks ou de Bouafles. Pour les éléments-traces, la normalisation à l'Al s'avère encore plus indispensable que sur les deux sites amont, afin d'interpréter les teneurs des différents éléments mesurés dans ces carottes. Pour valider cette normalisation à l'Al, une corrélation entre plusieurs éléments et l'Al a été étudiée, en particulier ceux dont les FE sont élevés tels le Bi, le Cd... Dans la majorité des cas, la droite de corrélation entre les deux éléments ne passe pas par l'origine. Une certaine fraction d'Al (Δ_{Al}) est liée à des phases minéralogiques qui ne sont pas porteuses des éléments en question (ex : feldspaths). Dans ces conditions, le calcul E/Al est biaisé aux faibles concentrations en Al. Il est possible de s'affranchir de ce biais en déduisant la valeur (Δ_{Al}) de la teneur en Al avant de calculer la valeur normalisée qui devient : $E/(Al-\Delta_{Al})$. Après quelques essais, cette nouvelle normalisation n'a pas été jugée concluante (sur-correction pour les sédiments sableux) et a été abandonnée.

Les concentrations de plusieurs éléments majeurs sont dépendantes de la granulométrie des sédiments : leurs séries temporelles présentent alors un profil similaire à celui de l'Al (Figure 113). Les éléments concernés sont : Fe, Mn, Mg, Na, K et Ti ; ils ont tous des teneurs similaires à celles des shales, sauf Na qui est enrichi du fait de la présence d'eau salée dans cette partie de l'estuaire. Cundy et al. (2005) ont mesuré des teneurs semblables en Fe, Mn et Ca dans une carotte prélevée sur un site voisin de notre point de carottage sur la Vasière Nord.

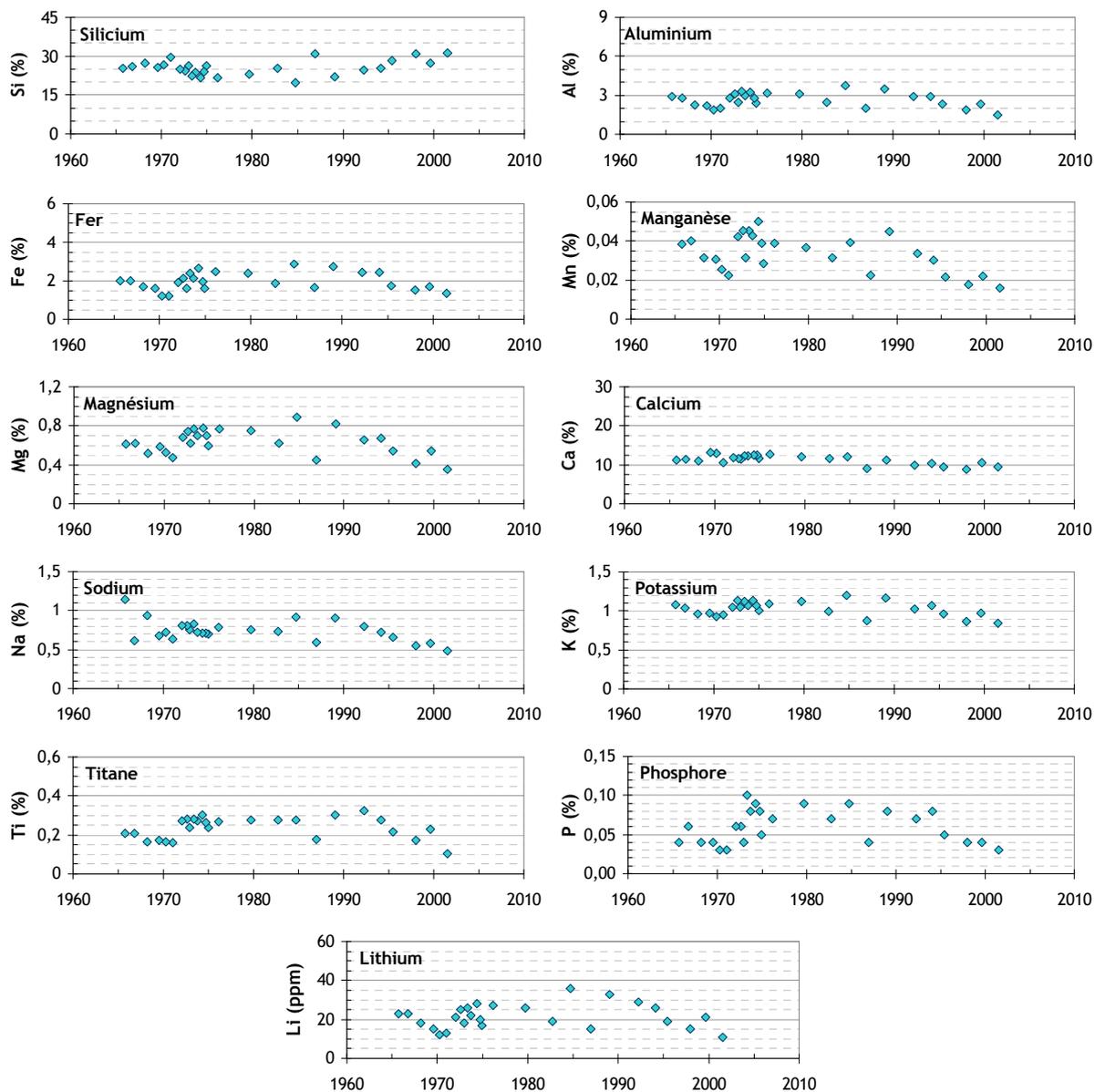


Figure 113 : Série temporelle des concentrations en éléments majeurs (%) et en lithium (ppm) des sédiments de la Vasière Nord.

Le Ca présente des concentrations comprises entre 8,5 et 13,5 % : elles sont logiquement anticorrélées à celles de l'Al. Le P présente des concentrations très hétérogènes variant de 0,03 à 0,10 %. Les concentrations les plus fortes sont observées entre 1975 et 1995. Malgré un enrichissement anthropique observé sur les sites amont, ce site semble présenter des valeurs naturelles

en P. Les concentrations de cet élément sont fonction de la granulométrie des sédiments : une baisse significative des concentrations en P est observée pour les échantillons aux faibles teneurs en Al.

Enfin, le Li est présenté avec les éléments majeurs puisqu'il présente généralement une allure similaire à celle de l'Al, il est régulièrement utilisé pour normaliser les concentrations en métaux dans les sédiments (Aloupi and Angelidis, 2001). Sur la carotte VKVN01, son profil est tout à fait similaire à celui de l'Al, donc lié à la granulométrie des sédiments.

Les concentrations en éléments majeurs sont pour la plupart d'entre eux fonction de la granulométrie des sédiments. Cette granulométrie dépend elle-même de l'intensité des paramètres hydrologiques. Les enrichissements des éléments par rapport aux shales sont majoritairement d'origine naturelle (Ca, Na, Si). La contamination en P présente en amont de l'estuaire semble en grande partie dissipée dans les sédiments de la Vasière Nord.

9.2. Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des éléments-traces

Rappelons comment ont été classés auparavant les éléments-traces :

- Série 1 : éléments dont les teneurs dans les sédiments sont accrues par les rejets de phosphogypses sur le site de la Darse des Docks entre 1965 et 1980.
- Série 2 : éléments dont les teneurs dans les sédiments sont peu variables au cours du temps sur le site de la Darse des Docks.
- Série 3 : éléments dont les teneurs dans les sédiments diminuent constamment du milieu du XX^e siècle à nos jours sur le site de la Darse des Docks.
- Série 4 : terres rares.

La Figure 114 présente les résultats sur le site de la Vasière Nord, des éléments marqués par les rejets de phosphogypses sur la Darse des Docks. La Vasière Nord doit également être marquée par ces rejets, d'une part parce qu'elle est soumise aux apports de contaminants de l'amont, mais surtout, parce qu'elle se trouve à proximité des rejets de phosphogypses apportés par barge depuis les usines de Rouen et clapés dans l'embouchure de Seine (Chapitre VI) ainsi que des rejets par émissaire effectués par l'usine NHA (usine du groupe Norsk Hydro Azote) du Havre. L'histoire des phosphogypses sur ce site n'est donc pas tout à fait la même qu'à proximité de Rouen.

Contrairement à la région de Rouen, Be, Ni, Mo et Ba semblent peu ou pas affectés ici par les rejets de phosphogypses, leurs FE étant proches de 1. L'explication pourrait être à rechercher dans la composition des rejets, différente entre les deux lieux, le minerai pouvant différer d'une usine à l'autre. Th, Cr, Cu, Y et U sont enrichis par rapport aux shales, leurs FE variant de 2 à 5 avec des valeurs maximales entre 1975 et 1995. Ces courbes seront à comparer à celles des rejets de phosphogypses en Baie de Seine (Chapitre VI). Sr, Cd et Bi présentent un enrichissement plus élevé : leurs FE maximaux dépassent tous 10. Rappelons que les teneurs en Cd et Bi sont encore plus élevées sur les deux autres sites : ces deux éléments peuvent donc, soit provenir de l'amont et avoir été

mélangés avec un stock plus ancien (via le bouchon vaseux), soit provenir des rejets effectués en Baie de Seine. Sr, au contraire, présente un FE plus élevé qu'en amont, en particulier vers 1970. On observe également des teneurs de Ca plus élevées dans les sédiments déposés vers cette date (Figure 113), le Sr étant contenu en partie dans la phase carbonatée, cela explique son fort enrichissement.

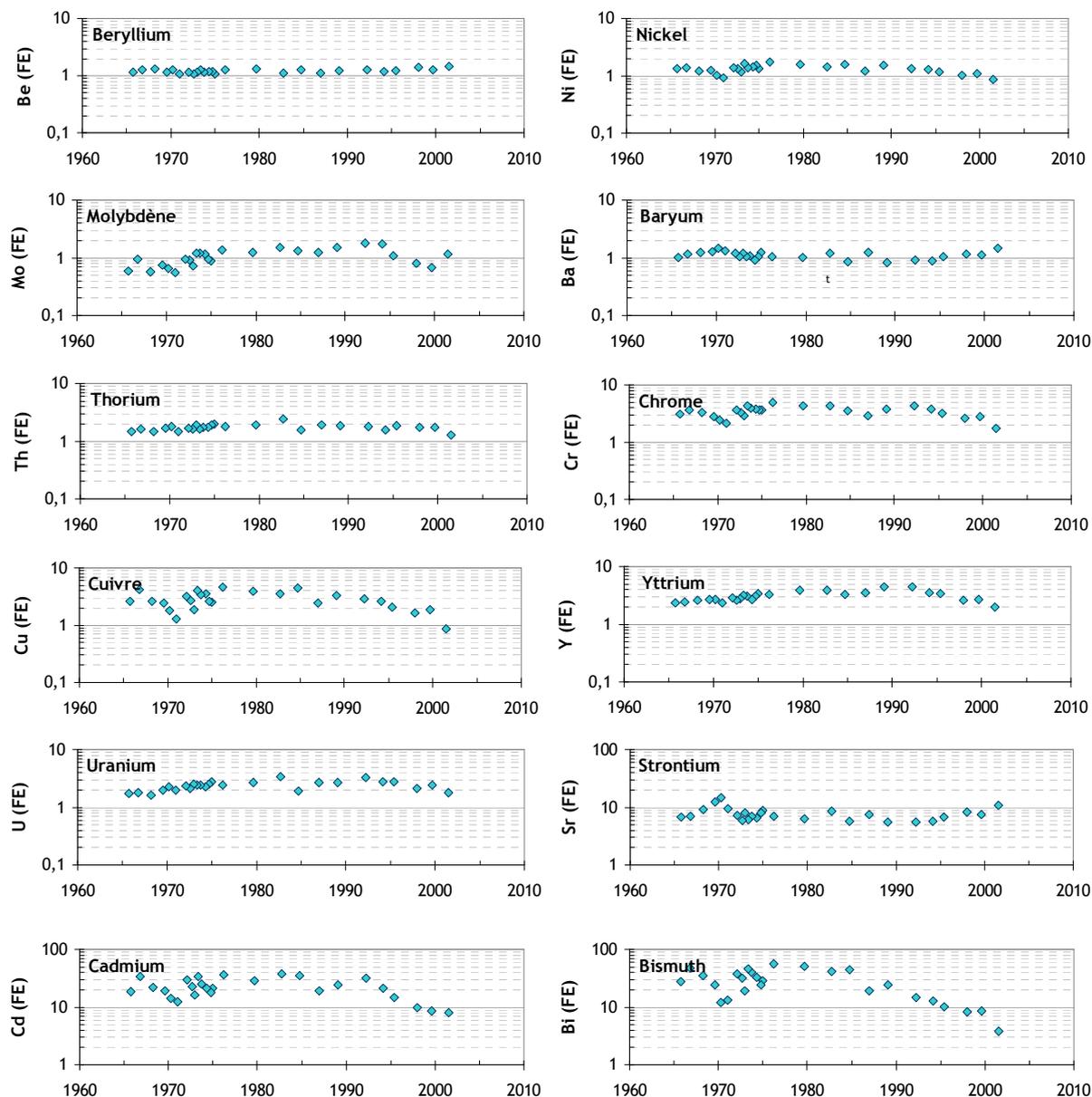


Figure 114 : Evolution des FE des éléments-traces de la série 1 sur le site de la Vasière Nord.

Les éléments de la Figure 115 présentent des séries temporelles relativement stables dans le temps. Certains d'entre eux ne sont pas enrichis par rapport aux shales : V, Co, Ga, Ge, Rb ; d'autres présentent de légers enrichissements ($1 < FE < 4$) constants dans le temps : Nb, Cs, Ta. Enfin, deux éléments présentent des enrichissements plus forts que sur les sites amont : Zr et Hf. Ces deux derniers éléments ont des propriétés chimiques très semblables ; leurs teneurs particulièrement fortes

s'expliquent par l'abondance de minéraux lourds, tels que le zircon ($ZrSiO_4$) (Boust et al., 2007 ; Dubrulle-Brunaud, 2007).

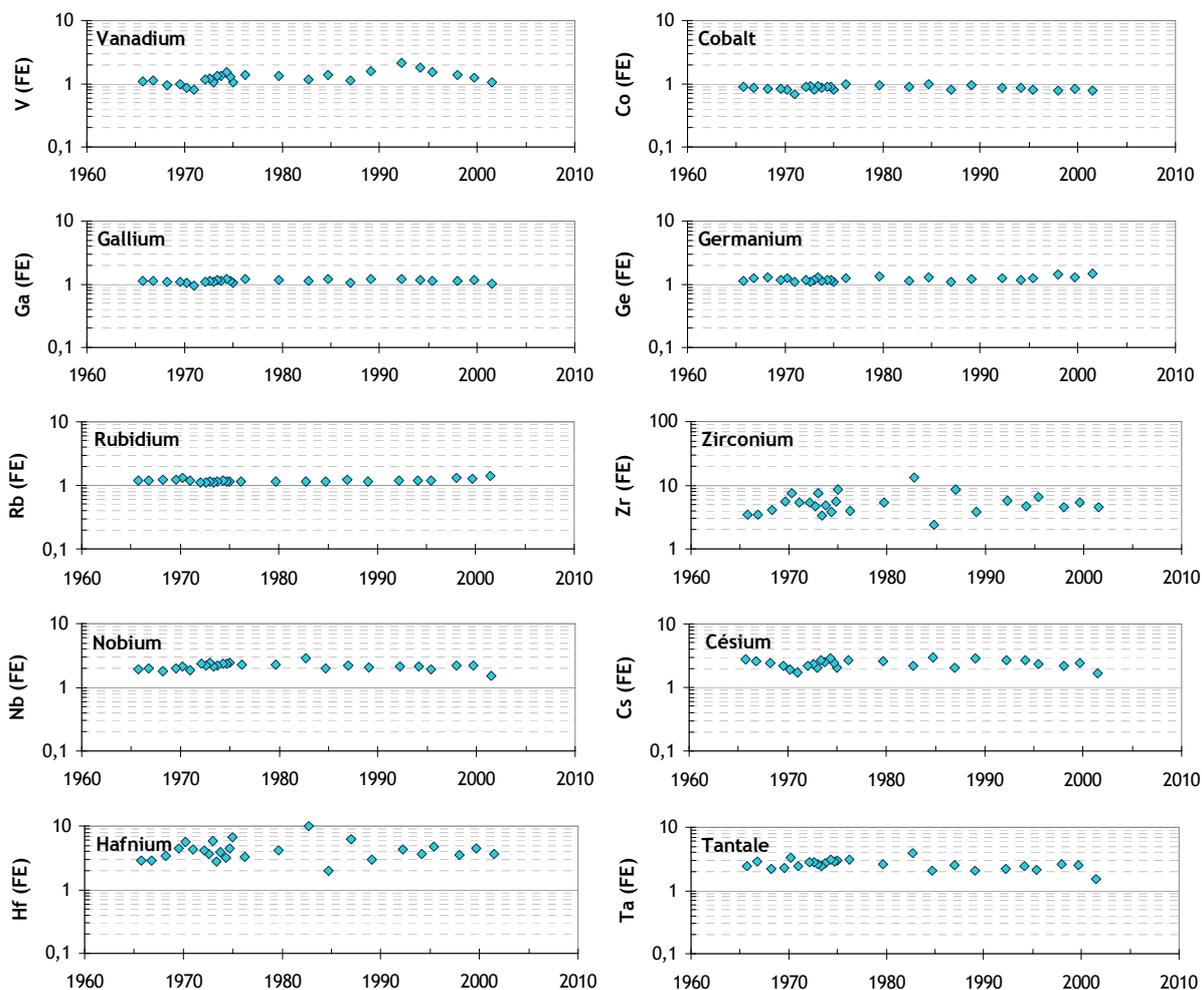


Figure 115 : Evolution des FE des éléments-traces de la série 2 sur le site de la Vasière Nord.

Les éléments de la Figure 116 présentent sur le site de la Darse des Docks et de Bouafles des FE élevés et en constante diminution au cours du temps. Cependant, sur le site de la Vasière Nord, ces éléments ne présentent pas la même tendance : leurs FE sont globalement plus faibles que sur les sites amont, et ne diminuent pas au cours du temps.

Ag présente, comme sur les sites amont, un FE particulièrement élevé par rapport aux shales. Comme nous l'avons vu dans les chapitres précédents, la référence shales n'est pas adaptée pour calculer le FE de cet élément ; elle conduit probablement à une surestimation du FE ; il n'en demeure pas moins qu'Ag est un contaminant notoire du système étudié. Pb, Zn, et Sn présentent des FE proches de 10. Une légère diminution du FE est observable sur le profil du Zn à partir de 1990. Enfin, As, Sb et W présentent des enrichissements plus faibles, en particulier, le W dont le FE reste constant autour de 2.

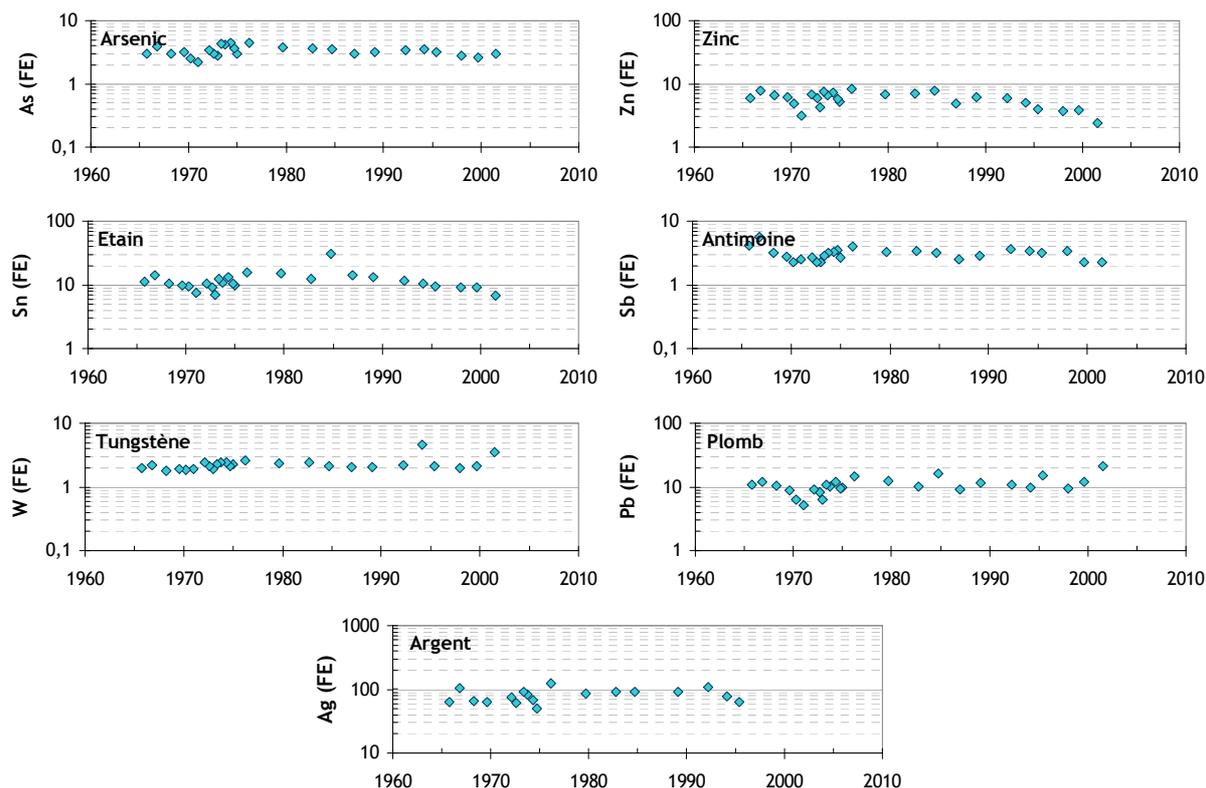


Figure 116 : Evolution des FE des éléments-traces de la série 3 sur le site de la Vasière Nord.

9.3. Evolution temporelle des facteurs d'enrichissement des terres rares

Les terres rares (Figure 117) présentent toutes des séries temporelles similaires, avec un FE variant de 1,4 à 3,5. Les valeurs maximales correspondent aux années 1980 : les FE des terres rares sont également influencés par les rejets de phosphogypses, mais dans une bien moindre mesure qu'à l'amont de l'estuaire. Sur le site de la Vasière Nord, ni le Ce, ni l'Eu ne présentent d'anomalie significative ; le matériel est de type shales.

En résumé, la contamination métallique des sédiments de la Vasière Nord ne présente pas la même évolution au cours du temps que celle des sédiments de la Darse des Docks. Nous observons ici une contamination moins prononcée que sur ce dernier site (les concentrations maximales sont moins fortes), mais de plus longue durée. Les contaminants arrivant sous forme particulaire dans l'embouchure de la Seine sont mélangés avec un stock sédimentaire très important et les pics de contamination sont donc lissés.

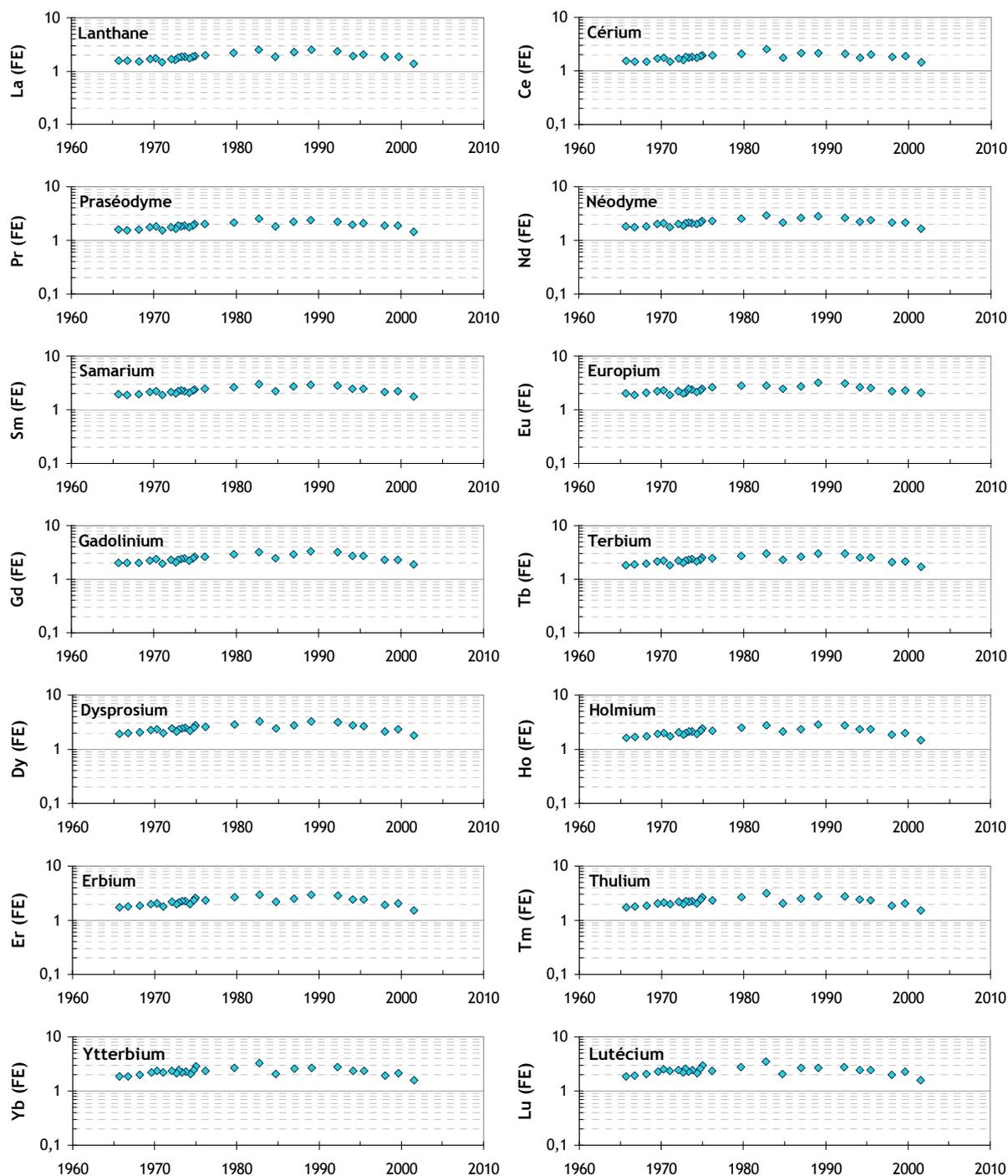


Figure 117 : Evolution des FE des terres rares sur le site de la Vasière Nord.

10. Evolution temporelle des activités des radionucléides

Malgré une granulométrie hétérogène selon les échantillons, les données sur les séries temporelles des radionucléides n'ont pas été normalisées. Plusieurs essais de normalisation ont été testés, mais aucun n'a été concluant ; suite à la normalisation, les activités des échantillons les plus sableux deviennent anormalement supérieures à celles des autres échantillons. Les séries temporelles sont donc représentées avec les données brutes.

10.1. Radionucléides d'origine artificielle

10.1.1. *Le ^{137}Cs*

La Figure 118 représente les activités du ^{137}Cs dans les sédiments de la Vasière Nord de deux manières : (1) telles qu'elles étaient à la date du prélèvement de la carotte, (2) corrigées de la décroissance de celui-ci depuis son dépôt. Contrairement aux profils représentés sur les deux sites amont, aucun pic n'est observable sur ce profil. L'activité du ^{137}Cs augmente à partir de 1970 dans les sédiments pour atteindre des valeurs maximales entre 1980 et 1990, puis l'activité diminue jusqu'en 2000. Quelques échantillons présentent des activités plus faibles en 1970, puis entre 1980 et 1990 par rapport aux activités maximales observées ; il s'agit d'échantillons sableux qui sont représentés en vert sur la figure.

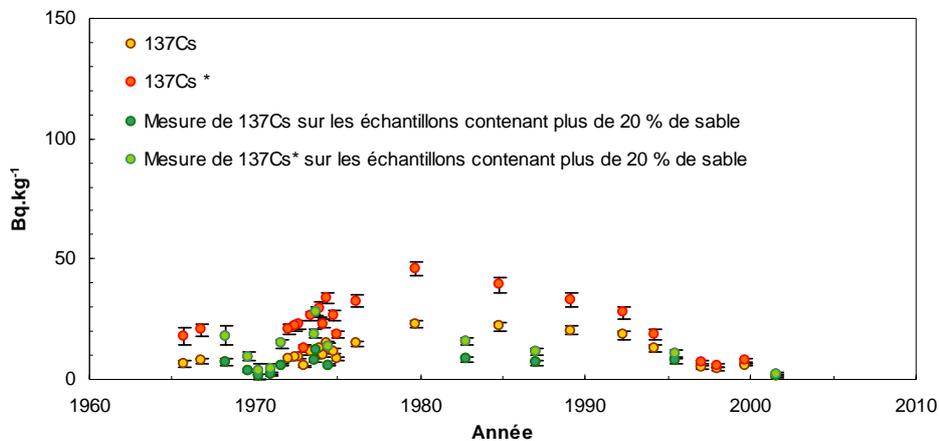


Figure 118 : Evolution temporelle des activités en ^{137}Cs sur le site de la Vasière Nord ; les valeurs en jaune représentent les données brutes rapportées à la date du prélèvement de la carotte ; les valeurs en orange représentent les données corrigées de la décroissance depuis le dépôt.

Une carotte prélevée en 1986 à proximité du port pétrolier du Havre présente des activités en ^{137}Cs légèrement plus élevées que sur la Vasière Nord (D. Boust et P. Lesueur, com.pers), qui s'expliquent par des sédiments plus fins.

Le ^{137}Cs analysé sur la carotte de la Vasière Nord peut provenir de trois sources :

- du lessivage des retombées atmosphériques des essais nucléaires des années 1960 et de l'accident de Tchernobyl sur le bassin versant ;
- des rejets de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague dont les activités sont représentées sur la Figure 119 ;
- dans une moindre mesure, des installations nucléaires du Bassin de Paris.

Les rejets de ^{137}Cs par l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague débutent en 1965. Une dizaine d'années environ est nécessaire pour que les radionucléides associés aux particules sédimentaires transitent de La Hague vers l'embouchure de la Seine (Boust et al., 1997). Le ^{137}Cs présent dans les sédiments de l'estuaire avant 1975 provient donc uniquement des apports amont qui

sont liés aux retombées atmosphériques des essais nucléaires. Les activités plus faibles vers 1970 sont dues à la présence d'échantillons plus sableux sur cette partie de carotte. Après 1970, les activités en ^{137}Cs augmentent en cohérence avec les rejets de l'usine de retraitement de La Hague et le temps de transit des sédiments précédemment évoqué. Ces rejets diminuent nettement à partir de 1985, puis davantage encore à partir de 1995. Dans les sédiments de la vasière Nord, les activités diminuent à partir de 1990. L'évolution des concentrations est lente, témoignant de la taille du réservoir de particules qui est impacté.

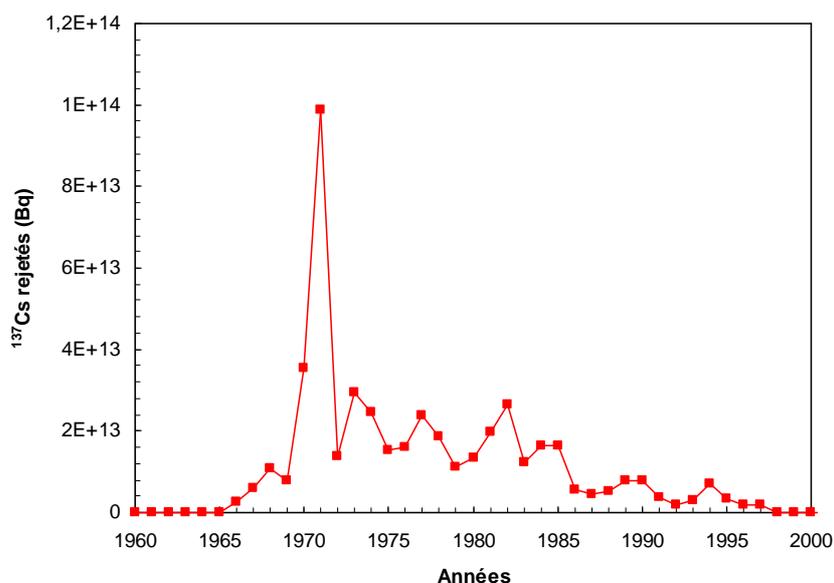


Figure 119 : Evolution temporelle des activités des rejets liquides de ^{137}Cs de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague (Données AREVA).

On remarque que le pic de Tchernobyl n'est pas détecté dans les sédiments de la Vasière Nord. En normalisant au ^{40}K , un pic de ^{137}Cs est décelé vers 1987 ; cependant la valeur brute en ^{137}Cs de cet échantillon est faible ($6,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$). L'échantillon étant très sableux, la normalisation doit engendrer une sur-correction des données. On notera également que la corrélation ^{137}Cs avec ^{40}K n'est pas très bonne ($R^2 = 0,48$). D'autres normalisations ont été testées, mais sans succès. Le flux de MES en provenance du bassin versant de la Seine se dilue dans un stock estuarien très important ; selon Dubrulle-Brunaud (2007), le stock sédimentaire aval (PK 310 à 360) présente des caractéristiques géochimiques très homogènes malgré des apports amont hétérogènes (PK 200 à 250). On peut donc en déduire que les apports sédimentaires ponctuels correspondent à des événements difficilement détectables dans les sédiments de l'estuaire aval.

10.1.2. Le ^{238}Pu et le $^{239,240}\text{Pu}$

Les concentrations en ^{238}Pu dans les sédiments de la Vasière Nord sont inférieures à 50 mBq.kg^{-1} jusqu'en 1975. Elles augmentent ensuite brutalement pour atteindre une activité maximale mesurée à 760 mBq.kg^{-1} en 1989. En 2000, l'activité du ^{238}Pu dans les sédiments de la Vasière Nord se situe autour de 300 mBq.kg^{-1} (Figure 120).

Le $^{239,240}\text{Pu}$ suit une évolution similaire avec des activités beaucoup plus fortes : son activité dans les sédiments de la Vasière Nord est d'environ 500 mBq.kg^{-1} avant 1975 ; elle atteint 3000 mBq.kg^{-1} au début des années 1980, puis diminue autour de 800 mBq.kg^{-1} à la fin des années 1990 (Figure 120).

La carotte du Port Pétrolier du Havre que nous avons évoquée précédemment, présente des activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ similaires à celles enregistrées dans les sédiments de la carotte VKVN01. Ces activités sont maximales à la fin des années 1980 : le ^{238}Pu atteint une activité de 1100 mBq.kg^{-1} et le $^{239,240}\text{Pu}$ de 3200 mBq.kg^{-1} (D. Boust, com.pers). Tous les échantillons de la carotte VKVN01 n'ayant pas été mesurés, il est donc possible que les valeurs maximales aient été manquées.

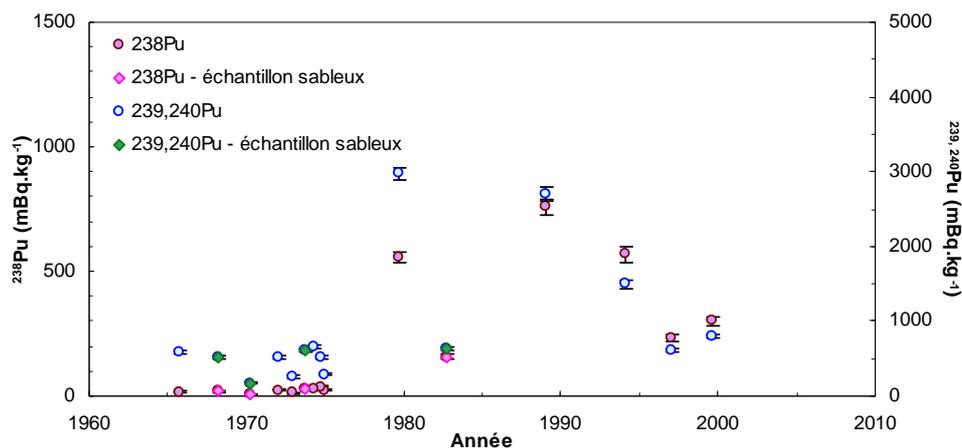


Figure 120 : Evolution temporelle des activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ sur la Vasière Nord.

Le ^{238}Pu et le $^{239,240}\text{Pu}$ présents dans l'estuaire de la Seine peuvent provenir de trois sources :

- les retombées atmosphériques des essais nucléaires entre 1954 et 1980 ;
- les rejets contrôlés d'une installation nucléaire de la région parisienne (Chapitre VI).
- les rejets contrôlés de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague.

On peut remarquer que les profils de Pu de la Vasière Nord ne ressemblent pas à ceux des sites amont. En particulier, le pic de ^{238}Pu de 1975, clairement identifié à l'amont, n'est pas visible ici ; le pic de $^{239,240}\text{Pu}$ dû aux retombées atmosphériques des essais nucléaires de 1963 correspondrait, quant à lui, à la base sableuse de la carotte, mais il est absent.

Les activités du ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ présentent des valeurs plus fortes entre 1980 et 1997 sur la Vasière Nord. L'usine de retraitement de La Hague a rejeté du Pu à partir de 1965, et les rejets se sont intensifiés vers 1970 (Figure 121). Comme énoncé précédemment, il faut un temps de transit de 10 ans environ pour que les particules sédimentaires marquées par les rejets de l'usine de retraitement de La Hague atteignent l'embouchure de la Seine (Boust et al., 1997), ce qui est en cohérence avec l'augmentation des concentrations en Pu observée sur la Vasière Nord.

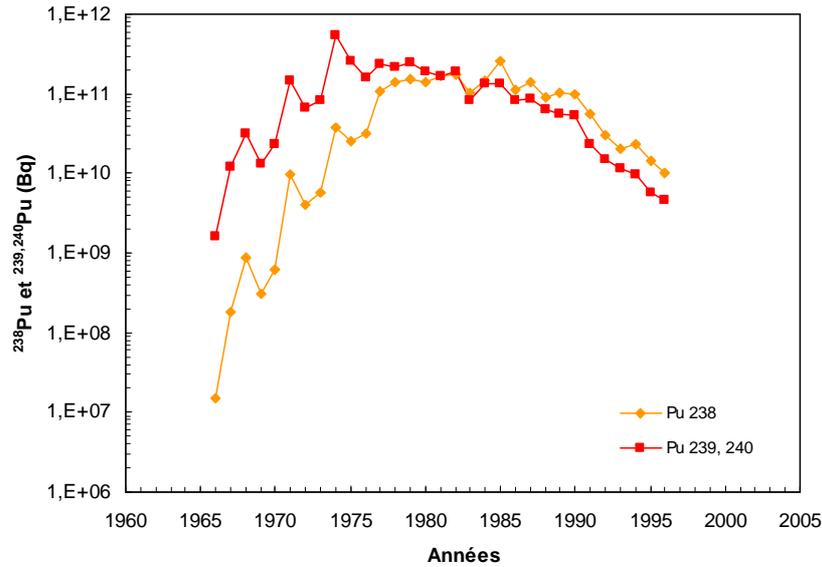


Figure 121 : Evolution temporelle des rejets liquides en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ de l'usine de retraitement de La Hague.

Sur la Figure 122 est représentée l'évolution temporelle des rapports isotopiques $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Vasière Nord. Jusqu'en 1975, ce rapport est similaire à celui des retombées des essais nucléaires, soit 0,04 (représenté par la droite orange sur la Figure 122). Il augmente par la suite pour atteindre 0,4 au début des années 1980. L'augmentation de ce rapport peut avoir deux causes :

- les rejets de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague, hypothèse la plus probable (représenté par la courbe verte sur la Figure 122) ;
- les rejets de ^{238}Pu d'une installation nucléaire de la région parisienne (Chapitre VI).

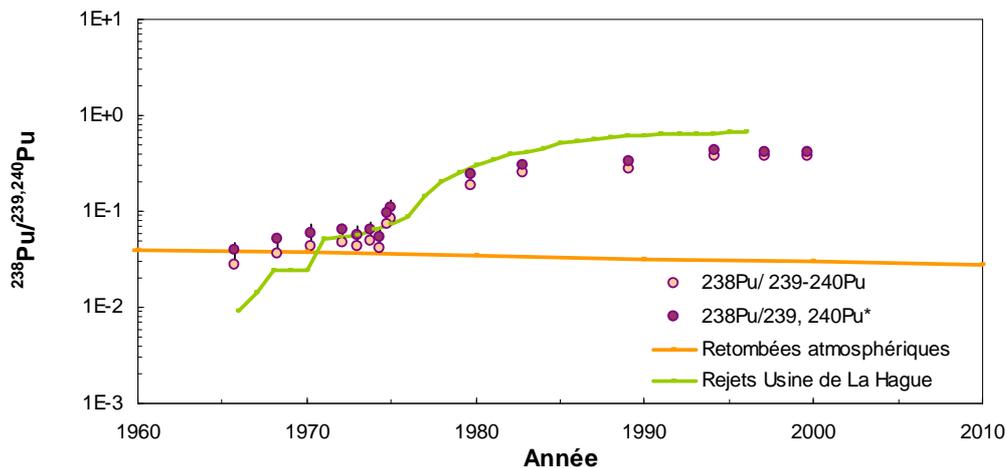


Figure 122 : Evolution du rapport isotopique du $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Vasière Nord ; valeurs rapportées à la date de référence de 2002 et corrigées de la décroissance du ^{238}Pu depuis le dépôt, notées * ; rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ des retombées atmosphériques des essais nucléaires (orange) ; rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ issu des rejets cumulés de l'usine de retraitement de La Hague (vert).

Du fait de la forte similitude entre les deux séries de données, il est probable que les rejets de l'usine de retraitement de La Hague aient eu une influence déterminante sur les activités en Pu dans

les sédiments de la Vasière Nord à partir de 1975, même si le décalage de 10 ans n'est pas retrouvé entre les deux séries de données : rappelons que la datation de la carotte n'est pas aussi affinée que pour les deux autres sites.

10.1.3. L' ^{241}Am

Les activités de l' ^{241}Am sont présentées sur la Figure 123. Cet élément présente des valeurs maximales largement supérieures à celles observées dans les sédiments des deux carottes de l'amont ; la valeur maximale mesurée est de $3,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$ en 1990. Comme pour le Cs et le Pu, les rejets de l'usine de retraitement de La Hague doivent prendre une part importante dans les activités observées dans ces sédiments. Les activités en ^{241}Am sont relativement faibles jusqu'en 1975 (les valeurs sont inférieures à $0,25 \text{ Bq.kg}^{-1}$) et elles augmentent brutalement ensuite (avec des valeurs proches de 3 Bq.kg^{-1}), pour diminuer au-delà de 1990.

Les activités du ^{244}Cm , détectées à partir de 1979, sont plus élevées dans les sédiments de ce site que dans ceux des deux sites amont. Le rapport $^{241}\text{Am}/^{244}\text{Cm}$ est très variable : 125 en 1979 ; 8 en 2000. L' ^{241}Am issu des rejets de l'usine de retraitement de La Hague entraîne une augmentation de ce rapport.

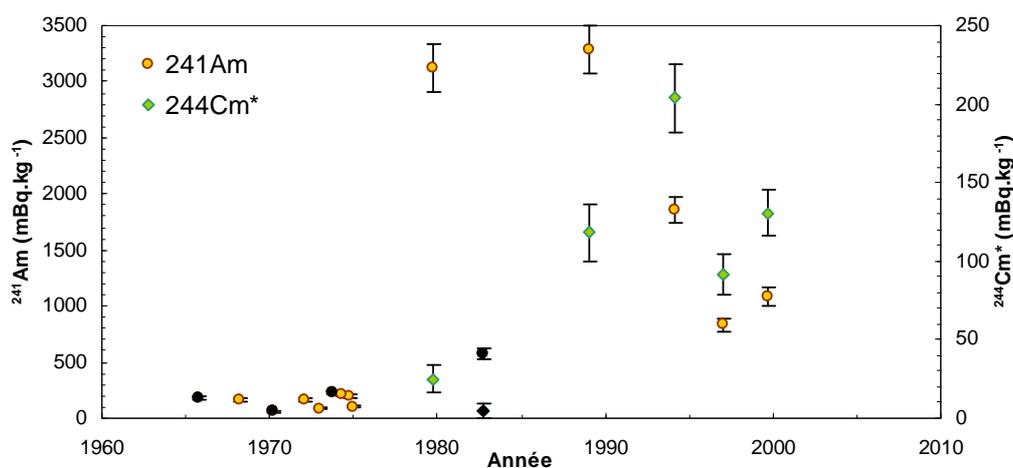


Figure 123 : Evolution temporelle des activités en ^{241}Am et ^{244}Cm dans les sédiments de la Vasière Nord ; valeurs rapportées à la date référence de 2002 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées * pour le ^{244}Cm , exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}_{\text{sec}} \pm 2\sigma$.

Avant 1975, les apports en radionucléides aux sédiments de la Vasière Nord sont essentiellement d'origine continentale. A partir de la fin des années 1970, la majeure partie des radionucléides semble provenir du pôle marin, et plus précisément des rejets de l'usine de retraitement de La Hague. Cela ne signifie pas que la proportion des apports marins/continentaux changent ; seulement, les sédiments marins présentent des activités en radionucléides artificiels plus importantes que les sédiments continentaux, et un faible apport peut suffire à faire évoluer les activités des sédiments de la Vasière Nord. Nous rediscuterons de façon plus précise de ce point dans le chapitre VII.

10.2. Radionucléides d'origine naturelle

10.2.1. Le ^{40}K

Le ^{40}K présente des valeurs autour de 300 Bq.kg^{-1} ; malgré que les échantillons soient plus sableux sur la Vasière Nord, le ^{40}K présente ici des activités similaires à celle des deux autres sites (Figure 124). Une légère diminution de l'activité du ^{40}K est observée au cours de la période la plus récente : les valeurs descendent à 250 Bq.kg^{-1} . Le profil du ^{40}K est ici encore similaire à celui de l'Al, à l'exception près que les maxima et minima sont moins marqués.

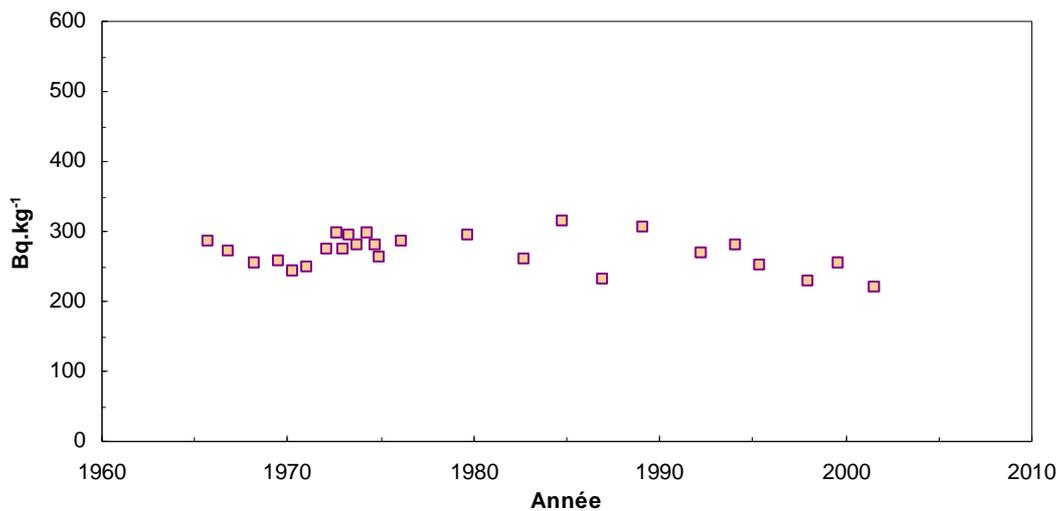


Figure 124 : Evolution temporelle des activités en ^{40}K dans les sédiments de la Vasière Nord (activités déduites des mesures du K stable, effectuées par ICPMS).

10.2.2. Famille du ^{232}Th

Les radionucléides de la chaîne du ^{232}Th présentent la même évolution temporelle (Figure 125).

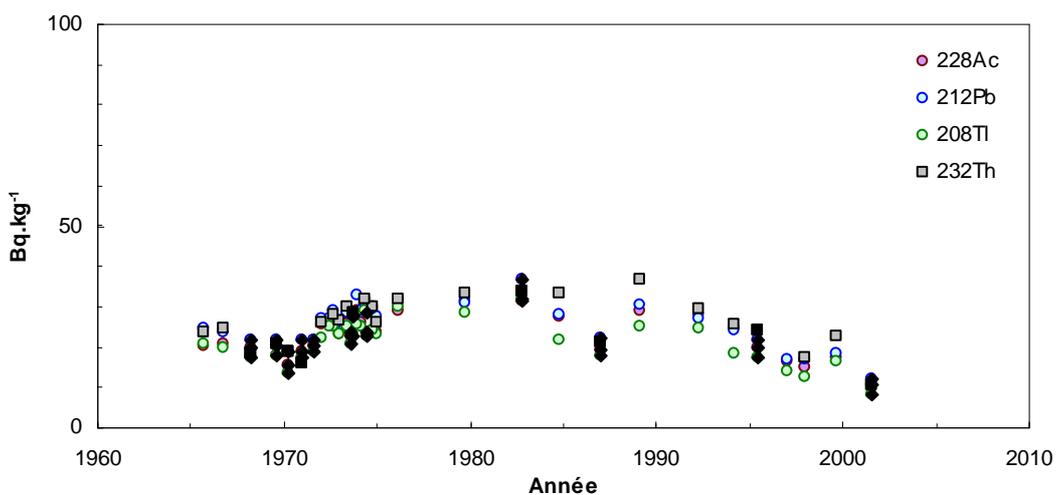


Figure 125 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{232}Th : ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; les activités en ^{232}Th ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en ^{208}Tl ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les concentrations en ^{212}Bi , très voisines de celles en ^{212}Pb , ont été omises ; les valeurs en noir représentent des niveaux très sableux ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$.

Leurs activités présentent des valeurs maximales autour de 30 Bq.kg^{-1} entre 1980 et 1990. Ces radionucléides proviennent des rejets de phosphogypses effectués par barge en baie de Seine dans les années 1980 et probablement aussi des apports amont, comme en témoigne l'évolution des concentrations en P (Figure 113). Les activités maximales observées ne sont cependant pas supérieures à celles des sédiments de Bouafles, site qui n'a subi aucune influence des rejets de phosphogypses. Les concentrations naturelles caractéristiques du pôle marin sont sûrement plus faibles que celles du pôle continental observées à Bouafles.

10.2.3. Famille de l' ^{235}U

L' ^{235}U et ses descendants n'ont pas été détectés dans les sédiments de la Vasière Nord. L'influence des phosphogypses, pourtant rejetés en quantité aussi forte voire plus forte que dans les années 1970 dans la région de Rouen, ne semble donc pas suffisante ici pour marquer significativement les sédiments en ^{235}U .

10.2.4. Famille de l' ^{238}U

Enfin, la série de l' ^{238}U présente de faibles activités dans l'ensemble des sédiments de la Vasière Nord (Figure 126). Les activités du ^{210}Pb sont les plus élevées avec une valeur maximale à 145 Bq.kg^{-1} à la fin des années 1980, exacerbées par l'abondance de la fraction fine des sédiments, alors que son activité est autour de 40 Bq.kg^{-1} dans les années 1970 (sédiments sableux). Le ^{226}Ra présente des activités assez élevées également dans les années 1980, jusqu'à 78 Bq.kg^{-1} . Le ^{214}Pb , le ^{238}U et le ^{234}Th présentent des activités maximales plus faibles, ne dépassant pas 40 Bq.kg^{-1} .

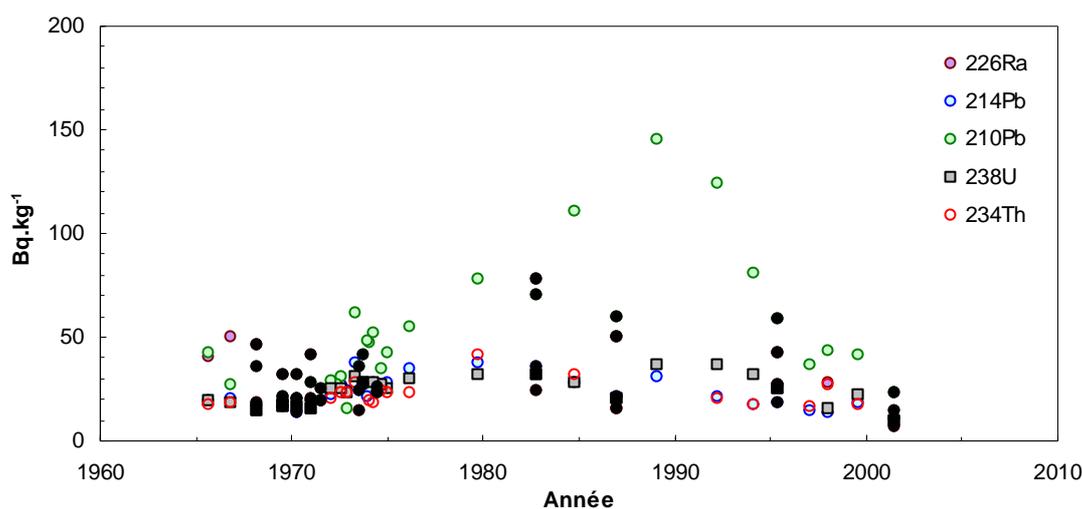


Figure 126 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{238}U : ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb ; les activités en ^{238}U ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICPMS ; les concentrations en ^{214}Bi , très voisines de celles en ^{214}Pb , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$.

Globalement, les activités des radionucléides de cette chaîne sont faibles dans les années 1970 ; elles augmentent très légèrement dans les années 1980, certainement sous l'influence des rejets de

phosphogypses en baie de Seine ; puis les activités diminuent de nouveau à partir des années 1990. Le ^{226}Ra n'est pas toujours détecté, mais sa limite de détection est assez élevée (75 Bq.kg^{-1}).

Les radionucléides d'origine naturelle présentent des activités peu variables au cours du temps. Les phosphogypses ont eu un impact plus limité dans cette partie de l'estuaire que dans l'estuaire fluvial de la Seine. Les sites amont et aval de l'estuaire n'enregistrent pas la contamination de la même façon. L'important stock sédimentaire présent dans la partie aval de l'estuaire de la Seine tamponne les effets de la contamination.

11. Conclusion

La Vasière Nord, située à l'embouchure de la Seine, est le siège d'apports sédimentaires importants qui ont contribué à son exhaussement. Sa dynamique sédimentaire, complexe, a été variable dans le temps. La sédimentation s'est effectuée de façon moins régulière qu'à Bouafles et que dans la Darse des Docks. L'alternance de lits sableux et argileux visibles le long de la carotte sédimentaire, démontre l'activité de différents forçages hydrodynamiques interférents (marées, vagues, variations des débits fluviaux) pilotant le fonctionnement du bouchon vaseux estuarien avec lequel les vasières intertidales sont en étroite connexion.

Les études précédemment menées sur ce site nous ont permis de dater cette carotte à l'aide de cartes topographiques anciennes et d'interpréter la variabilité des taux de sédimentation qui en résultent. La datation de la carotte a mis en évidence un taux de sédimentation très variable au cours du temps : (1) avant 1975, le taux de sédimentation est très important (60 cm.an^{-1}) ; il correspond au comblement d'un ancien important chenal, (2) après 1975, le taux de sédimentation diminue (5 cm.an^{-1}) ; il correspond à l'exhaussement progressif de la vasière jusqu'aux altitudes correspondant aux plus hautes mers de vives eaux.

La datation de la carotte a permis de présenter les résultats des analyses géochimiques sous forme de séries temporelles de concentrations. La granulométrie très hétérogène des sédiments rend toutefois délicate l'interprétation des résultats. Les variations brutales dans les concentrations sont souvent à mettre en relation avec une différence de granulométrie d'un échantillon à l'autre. A long terme, quelques grandes tendances se dessinent : à partir de 1975, les concentrations de quelques éléments stables augmentent (Cd, Y, Bi...), ainsi que les activités de certains radionucléides d'origine naturelle ou artificielle. Ces augmentations sont imputables aux importants rejets de phosphogypses en ce qui concerne les contaminants métalliques et les radionucléides d'origine naturelle. Pour ce qui concerne les radionucléides d'origine artificielle, les activités observées à partir de 1975 sont fortement influencées par les rejets de l'usine de retraitement de La Hague. Le stock sédimentaire actif présent dans l'embouchure de la Seine étant très important, les événements ponctuels enregistrés dans les sédiments du bassin versant de la Seine - tels que les retombées atmosphériques de l'accident de

Tchernobyl ou les rejets de ^{238}Pu de 1975 d'une installation nucléaire de la région parisienne - ne sont pas décelés puisque efficacement mélangés avec ce stock sédimentaire estuarien. Les apports fluviaux sont rarement assez conséquents pour faire varier de façon significative la géochimie des sédiments d'embouchure, sauf sur le long terme.

Ce site où sont enregistrés à la fois les apports de contaminants issus du bassin versant de la Seine et les apports de certains contaminants ou marqueurs en provenance du pôle marin, va nous permettre d'évaluer la pénétration des particules sédimentaires marines vers l'amont, dans l'estuaire fluvial de la Seine. Ce travail sera mené dans le chapitre VII.

CHAPITRE V :
Détermination des flux
de contaminants particulaires
à partir des séries temporelles acquises
sur les sites de la Darse des Docks
et de Bouafles

1. Introduction

Après que l'évolution des concentrations en éléments majeurs et traces, et en radionucléides ait été établie en trois sites-clés de la Seine fluviale, de l'estuaire amont et de son embouchure, notre objectif est maintenant de déterminer les flux particulaires annuels de ces éléments qui ont transité dans l'estuaire depuis 50 ans.

Il est nécessaire dans un premier temps, de s'assurer que les concentrations mesurées dans les sédiments carottés sont représentatives de celles mesurées dans les MES aux mêmes époques. Dans un second temps, disposant de l'historique des débits solides de la Seine, nous nous attacherons à calculer les flux élémentaires correspondants.

2. Données disponibles

Nous disposons de données sur les MES archivées par le GIP Seine-Aval et produites par la Cellule Anti-pollution de la Seine de Rouen (relevés établis par André Ficht). Cette dernière a effectué régulièrement, au cours des 2 ou 3 dernières décennies, selon le lieu, des suivis réguliers de la contamination des MES, de l'eau et des sédiments de surface par certains métaux en au moins trois sites de prélèvement : Poses (PK 202), la Bouille (PK 259) et Honfleur (PK 356) (Figure 127).

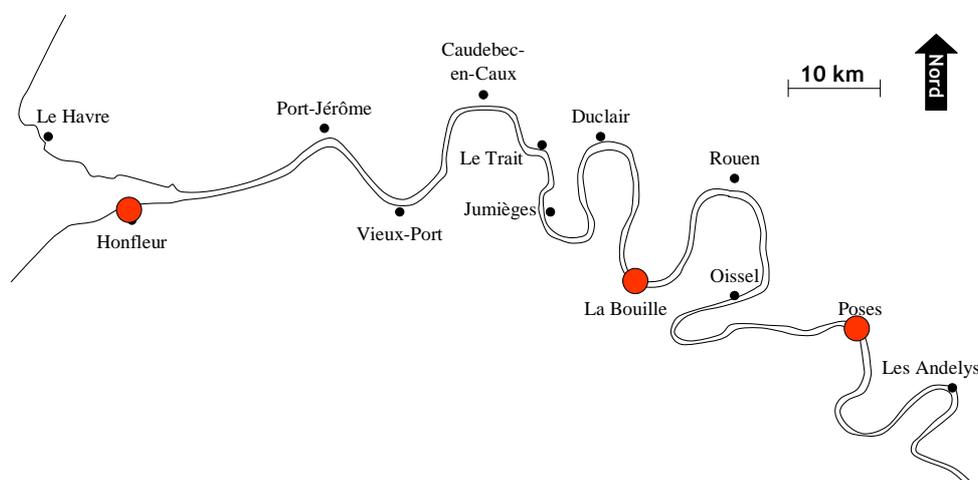


Figure 127 : Localisation des 3 sites de prélèvements de MES par la Cellule Anti-pollution de la Seine.

Les données existantes sur les MES sont présentées dans le Tableau 10. Les éléments mesurés sont : Al, Fe, Mn et Ti pour les éléments majeurs et Ag, Cd, Cr, Co, Cu, Hg, Ni, Pb, V et Zn pour les éléments-traces. Le mercure n'ayant pas été mesuré dans toutes les carottes sédimentaires, la comparaison ne sera pas possible (sauf pour la Darse des Docks). Les trois sites de prélèvements des MES sont à proximité d'un de nos sites de carottage :

- Bouafles est à 30 km en amont de Poses ;

3. Comparaison des données des concentrations en éléments stables dans les MES et dans les sédiments carottés

Dans ce chapitre, nous cherchons à déterminer si les concentrations en contaminants métalliques mesurées sur les sédiments des carottes de Bouafles, de la Darse des Docks et de la Vasière Nord sont représentatives des concentrations en ces mêmes éléments mesurés sur les MES au cours du temps.

3.1. Méthodologie

Il est probable que les granulométries des MES et celles des particules des sédiments carottés diffèrent. Pour pallier ce problème, les données sont toutes (MES et sédiments) normalisées à l'Al de la façon suivante :

$$E_{Norm-Al} = \frac{E_{\text{échantillon}}}{Al_{\text{échantillon}}} \quad \text{Équation 9}$$

$E_{Norm-Al}$: concentration de l'élément E normalisé à l'Al

$E_{\text{échantillon}}$: concentration en l'élément E dans l'échantillon

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

Les teneurs brutes en Al sont représentées sur la Figure 128. Globalement, elles sont comparables entre MES et sédiments carottés pour les sites de Bouafles et de la Darse des Docks (environ 4 %).

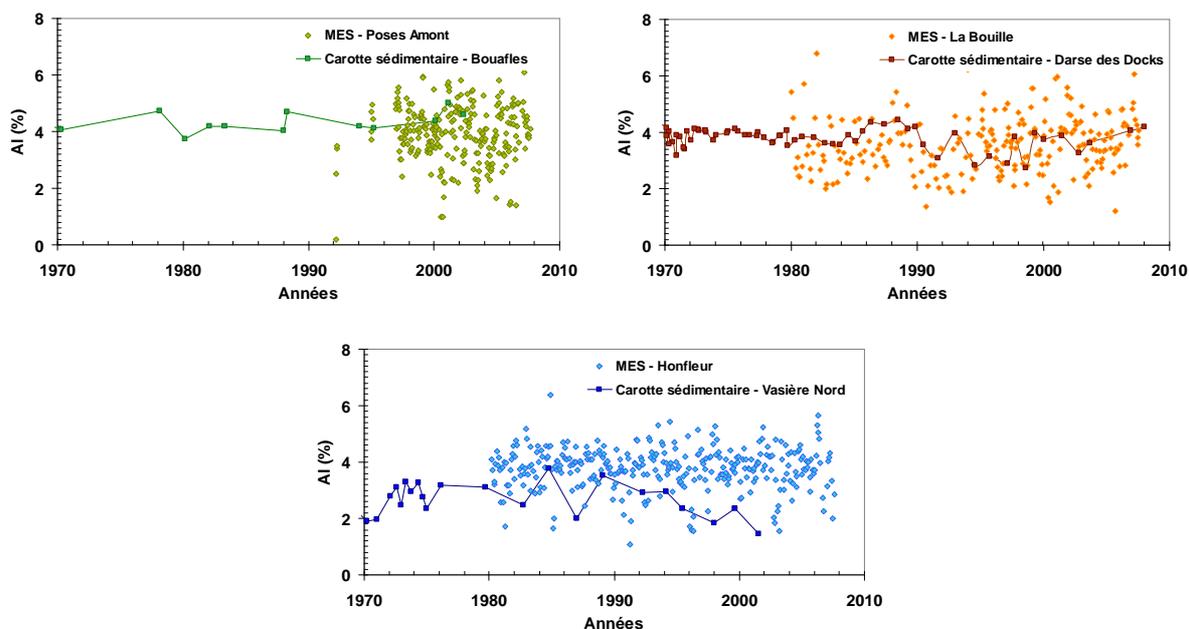


Figure 128 : Evolution des teneurs en Al dans les MES prélevées respectivement en amont de Poses, à la Bouille, et à Honfleur, et dans les sédiments des carottes datées prélevées respectivement à Bouafles, dans la Darse des Docks et sur la Vasière Nord. Les données des MES sont représentées en couleurs plus claires par des points ; les données sur les sédiments carottés sont représentées en traits continus.

Cependant, les concentrations en Al des MES sont très hétérogènes ; cela traduit une granulométrie et une teneur en matière organique très variables selon les échantillons. Ces variations sont dues au fait que les campagnes de prélèvements peuvent être réalisées lors de périodes de crue ou d'étiage et avec des coefficients de marée très divers. De plus, les MES sont prélevées de façon ponctuelle alors qu'un échantillon de sédiment carotté intègre au moins plusieurs mois. Malgré cela, on observe un bon accord des concentrations en Al entre sédiments carottés et MES sur les deux sites amont. Sur la Vasière Nord, cependant, les teneurs en Al des sédiments carottés sont moindres que celles des MES : les sédiments carottés sont plus grossiers dans l'ensemble que les MES prélevées.

En chaque site, on observe quelques échantillons de MES où les concentrations en Al sont particulièrement basses (inférieures à 2 %). Lors de la normalisation à l'Al des différents éléments, les teneurs correspondantes risquent d'être sur-correctées, et donc d'être anormalement fortes : elles ne perturberont pas significativement l'allure générale des séries temporelles des concentrations normalisées dans les MES.

3.2. Présentation des séries temporelles des éléments stables

Pour chaque élément dont les teneurs ont été mesurées dans les MES, trois graphiques sont représentés :

- les teneurs de l'élément normalisées à l'Al dans les MES prélevées en amont de Poses (vert clair) et les sédiments carottés à Bouafles (vert foncé).
- les teneurs de l'élément normalisées à l'Al dans les MES prélevées à la Bouille (orange) et les sédiments carottés dans la Darse des Docks (marron).
- les teneurs de l'élément normalisées à l'Al dans les MES prélevées à Honfleur (bleu clair) et les sédiments carottés sur la Vasière Nord (bleu foncé).

Les données sont toutes représentées entre 1970 et 2010 ; l'échelle des concentrations (ordonnées) est variable entre les sites : nous ne cherchons pas à faire une comparaison entre sites, mais à évaluer l'analogie entre les données des MES et celles des sédiments carottés : l'échelle est donc ajustée pour chaque site.

3.2.1. *L'argent*

Les teneurs en Ag n'ayant pas été mesurées sur les MES à Honfleur, seuls les deux autres sites étudiés sont représentés (Figure 129), avec des séries temporelles des MES très courtes (années : 2002-2007). Elles permettent donc seulement de s'assurer que les teneurs en Ag des sédiments carottés sont du même ordre de grandeur que celles des MES, mêmes si ces dernières présentent des concentrations assez dispersées (fonction des conditions hydrosédimentaires).

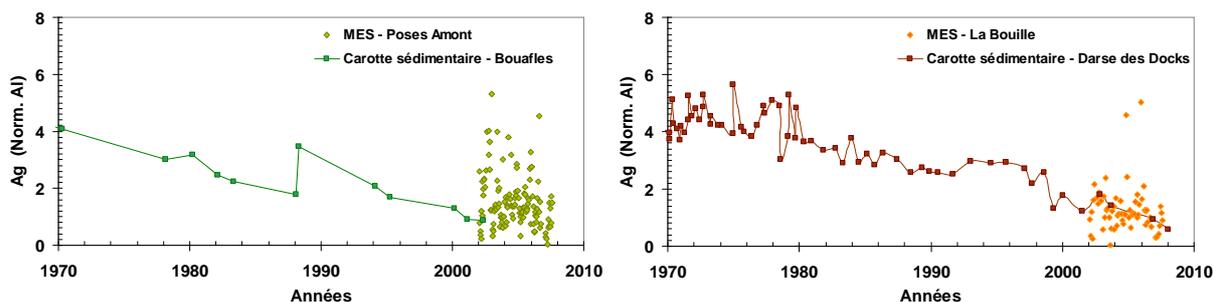


Figure 129 : Teneurs en Ag normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite).

3.2.2. Le cadmium

Les teneurs en Cd normalisées à l'Al des sédiments carottés et des MES sont du même ordre de grandeur sur les 3 parties de la Seine étudiées (Figure 130). L'analogie est très bonne sur le site de Bouafles, mais de courte durée. Sur le site de la Darse des Docks, on observe également une très bonne adéquation entre les deux séries. Enfin, sur le site de la Vasière Nord, davantage de disparités sont observées entre les deux séries temporelles ; elles sont peut-être simplement dues à une granulométrie très variable des particules des MES qui, malgré la normalisation à l'Al, continue de perturber le signal.

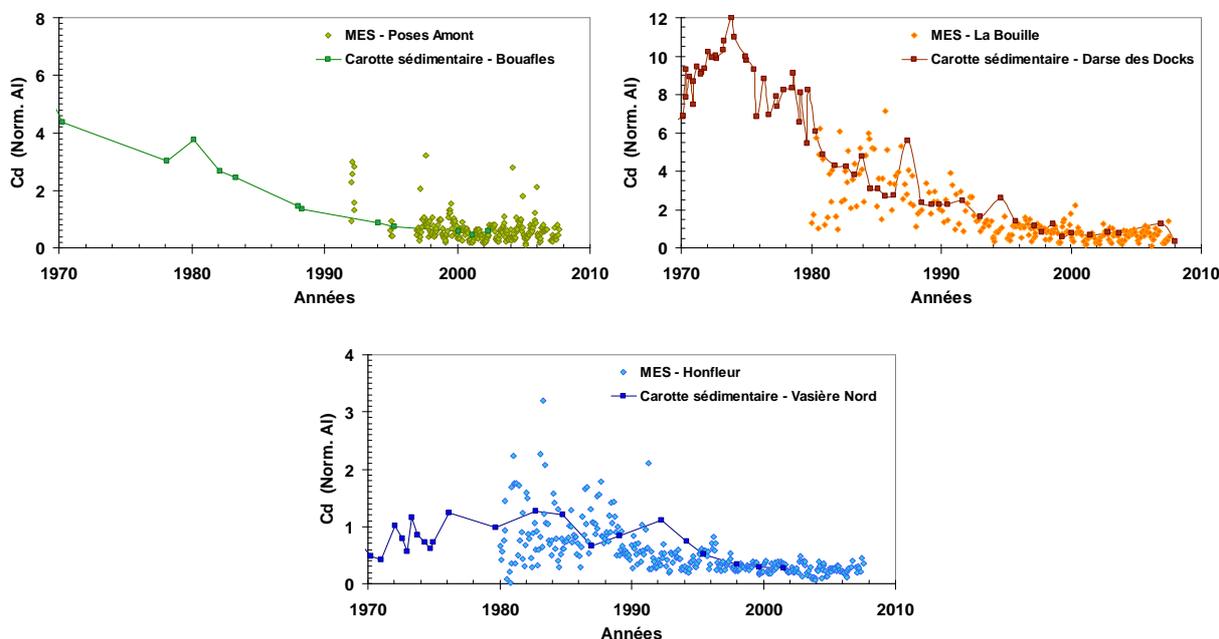


Figure 130 : Teneurs en Cd normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.3. Le chrome

Les concentrations normalisées en Cr présentent des variations similaires à celles du Cd sur les trois sites (Figure 131) : on observe une bonne adéquation entre les séries temporelles issues des carottes et celles issues des MES, notamment pour la période la plus récente et malgré des valeurs fortement dispersées dans les MES à l'amont de Poses.

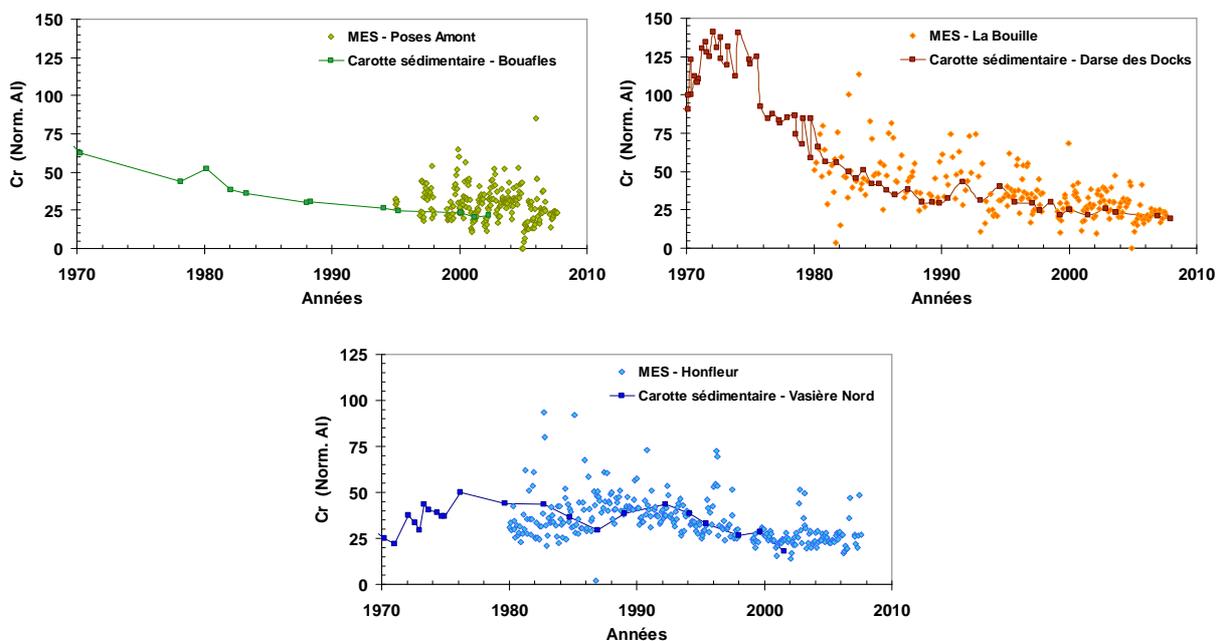


Figure 131 : Teneurs en Cr normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) ; et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.4. Le cobalt

Les concentrations normalisées en Co sont peu variables dans les sédiments carottés des sites de Bouafles et de la Darse des Docks ; on observe des teneurs semblables et stables dans les MES des sites correspondants (Figure 132), sauf entre 1980 et 1990 pour le site de La Bouille. En ce site, les teneurs des MES varient de 3 à 12, alors que les teneurs des sédiments carottés sont stables autour de 3. Ces disparités sont certainement dues à des problèmes de métrologie sur les mesures de MES dans les années 1980.

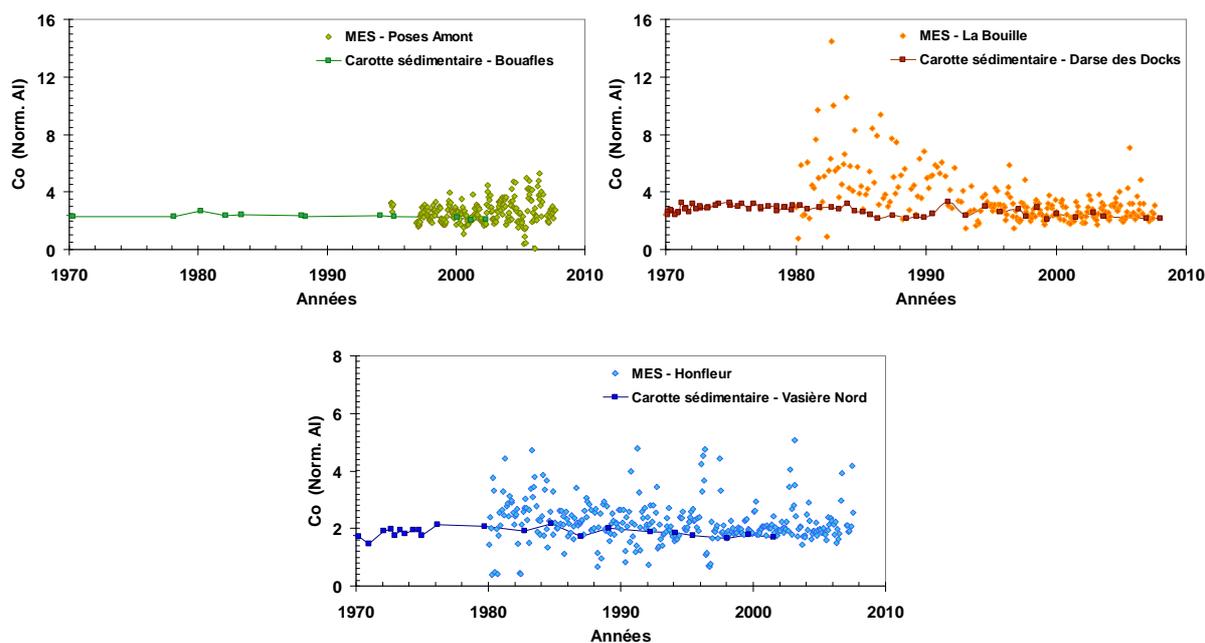


Figure 132 : Teneurs en Co normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.5. Le cuivre

La similitude entre les teneurs normalisées en Cu sur les MES et celles sur les sédiments carottés est très bonne (Figure 133), notamment sur le site de la Darse des Docks où les deux séries temporelles suivent la même décroissance entre 1980 et 2010.

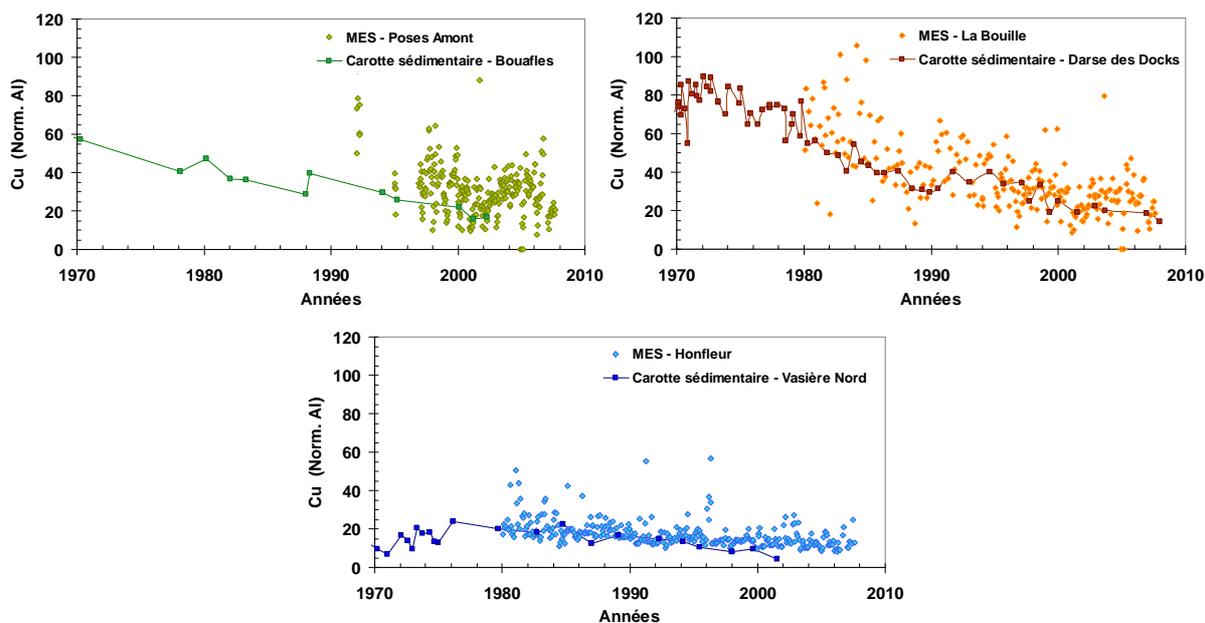


Figure 133 : Teneurs en Cu normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

Les valeurs relevées pour le site à l'amont de Poses sont quant à elles fort dispersées.

3.2.6. Le fer

Les teneurs normalisées en Fe sont stables et homogènes sur l'ensemble des sites, que ce soit sur les MES ou sur les sédiments carottés (Figure 134). Toutes les valeurs sont groupées autour de 0,6 pour les sites de Bouafles et de la Darse des Docks ; elles sont un peu supérieures (autour de 0,7) sur le site de la Vasière Nord.

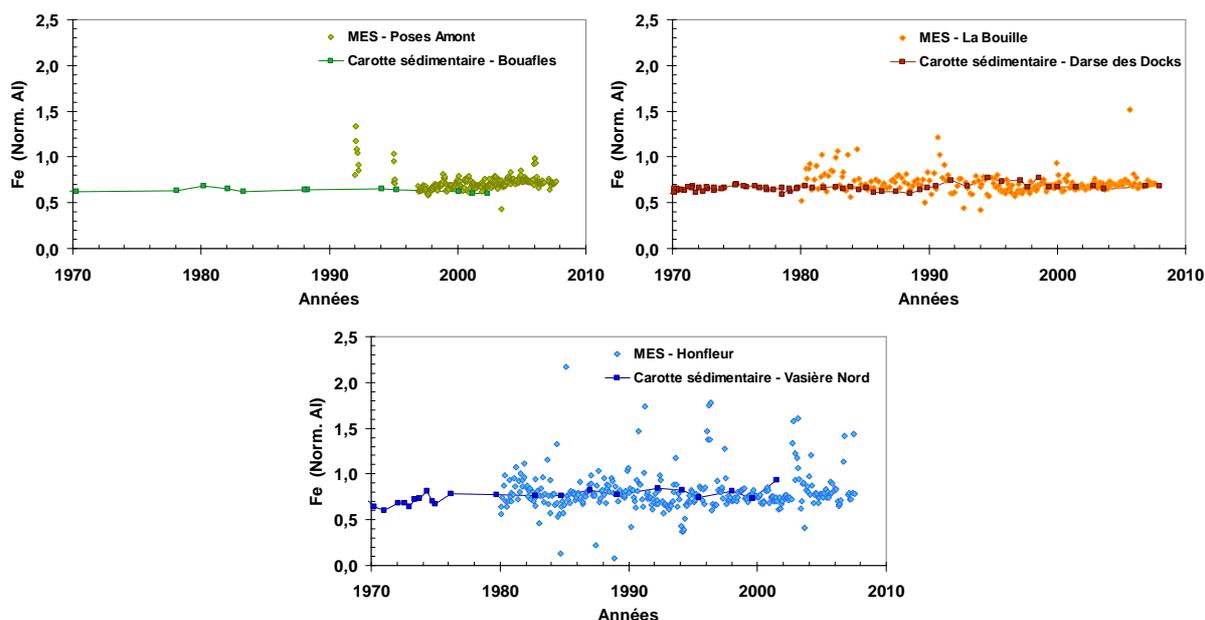


Figure 134 : Teneurs en Fe normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.7. Le manganèse

Les séries temporelles du Mn diffèrent entre MES et sédiments carottés. Sur les trois sites, les teneurs normalisées dans les MES sont toujours supérieures à celles mesurées dans les sédiments carottés et fort dispersées (Figure 135). Le Mn est un élément très réactif au cours de la diagenèse des sédiments ; de nombreux échanges entre la phase particulaire et l'eau interstitielle ont lieu après le dépôt des sédiments (Boust et al., 1999). Ce constat laisse penser qu'il existe une perte de Mn des sédiments fraîchement déposés vers les MES.

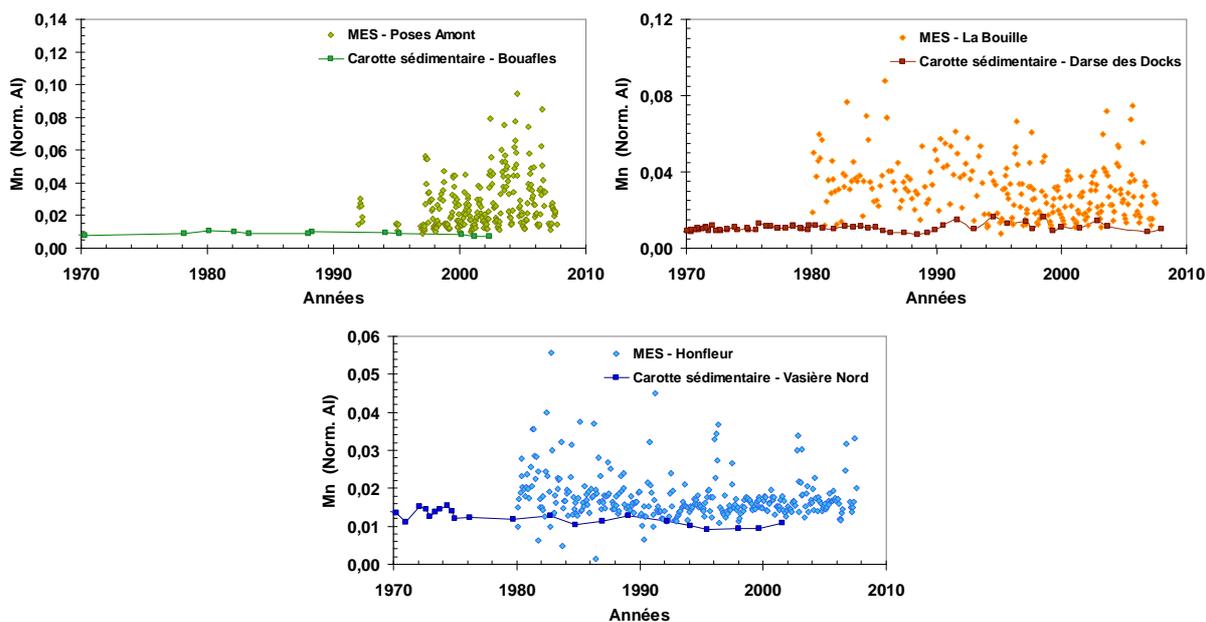


Figure 135 : Teneurs en Mn normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.8. Le nickel

En chaque site, les teneurs normalisées en Ni dans les MES et les sédiments carottés sont du même ordre de grandeur (Figure 136).

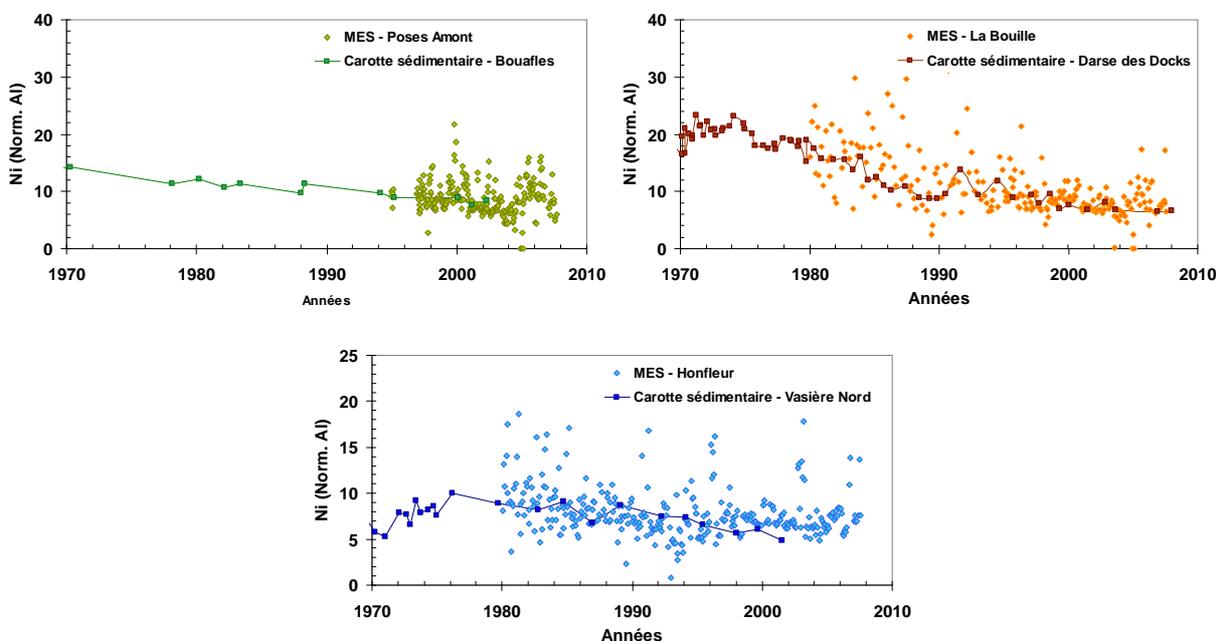


Figure 136 : Teneurs en Ni normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

A Bouafles, les valeurs ne sont disponibles que sur une courte durée et sont encore très dispersées.

En ce qui concerne les sédiments carottés de la Vasière Nord, les teneurs en Ni sont peu variables. Beaucoup de points s'écartent de la tendance générale en ce qui concerne les MES : il s'agit généralement des sédiments les plus pauvres en Al, et donc les plus grossiers. Les teneurs dans les MES restent globalement du même ordre de grandeur que celles des sédiments carottés. Au niveau de la Darse des Docks, la concordance entre teneurs en Ni des sédiments carottés et des MES est très bonne : on observe une diminution des teneurs de 20 à 10 entre 1980 et 1990, puis une stabilisation autour de 8 à partir de 1995.

3.2.9. Le plomb

Comme beaucoup d'autres éléments, la similitude entre les teneurs en Pb sur les MES et les sédiments carottés est bonne malgré la dispersion des valeurs sur les MES. Ici encore, on observe une décroissance des teneurs similaire sur les MES et les sédiments carottés pour le site de la Darse des Docks (Figure 137). Quelques écarts entre les deux séries temporelles sont toutefois observés sur le site de la Vasière Nord.

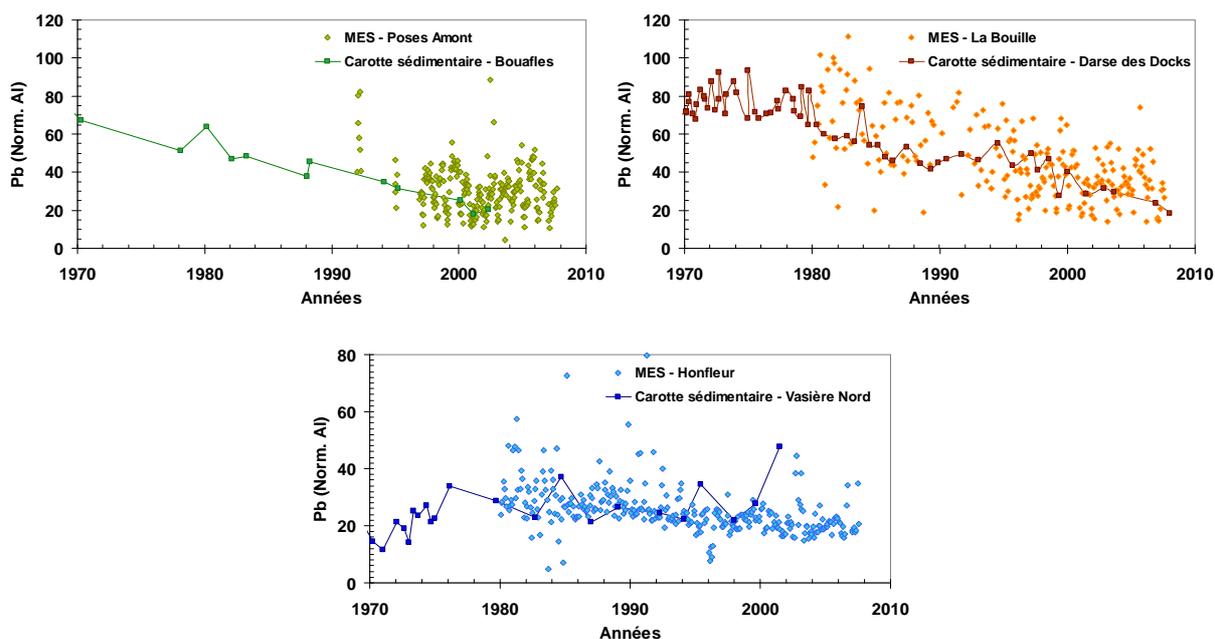


Figure 137 : Teneurs en Pb normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.10. Le titane

Globalement, les teneurs en Ti des MES et des sédiments sont les mêmes (Figure 138), malgré une forte dispersion des valeurs sur les MES d'Honfleur. Un léger écart est tout de même observé, en particulier au niveau de la Darse des Docks à partir de 1990 : les teneurs dans les sédiments sont

légèrement supérieures à celle des MES. Néanmoins, cet écart n'est pas significatif : il peut s'agir d'une incertitude liée à la métrologie.

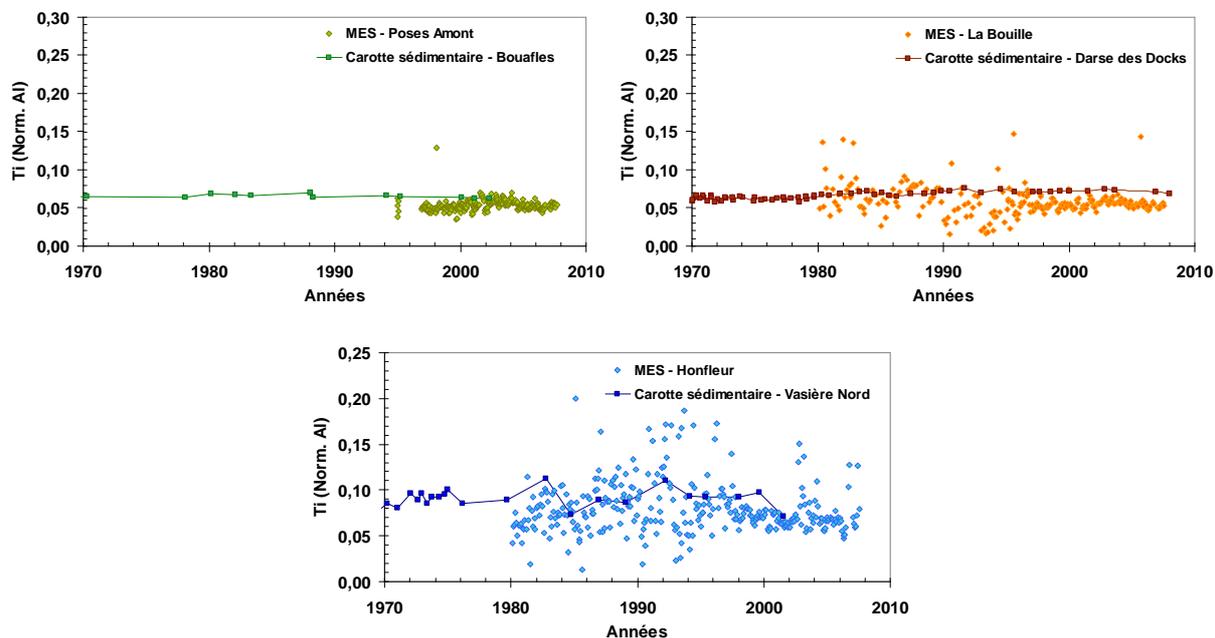


Figure 138 : Teneurs en Ti normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) ; et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.2.11. Le vanadium

Il y a une bonne analogie entre les teneurs en V des MES et des sédiments carottés (Figure 139).

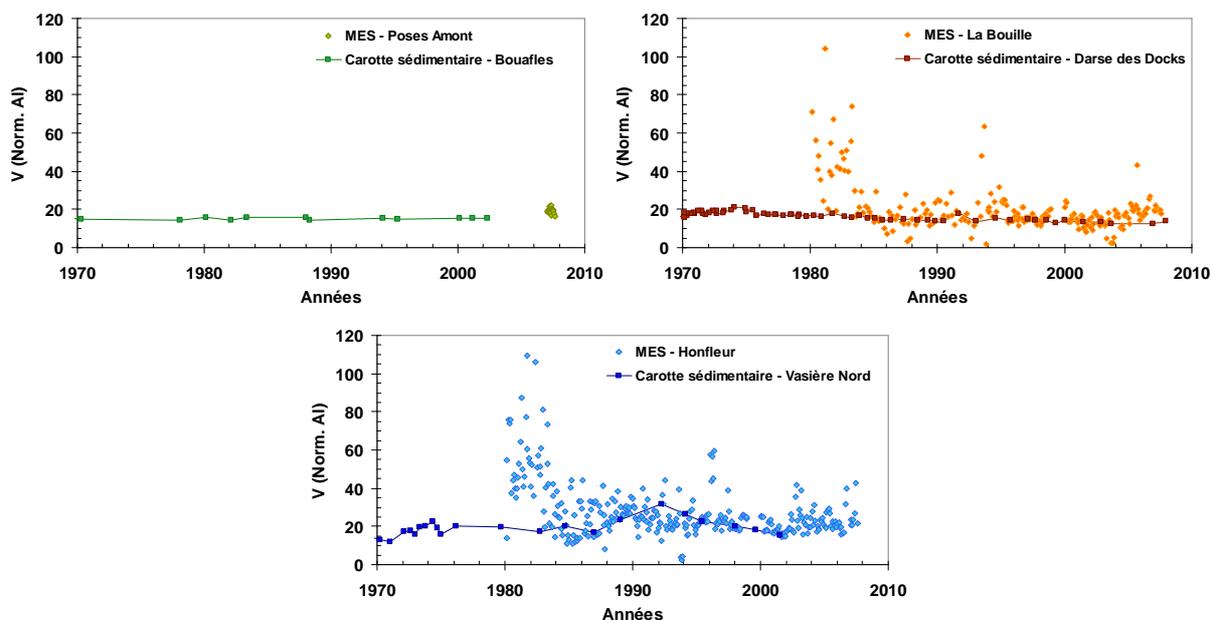


Figure 139 : Teneurs en V normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

Seules les MES prélevées au début des années 1980 au niveau de la Bouille et d'Honfleur présentent des teneurs plus élevées que, respectivement, les sédiments de la Darse des Docks et de la Vasière Nord : il s'agit très probablement d'un problème métrologique.

3.2.12. Le zinc

Les teneurs en Zn des MES et des sédiments sont proches (Figure 140). Nous observons ici encore la même décroissance entre les deux séries sur le site de la Darse des Docks.

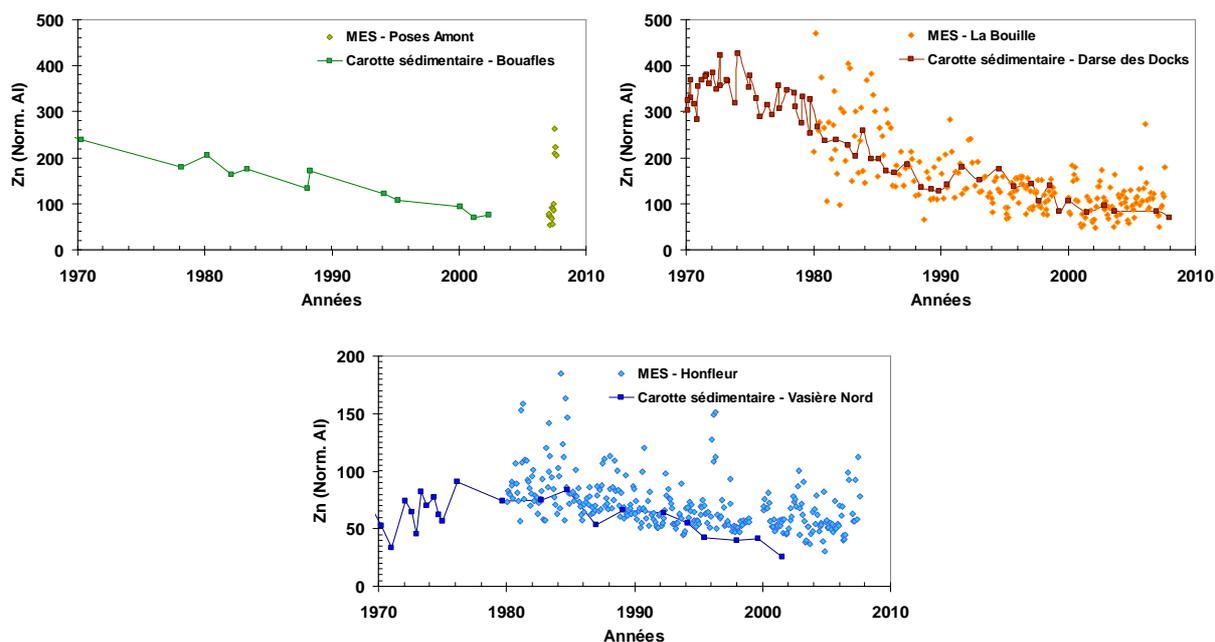


Figure 140 : Teneurs en Zn normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).

3.3. Bilan de la comparaison des séries temporelles des concentrations des éléments stables dans les MES et dans les sédiments carottés

Les séries temporelles de concentrations en contaminants métalliques dans les MES et celles enregistrées dans les sédiments carottés révèlent des tendances semblables dans la majorité des cas. Les signaux donnés par les MES sont toujours plus bruités que ceux fournis par les carottes sédimentaires : si ces dernières sont intégratrices, le stock sédimentaire mobile est évidemment fonction des conditions hydrosédimentaires du jour d'échantillonnage.

Sur le site de la Vasière Nord, les MES présentent des teneurs très variables qui s'expliquent dans la plupart des cas par une granulométrie très hétérogène entre les échantillons prélevés : les échantillons présentant des teneurs anormalement élevées sur les MES correspondent souvent aux échantillons contenant le moins d'Al ; la normalisation engendre donc un biais pour les sédiments les

moins riches en Al. On observe ce phénomène également pour les autres sites, mais de façon moins systématique.

Globalement, hormis deux éléments (le Mn et en moindre mesure le Ti), les concentrations des divers éléments stables enregistrées dans les sédiments carottés des trois sites sont conformes aux concentrations de ces éléments dans les MES ayant transité dans la Seine au site correspondant. Cela n'est pas surprenant, puisqu'il n'y a pas de grandes différences granulométriques ou minéralogiques entre les deux séries de données (MES et sédiments carottés) ; de plus, les éléments mesurés dans les différentes carottes sont peu réactifs ou réfractaires (à l'exception du Mn) ; comme c'est aussi le cas de la plupart des éléments pour lesquels la comparaison MES/sédiments n'a pu être faite, nous considérerons que l'analogie vaut également pour eux. Ainsi, l'historique de la contamination lu dans les carottes est conforme à celui de la contamination dans les MES qui ont transité dans l'estuaire amont et la Seine fluviale.

4. Comparaison des activités de radionucléides dans les MES et dans les sédiments carottés

Dans ce paragraphe, nous cherchons à savoir si les activités mesurées dans les carottes de la Darse des Docks sont représentatives de celles mesurées dans les MES au cours du temps et à son voisinage. 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 (1997), complétées de données IRSN acquises à la station OPERA de l'île Lacroix (PK 243) 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}K , ^{137}Cs , ^{228}Ac , $^{239, 240}\text{Pu}$ et ^{238}Pu . Les activités dans les MES sont comparées aux activités enregistrées aux mêmes dates dans les sédiments carottés de la Darse des Docks. La Figure 141 montre que l'adéquation entre ces deux séries de données est très bonne. Ces observations attestent que, s'agissant des radionucléides, il n'y a pas de différence entre le matériel particulaire circulant dans l'estuaire amont 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 activités en radionucléides caractéristiques du stock sédimentaire mobile dans le haut estuaire de la Seine au cours des 50 dernières années.

Comme déjà montré pour les contaminants métalliques, les activités en radionucléides enregistrées dans les sédiments de la Darse des Docks fournissent une image fidèle des concentrations présentes dans le matériel particulaire qui a transité dans le haut estuaire durant les 50 dernières années.

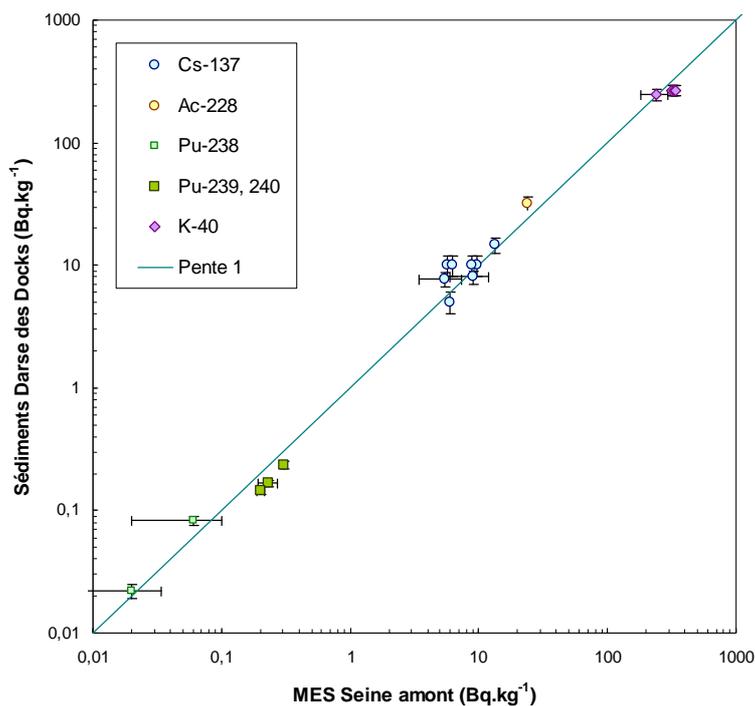


Figure 141 : Comparaison entre les activités en radionucléides mesurées dans les MES de la Seine entre 1979 et 2000 (d'après Thomas (1988) ; Garcia (1997) ; Jeandel et al. (1980) ; IRSN, données non publiées) et les activités déduites aux mêmes dates de l'enregistrement sédimentaire daté de la Darse des Docks ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec} \pm 2\sigma$.

5. Flux d'éléments stables et radioactifs dans la Seine fluviale et dans l'estuaire fluvial de la Seine

Les concentrations des différents éléments mesurées dans les carottes étant représentatives des concentrations mesurées dans les MES, il devient possible de calculer les flux particuliers de chaque élément transitant chaque année dans la Seine fluviale (Bouafles) et dans l'estuaire fluvial (Darse des Docks) à partir des débits solides mesurés à Poses et fournis par le GIP Seine-Aval. L'embouchure de la Seine (Vasière Nord) présentant une dynamique trop complexe, les calculs de flux sont irréalisables dans ce tronçon de l'estuaire.

5.1. Méthodes de calcul des flux à partir des débits solides

Pour effectuer les calculs de flux, les données de contaminants sur les carottes sédimentaires datées ont été extrapolées dans le but d'obtenir une concentration tous les dixièmes d'années, dans un premier temps. Chaque valeur réellement mesurée est attribuée au dixième d'année le plus proche. Entre chaque valeur mesurée, on extrapole de façon linéaire les données pour obtenir une donnée tous les dixièmes d'année. Ensuite, on effectue la moyenne des 10 données de l'année.

Pour obtenir le flux d'un élément majeur pour une année n , on effectue le calcul suivant :

$$(F_E)_n = Q_s \times \frac{E_n}{100} \times \frac{4}{Al_n} \quad \text{Équation 10}$$

$(F_E)_n$: flux de l'élément E en un point donné de la Seine pour l'année n, en tonnes par an.

Q_s : débit solide de la Seine pour l'année n, en tonnes par an.

E_n : concentration en % des sédiments en l'élément E en un point donné de la Seine pour l'année n.

Al_n : concentration des sédiments en Al en un point donné de la Seine pour l'année n.

Nous admettons que les MES présentent en moyenne une valeur de 4 % d'Al (Figure 128). Par analogie, le flux d'un élément-trace pour une année n, exprimé en tonnes par an est obtenu comme suit :

$$(F_e)_n = Q_s \times \frac{E_n}{1000000} \times \frac{4}{Al_n} \quad \text{Équation 11}$$

Avec les mêmes paramètres que précédemment sauf E_n , exprimé en $\mu\text{g}\cdot\text{g}^{-1}$.

Ces calculs de flux combinent les erreurs suivantes :

- les erreurs sur les mesures des différents éléments (négligeables devant les autres erreurs).
- les erreurs sur la datation des carottes sédimentaires.
- les erreurs sur la concordance établie entre teneurs sur les MES et teneurs dans les sédiments carottés (variables selon les éléments).
- l'erreur sur le débit solide.
- l'erreur due au choix arbitraire de la teneur moyenne en Al de 4 % pour s'affranchir des effets de la granulométrie.

Les débits solides sont bien sûr différents entre le barrage de Poses et l'agglomération de Rouen : les apports intra-estuariens représenteraient environ 10 % du débit solide à Poses (Dupont et al., 2001). Cependant, la Darse des Docks est située dans la partie la plus amont de l'estuaire et elle n'est soumise qu'à une partie des apports intra-estuariens. Dans les conditions énumérées ci-dessus, nous négligerons ces apports et appliquerons donc le débit solide calculé à Poses aux deux sites d'étude.

5.2. Flux élémentaires dans la Seine fluviale et dans l'estuaire fluvial de la Seine

Nous allons dans ce paragraphe présenter les résultats des calculs de flux des éléments stables mesurés à Bouafles et dans la Darse des Docks. Dans un premier temps, nous avons choisi de présenter trois séries temporelles des flux de trois éléments différents sur le site de la Darse des Docks, afin de comprendre la variabilité de ces flux au cours du temps. Dans un deuxième temps, les flux des

éléments considérés sont présentés sous forme graphique. La classification des éléments-traces utilisés dans les chapitres 2, 3 et 4 est conservée ici. Sur chaque graphique sont représentés, pour trois périodes différentes, la valeur du flux annuel moyen, le flux annuel maximal et le flux annuel minimal pour un site donné.

5.2.1. Exemples de séries temporelles de flux d'éléments

Nous avons d'abord choisi de présenter les flux annuels de trois éléments présentant des variations très différentes de leur FE dans les sédiments de la Darse des Docks :

- l'Y, fortement influencé par les rejets de phosphogypses dans les années 1970 ;
- le Rb, dont les teneurs sont stables au cours du temps ;
- le Pb, dont les teneurs décroissent continuellement des années 1960 à nos jours.

En observant les trois séries temporelles (Figure 142), on remarque un changement dans le signal par rapport aux séries temporelles présentant les FE : le débit solide de la Seine module considérablement les flux d'éléments.

Le flux d'Y total est très supérieur au flux d'Y naturel, c'est à dire le flux d'Y que l'on pourrait observer en l'absence de contamination (calculé à partir de la référence shales). Les flux d'Y sont particulièrement forts autour des années 1970, du fait des rejets de phosphogypses ; malgré tout, les flux les plus importants ne sont pas observés lors des plus forts rejets de 1973-1974. A cette époque, les concentrations dans les sédiments carottés sont les plus fortes, mais les débits solides de la Seine étant faibles, ces deux années ne connaissent pas les flux d'Y les plus élevés. Cela signifie que (1) les flux particuliers des différents éléments sont en grande partie fonction de la quantité de MES transitant dans l'estuaire, (2) en période de faibles débits solides, les flux d'éléments dissous sont certainement plus importants : pour un rejet de contaminants plus fort pendant l'année 1973, on observe un flux plus faible qu'en 1970. D'après Chiffoleau et al. (2001), 80 % des apports dissous en métaux se font à des débits inférieurs à $600 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$; en revanche, 70 % des apports particuliers se produisent lors d'un débit supérieur à $600 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Les débits solides et liquides étant corrélés, cela revient à dire que la part de contaminants dissous est plus forte pour de faibles débits solides. Enfin, à partir de 1985, les flux d'Y se rapprochent très fortement des flux naturels.

Les flux de Rb sont complètement modulés par le débit solide. Le Rb n'étant pas contaminant, sa présence dans l'estuaire, totalement naturelle, dépend donc de l'importance des débits solides.

Les flux annuels de Pb sont très supérieurs à ceux que l'on pourrait observer en l'absence de contamination. Globalement, les flux tendent à diminuer des années 1960 à nos jours, mais on observe des flux encore trop élevés au début des années 2000. Même après une forte décroissance des apports en métaux, la Seine reste parmi les estuaires les plus contaminés au monde (Chiffoleau et al., 2001). Les flux sont plus faibles entre 1971 et 1976. En proportion, la différence de flux entre 1970 et 1973

est beaucoup plus importante pour le Pb que pour l'Y. Cela peut s'expliquer (1) par des FE équivalents entre 1970 et 1973 dans les sédiments pour le Pb, alors qu'ils sont plus faibles en 1970 pour l'Y, (2) par des sources de contaminants plus éloignées du point de mesure pour le Pb, ce qui permet plus facilement aux particules d'intégrer les contaminants avant celui-ci.

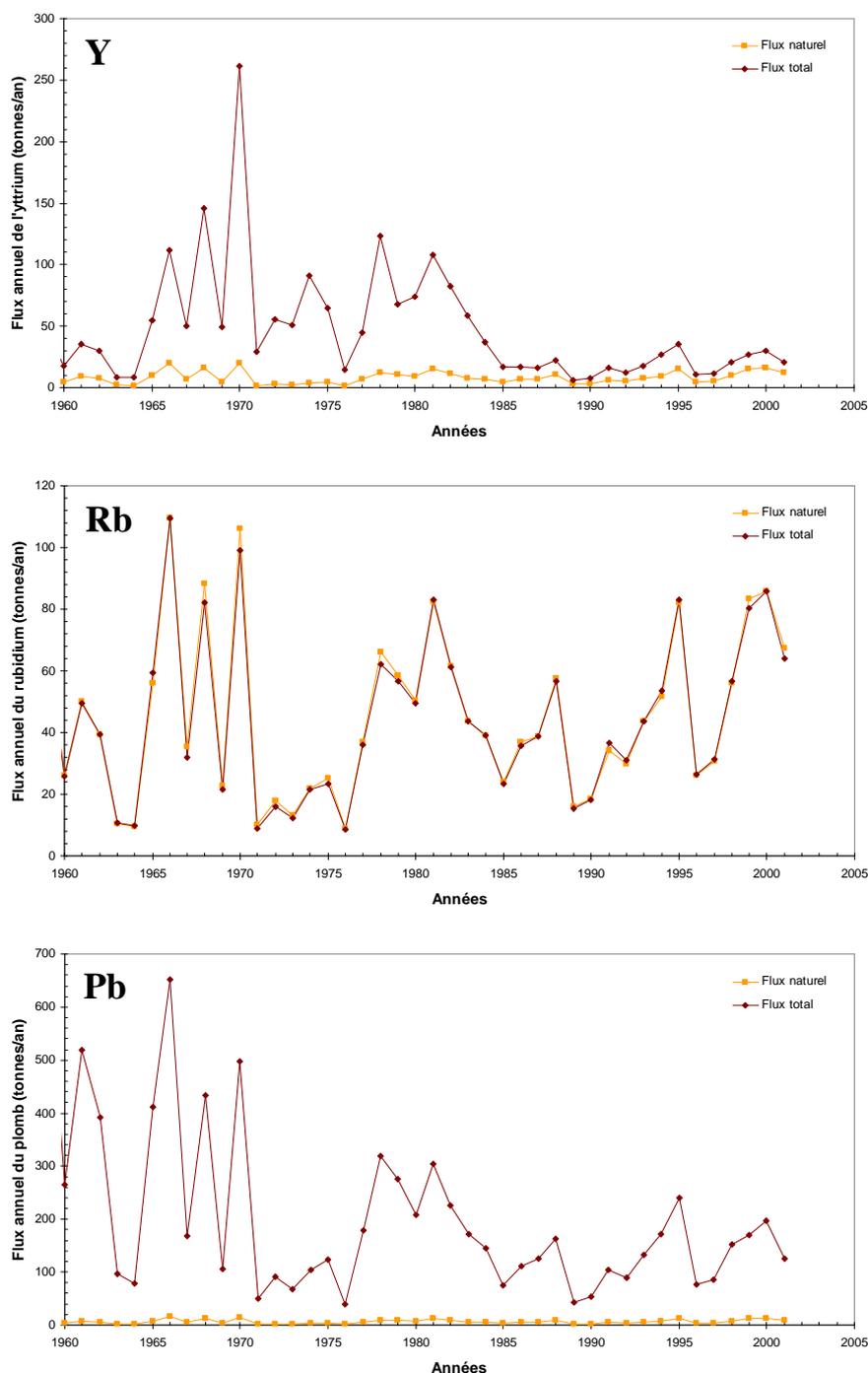


Figure 142 : Flux annuels de 3 éléments (haut : Y ; milieu : Rb ; bas : Pb) au cours du temps au niveau de la Darse des Docks. Le flux naturel correspond à ce que serait le flux sans contamination, c'est-à-dire au flux de l'élément pour un sédiment de type shales contenant 4 % d'Al.

5.2.2. Flux d'éléments majeurs

Les Figure 143 et Figure 144 présentent les valeurs des flux annuels moyens des éléments majeurs, ainsi que les flux annuels maximaux et le flux annuels minimaux pour le site de Bouafles et le site de la Darse des Docks respectivement. Ces flux annuels moyens sont présentés sur 3 périodes de temps : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

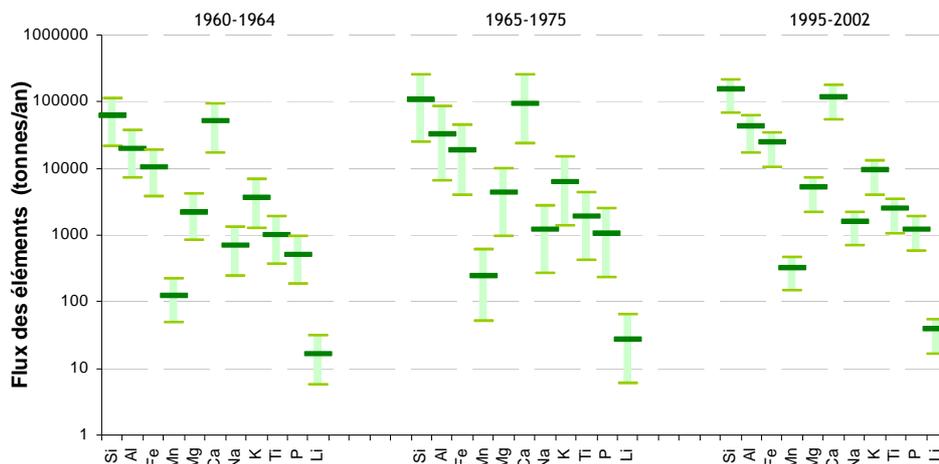


Figure 143 : Flux moyens annuels des différents éléments majeurs au niveau de Bouafles pour 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

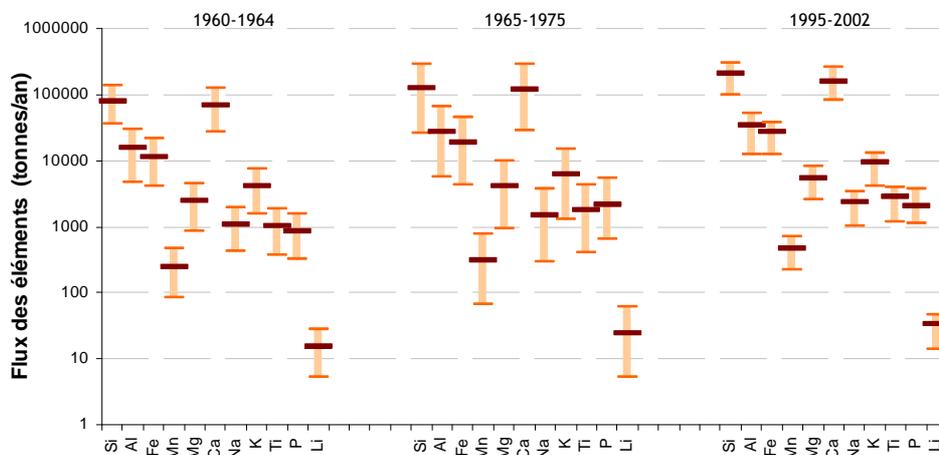


Figure 144 : Flux moyens annuels des différents éléments majeurs au niveau de la Darse des Docks pour 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Les flux des différents éléments majeurs présentent plus de disparités entre les différentes périodes que ce que l'on a pu remarquer pour les séries temporelles de concentrations des différentes carottes. Si on prend, par exemple, le cas du Mg on observe des valeurs très variables selon les périodes de temps avec un flux moyen de 2440 T/an pour la période 1960-1964, 4180 T/an pour la période 1965-1975 et 5430 T/an pour la période 1975-2002. Cet élément présentant un FE stable dans le temps, ces variations s'expliquent encore ici par la variabilité des flux de matières solides. Les flux des

éléments majeurs, du fait des fortes concentrations de ces derniers dans les sédiments, sont d'autant plus touchés par les fluctuations du débit solide.

Les flux des éléments majeurs sont vraiment proches entre le site de Bouafles et celui de la Darse des Docks, exception faite du P qui présente des flux plus faibles pour les périodes 1960-1964 et 1965-1975 au niveau de Bouafles, de l'ordre de 1000 T.an^{-1} contre 2000 T.an^{-1} au niveau de l'estuaire fluvial.

Ces flux sont essentiellement dépendants de la quantité de MES qui transitent dans l'estuaire au cours du cycle hydrologique ; de ce fait, il existe peu de différence entre les flux des éléments majeurs à Bouafles et ceux à proximité de Rouen, leur calcul étant effectué à partir des mêmes débits solides.

5.2.3. *Eléments-traces*

a) Série 1 : éléments-traces influencés par les rejets de phosphogypses

Les flux des éléments dont les teneurs dans les sédiments ont été influencées par les rejets de phosphogypses sont représentés sur les Figure 145 et Figure 146. Les flux sont similaires pour la période 1995-2002 d'un site à l'autre. Pendant la période 1960-1964, ils sont comparables d'un site à l'autre pour la plupart des éléments. On note des valeurs plus importantes au niveau de la Darse des Docks pour l'Y et l'U. Enfin, pour la période 1965-1975, les flux de contaminants sont globalement plus importants au niveau de la Darse des Docks qu'à Bouafles ; pour des éléments tels que Ba, Sr, Cr, Cu, la différence n'est pas manifeste. Comme nous l'avons vu à l'analyse de la Figure 142, les flux de contaminants liés aux rejets de phosphogypses sont atténués au niveau du maximum de rejet par de faibles débits solides de la Seine dans les années 1970.

Selon Meybeck (1998), lors de l'année hydrologique 1994-1995, le flux particulaire en Cd à Poses a été de $3,5 \text{ T.an}^{-1}$, et celui de Cu de 112 T.an^{-1} , ce qui est du même ordre de grandeur que ce que nous observons (Figure 145). Selon Thévenot et al. (2002), le flux particulaire de Cd au barrage de Poses est de $1,8 \text{ T.an}^{-1}$ en 1998-1999, celui du Cr de 100 T.an^{-1} , celui du Cu de 89 T.an^{-1} , et celui du Ni de 32 T.an^{-1} ; nous calculons des flux proches au niveau de Bouafles avec $2,7 \text{ T.an}^{-1}$ en moyenne en 1998 et 1999 pour le Cd, 103 T.an^{-1} pour le Cr, 98 T.an^{-1} pour le Cu, et 39 T.an^{-1} pour le Ni.

Selon Avoine et al. (1986), le flux moyen de Cd entre 1976 et 1982 est de 12 T.an^{-1} dans l'estuaire fluvial de la Seine pour un sédiment contenant 3,6 % d'Al ; pour cette période, nous calculons ici un flux annuel de 20 T.an^{-1} (mesure non représentée sur la Figure 146) pour un sédiment contenant 4 % d'Al. L'écart constaté entre ces deux valeurs est engendré par la différence sur la charge annuelle : Avoine et al. (1986) utilisent une charge particulaire annuelle de 500 000 T, alors que la charge annuelle utilisée dans la présente étude est de 820 000 T pendant la période considérée. D'autres valeurs sont fournies dans Avoine et al. (1986), tels que le Cr : 100 T.an^{-1} , contre 220 dans notre

étude ; le Cu : 165 T.an⁻¹, contre 200 ici ; et le Ni : 60 T.an⁻¹, contre 56 ici. Même si nous restons dans les mêmes ordres de grandeur, il existe donc quelques disparités entre les résultats des deux études.

A titre d'une autre comparaison, les flux de Cd particulaire au niveau de la Garonne variaient de 2 à 22,3 T.an⁻¹ dans les années 1990 (Audry et al., 2004). De telles valeurs ne sont plus observées actuellement dans les sédiments de la Seine (1995-2002), mais des valeurs aussi fortes voire supérieures ont été observées dans le passé.

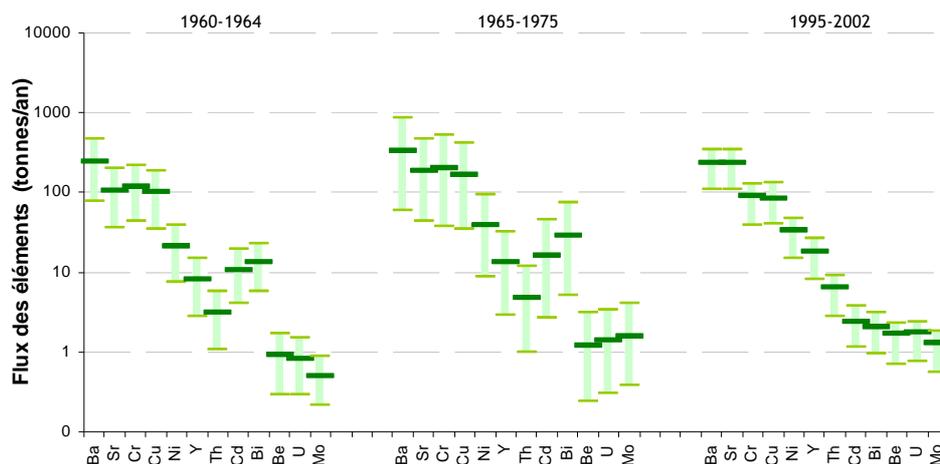


Figure 145 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs ont été influencées par les rejets de phosphogypses au niveau de la Darse des Docks. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

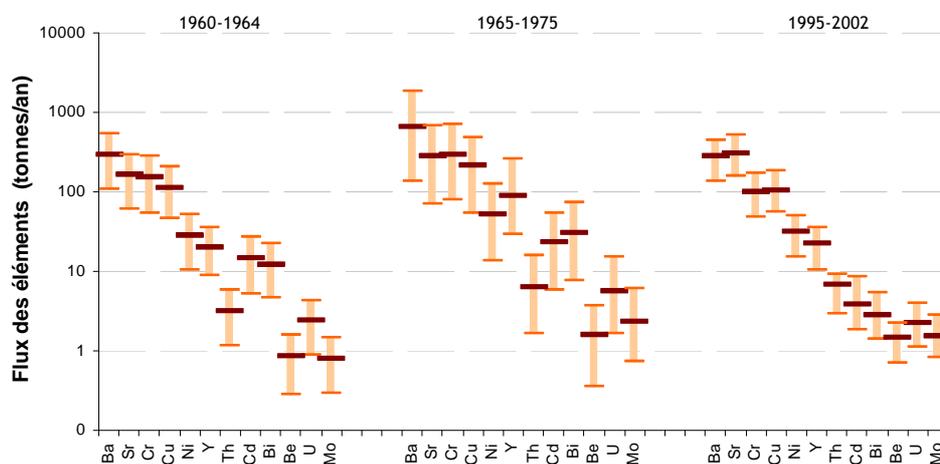


Figure 146 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs ont été influencées par les rejets de phosphogypses au niveau de la Darse des Docks. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Grâce à une étude effectuée sur les rejets de phosphogypses dans l'estuaire de la Seine (Chapitre VI), nous disposons de quelques données des exploitants sur les masses de métaux rejetés dans l'estuaire de la Seine. Ces données sont approximatives, puisque les analyses effectuées sont ponctuelles ; de plus, les méthodes d'analyse de l'époque n'étaient pas aussi fiables que celles

d'aujourd'hui. Prenons l'exemple du Cd (Tableau 11), les flux intra-estuariens calculés dans la 4^{ème} colonne du Tableau 11 (flux sortants) sont supérieurs aux rejets de Cd issus des phosphogypses (flux entrants). Il y a donc un désaccord entre les deux séries de données. Si on peut comprendre que les flux sortants soient inférieurs aux flux entrants par perte de Cd dans la phase dissoute, l'inverse est plus difficile à expliquer.

Les analyses en métaux effectuées sur les phosphogypses peuvent fournir des concentrations sous-estimées ; ceci est possible, puisque les concentrations en métaux dans les phosphogypses fournies dans la littérature sont supérieures à celles fournies par l'exploitant. Même si elles peuvent toutefois être très variables, il demeure difficile d'expliquer ces écarts entre flux entrants et sortants.

Il est clair que les résultats des calculs des flux des métaux liés aux phosphogypses au niveau de la Darse des Docks sont à prendre avec prudence durant la période des rejets.

Tableau 11 : Flux de Cd dans l'estuaire de la Seine au cours de la période 1974-1987 ; flux transitant dans la Seine en T.an⁻¹ (colonnes 2 et 3) ; différentiels des flux de Cd entre la Seine fluviale et l'estuaire fluvial ; flux intra-estuariens en kg (colonne 4) ; quantités de Cd rejetées par les phosphogypses en kg (colonne 5).

Années	Flux à Bouafles (T.an ⁻¹)	Flux à la Darse des Docks (T.an ⁻¹)	Différentiels des flux (kg.an ⁻¹)	Rejets par les phosphogypses (kg.an ⁻¹)
1974	5	15	9606	3381
1975	5	14	8642	1250
1976	2	4	2561	571
1977	7	18	10692	666
1978	13	35	21599	292
1979	13	26	12975	323
1980	11	19	7347	394
1981	16	23	7753	361
1982	10	16	6322	190
1983	7	12	4919	100
1984	5	9	3159	137
1985	3	4	1304	159
1986	4	8	3441	409
1987	4	12	7990	109

b) Série 2 : éléments-traces non enrichis

Les flux des éléments présentés sur les Figure 147 et Figure 148 sont comparables pour les deux sites. Comme le Rb sur la Figure 142, les variations des flux de ces éléments sont totalement dépendantes des variations des flux particuliers. Par conséquent, on observe des flux d'éléments plus importants au cours de la période récente du fait de débits solides plus élevés.

Dans l'étude d'Avoine et al. (1986), le flux de V pour la période 1976-1982 est de 110 T.an⁻¹, contre 56 ici pour la même période (valeur non représentée sur la Figure 148). L'écart observé entre ces deux valeurs est dû à la différence de débit solide utilisé pour les calculs de flux.

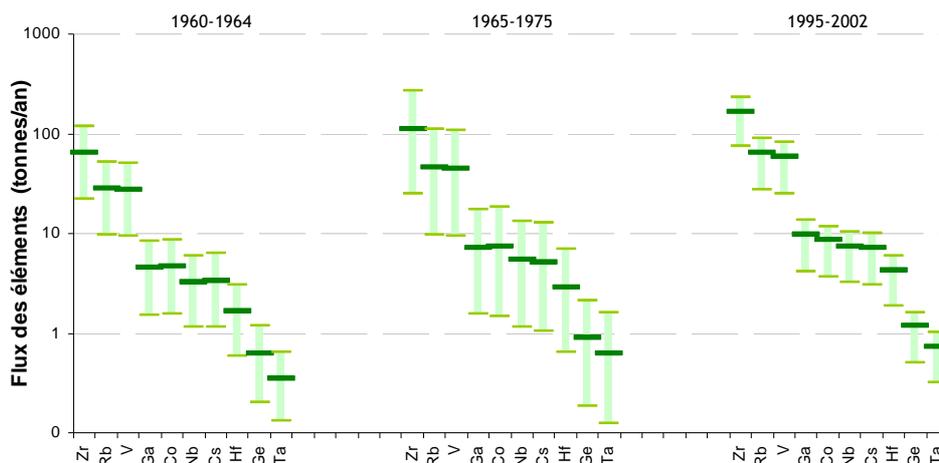


Figure 147 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

Ces éléments sont ceux dont les teneurs sont peu variables au cours du temps.

La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

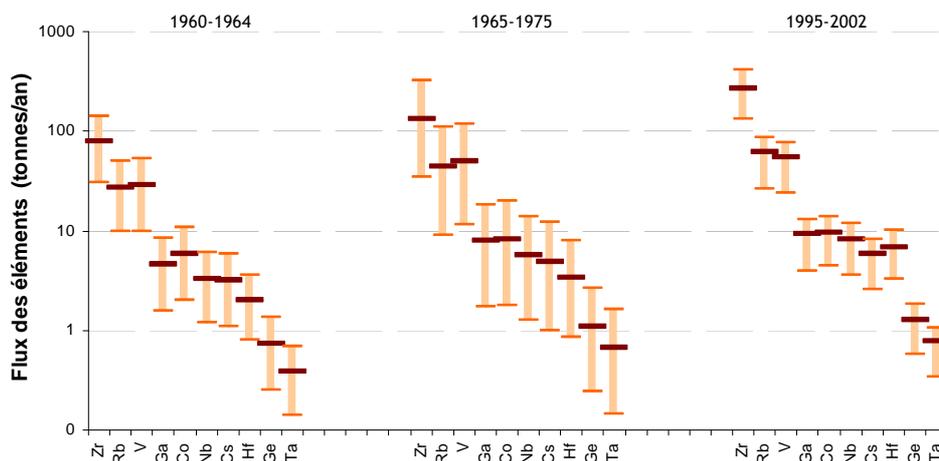


Figure 148 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

Ces éléments sont ceux dont les teneurs ont été peu variables au cours du temps.

La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

c) Série 3 : éléments-traces dont les concentrations dans les sédiments diminuent au cours du temps depuis 1960

La décroissance des teneurs observées pour 7 éléments dans la colonne sédimentaire carottée est moins visible au niveau des flux (Figure 149 et Figure 150). Cette décroissance n'est pas observée entre 1960-1964 et 1965-1975 ; cependant, on notera que sur cette période (1960-1975), la décroissance des teneurs de ces 7 éléments est faible dans les sédiments. Par contre, on observe bien des flux plus faibles entre 1965-1975 et 1995-2002 sur les deux sites, ceci malgré de forts débits solides de la Seine au cours de la période 1995-2002.

Selon Meybeck (1998), pour l'année hydrologique de 1994-1995, les flux particuliers à Poses en

Pb et en Zn ont été de 140 T.an^{-1} et de 513 T.an^{-1} respectivement ; selon Thévenot (2002), pour l'année hydrologique de 1998-1999, ces flux ont été de 87 T.an^{-1} pour le Pb et de 333 T.an^{-1} pour le Zn. Ces valeurs sont en accord avec celles de la Figure 149. Michel et al. (1999) mesuraient un flux particulaire de $4,9 \text{ T.an}^{-1}$ d'As en 1991 au barrage de Poses à partir de prélèvements ponctuels effectués sous différentes conditions hydrologiques ; nous calculons pour cette année un flux, comparable, de $5,9 \text{ T.an}^{-1}$.

Selon Avoine et al. (1986), le flux en Zn pour la période 1976-1982 était de 550 T.an^{-1} , contre 905 T.an^{-1} calculé à partir des concentrations dans les sédiments de la Darse des Docks pour la même période (valeur non représentée sur la Figure 148) ; le flux de Pb était de 100 T.an^{-1} , pour les mêmes auteurs, contre 221 d'après notre étude. Il existe donc une différence notable dans les résultats.

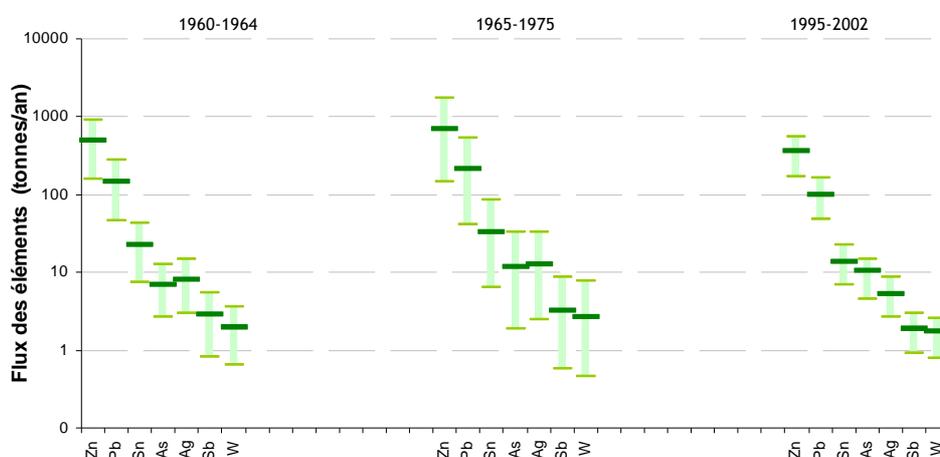


Figure 149 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

Ces éléments sont ceux dont les teneurs sont en décroissance continue de 1960 à 2000. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

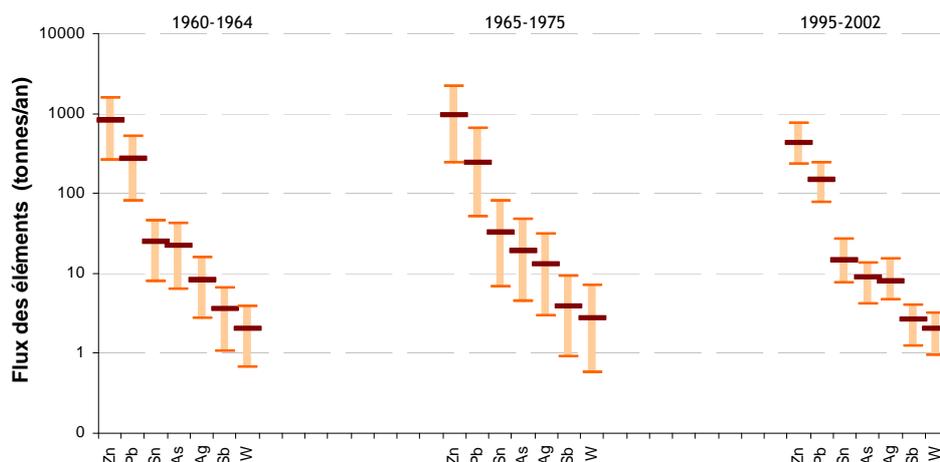


Figure 150 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

Ces éléments sont ceux dont les teneurs sont en décroissance continue de 1960 à 2000. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

d) Les terres rares

Les terres rares représentent des flux particuliers semblables sur les deux sites, sauf pour la période 1965-1975 où les rejets de phosphogypses engendrent des flux plus élevés à la Darse des Docks (Figure 151 et Figure 152).

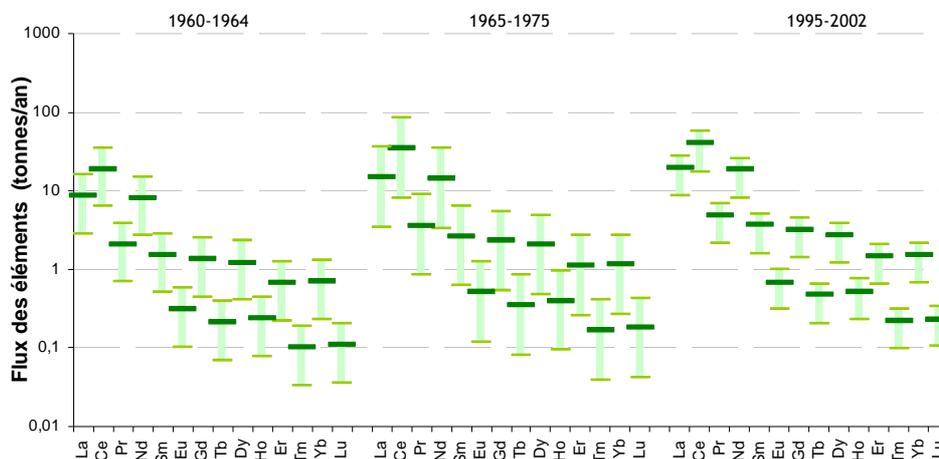


Figure 151 : Flux moyens annuels des différentes terres rares au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

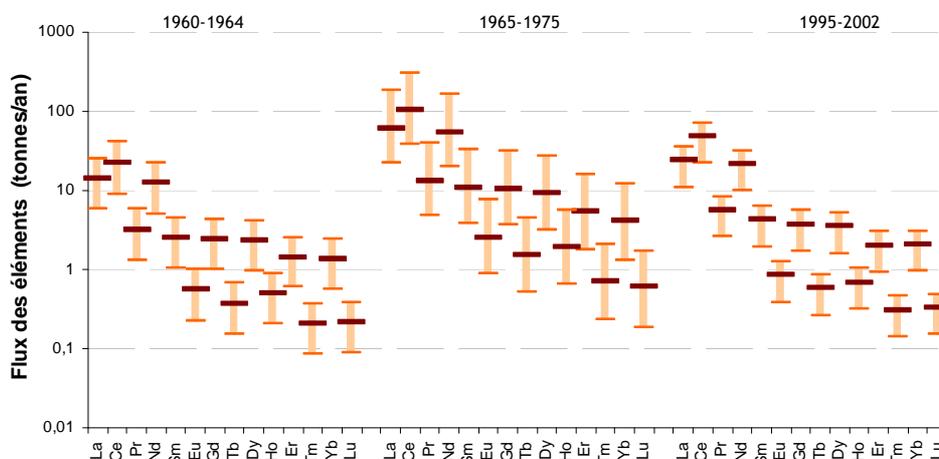


Figure 152 : Flux moyens annuels des différentes terres rares au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002.

La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Pour synthétiser, sur l'ensemble des données de ce paragraphe 5.2.3, on remarque globalement des variations notables des flux au cours du temps pour un site donné ; elles sont liées d'une part aux concentrations fluctuantes des concentrations des différents éléments dans les MES, et d'autre part à l'évolution des débits solides de la Seine au cours du temps. Audry et al. (2004) ont fait le même constat sur la Garonne, en observant que les flux de contaminants étaient plus élevés lors des années humides. Les flux calculés ici concernent uniquement la fraction particulaire des éléments. La fraction dissoute, bien que connue pour être moindre (Priadi et al., 2010), est certainement plus élevée à

certaines périodes.

Entre les deux sites d'étude, les principaux écarts observés dans les calculs de flux sont expliqués par les rejets de phosphogypses dans la région rouennaise. Les flux de métaux liés à ces rejets, tels que calculés dans ce travail, présentent une incertitude due à la proximité du site de carottage par rapport au point de rejets.

5.2.4. Les radionucléides

Les flux de ^{40}K sont relativement constants au cours du temps et présentent des valeurs proches d'un site à l'autre. On remarque des valeurs en moyenne plus élevées au cours de la période récente du fait des débits solides plus élevés.

Le ^{137}Cs présente des flux moyens en constante diminution au cours du temps : 47 250 $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ en moyenne au début des années 1960 à 9010 $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ à la fin des années 1990 sur le site de Bouafles ; les valeurs sont similaires au niveau de la Darse des Docks (Figure 153 et Figure 154). Les retombées atmosphériques des essais nucléaires des années 1960 marquent considérablement les flux particuliers de ^{137}Cs , alors que les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl, arrivant à une période de débits solides moyens du fleuve, les marquent peu. Durant la période la plus récente, malgré de forts débits solides, les teneurs de ^{137}Cs dans les sédiments sont suffisamment faibles pour faire baisser les flux.

A titre de comparaison, les apports annuels de ^{137}Cs par le Rhône entre 2006 et 2008 sont de 41 000 $\text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$ (Marion, 2010), donc largement supérieurs à ceux qu'on évalue dans la Seine de 1995 à 2002, qui sont d'environ 10 000 $\text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$. L'importance de ces flux s'explique par le nombre des installations nucléaires implantées sur le bassin versant du Rhône.

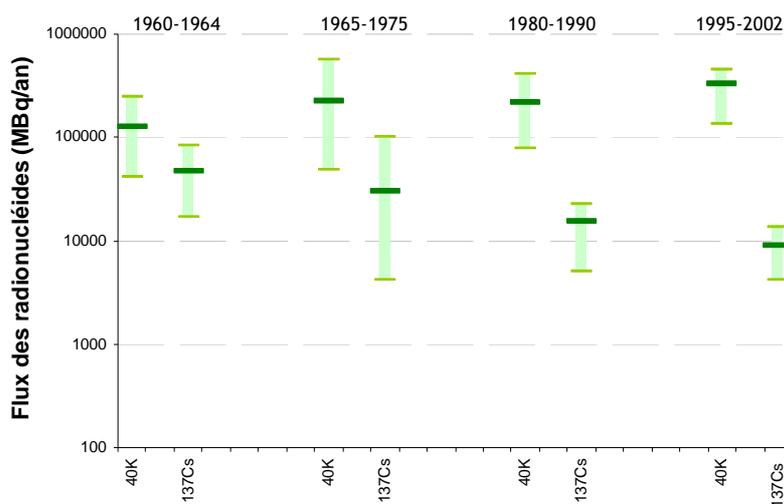


Figure 153 : Flux moyens annuels de ^{40}K et de ^{137}Cs au niveau de Bouafles pendant 4 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002 ; exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$.

Le ^{137}Cs prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

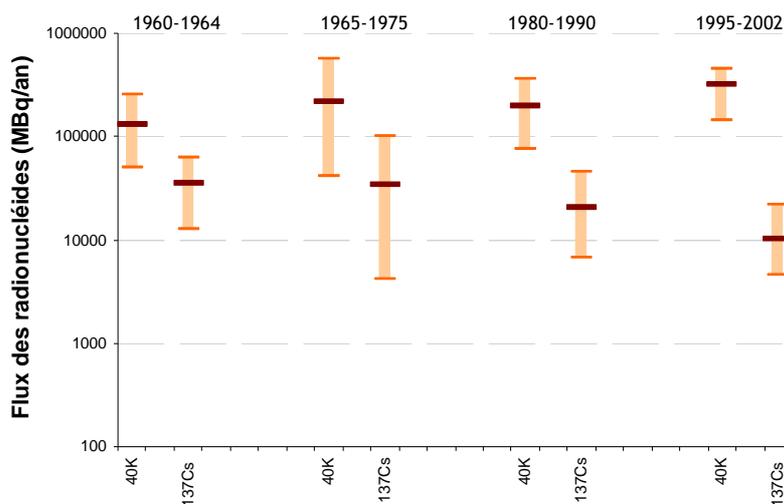


Figure 154 : Flux moyens annuels du ^{40}K et du ^{137}Cs au niveau de la Darse des Docks pendant 4 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002 ; exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$.

Le ^{137}Cs prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments.

La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Nous avons comparé les flux de ^{137}Cs présentés sur les Figure 153 et Figure 154 avec les flux de dépôt atmosphérique annuels de ^{137}Cs sur l'ensemble du bassin versant de la Seine (calculs effectués à partir de données fournies par le LMRE, IRSN ; Chapitre VIII). Durant la période 1960-1964, ces flux sont estimés à environ $26\,400\,000\ \text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ déposés sur l'ensemble du bassin versant ; les flux transitant dans la Seine à cette époque sont de l'ordre de $40\,000\ \text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. Ces derniers ne représentent donc qu'un très faible pourcentage ($<1\%$), de la totalité des dépôts. La proportion entre entrée et sortie reste la même pour les périodes 1965-1975 et 1980-1990 (Tableau 12). Au cours de ces périodes, les apports en ^{137}Cs au bassin versant sont relativement importants, alors que de 1995 à 2002, ils deviennent négligeables ; les entrées sont du même ordre de grandeur que les sorties. On en déduit donc que les apports atmosphériques au bassin versant de la Seine y restent en grande partie et que la fraction lessivée est très minoritaire. Les travaux de Le Cloarec et al. (2007) visant à évaluer le temps de résidence des contaminants dans le compartiment sol du bassin versant de la Seine aboutissent à la même conclusion. Durant la période récente, les apports anciens en ^{137}Cs stockés sur le bassin versant continuent d'être apportés progressivement au fleuve. Nous tenterons d'extraire les caractéristiques de ce lessivage au chapitre VIII.

Tableau 12 : Comparaison entre l'activité en ^{137}Cs entrant sur le bassin versant et celle sortant (flux de la Seine).

Période	Activité moyenne ^{137}Cs déposé sur le bassin versant ($\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$)	Flux moyen de ^{137}Cs au niveau de Bouafles ($\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$)	Flux moyen de ^{137}Cs au niveau de la Darse des Docks ($\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$)	Flux sortant / Flux de dépôt
1960-1964	26400000	47300	34800	0,16
1965-1975	6150000	30200	33900	0,52
1980-1990	6760000	15400	20400	0,26
1995-2002	8000	9000	10200	120

Les flux de radionucléides de la chaîne du ^{232}Th (Figure 155 et Figure 156) sont similaires pour

une période donnée d'un site à l'autre, sauf pour la période 1965-1975 où les flux calculés sont légèrement supérieurs sur le site de la Darse des Docks, à cause des rejets de phosphogypses des années 1970 au niveau de l'agglomération de Rouen. Cependant, la différence entre les deux sites reste faible. Les forts débits solides de la Seine entre 1995 et 2002 tendent à faire augmenter les flux des différents radionucléides.

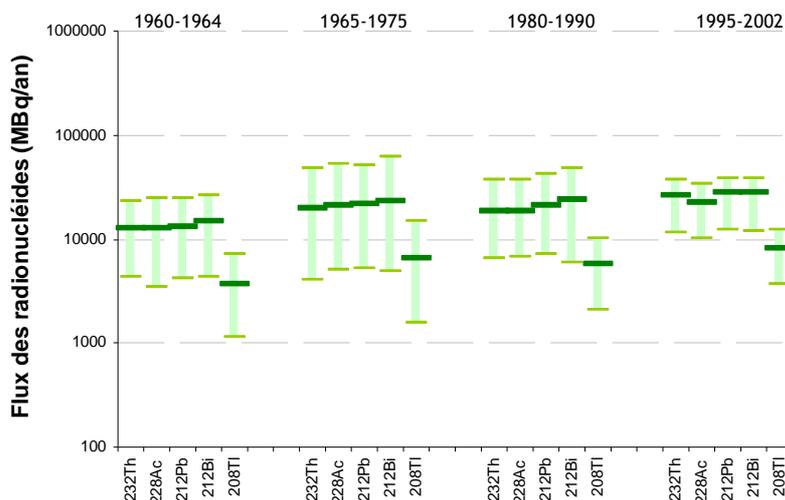


Figure 155 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{232}Th au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

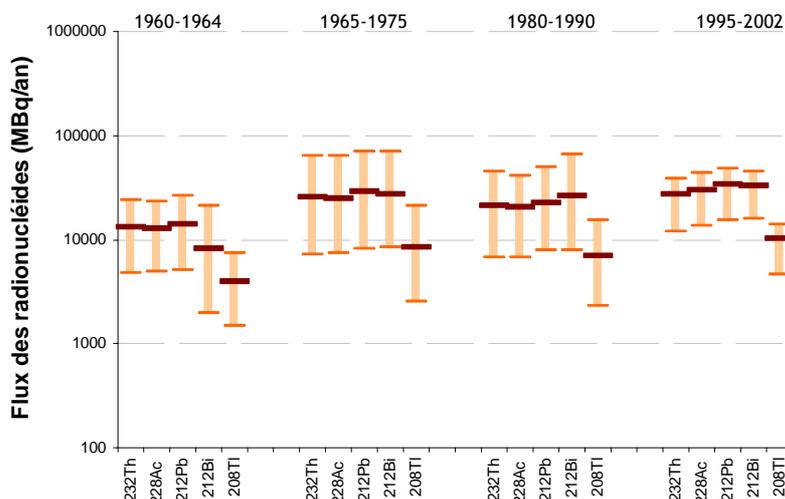


Figure 156 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{232}Th au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

L' ^{235}U présente des flux significativement plus faibles au niveau du site de Bouafles (Figure 157), relativement constants, mais avec toujours une augmentation lors de la période la plus récente. Le ^{227}Th n'est pas détecté sur ce site. Les flux particuliers en ^{235}U sont plus élevés et plus variables au niveau de la Darse des Docks (Figure 158), où l'on observe une augmentation au cours de la période

des rejets maximaux de phosphogypses (alors que le ^{227}Th est également détecté).

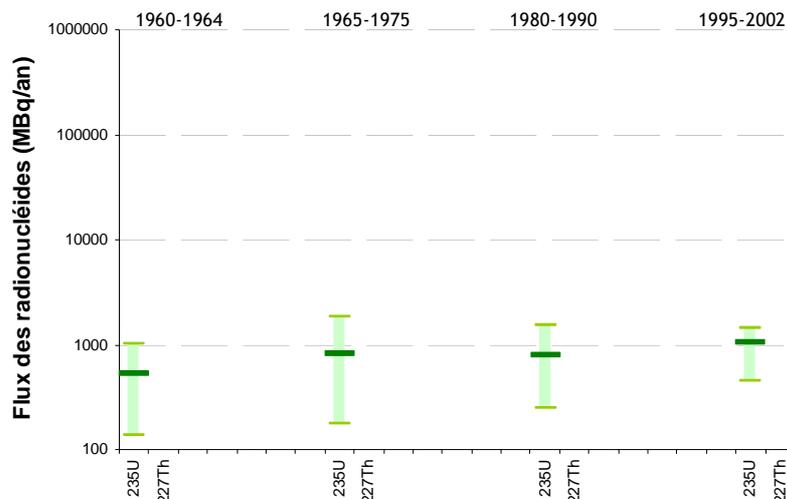


Figure 157 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{235}U au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

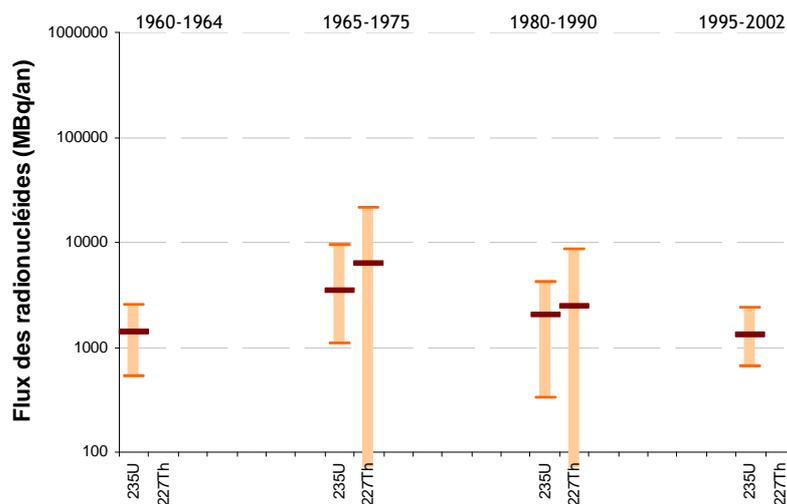


Figure 158 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{235}U au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Les radionucléides de la chaîne de ^{238}U représentent des flux très différents selon les sites. A Bouafles, ils sont globalement stables, avec une légère augmentation au cours de la période 1995-2002 (Figure 159). Au niveau de la Darse des Docks, ils sont nettement marqués par les rejets de phosphogypses : particulièrement forts pendant la période 1965-1975, ils restent élevés durant la période 1980-1990 (Figure 160).

Le ^{210}Pb et le ^{234}Th présentent des flux annuels moindres dans la Seine que dans le Rhône, soit respectivement $54\,000$ et $18\,000\ \text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$ entre 1995 et 2002, contre $277\,000$ et $99\,000\ \text{GBq}\cdot\text{an}^{-1}$ de 2006 à 2008 (Marion, 2010). Le Rhône présente des débits solides beaucoup plus élevés que dans la Seine, de l'ordre de $10,2\ 10^6\ \text{T}\cdot\text{an}^{-1}$, ce qui explique en partie seulement ces différences de flux. A

noter que durant la période de rejets des phosphogypses, les flux annuels de ces deux radionucléides dans la Seine ont été comparables aux flux annuels actuels dans le Rhône. La Seine est donc actuellement moins soumise aux rejets radioactifs d'industries nucléaires que le Rhône.

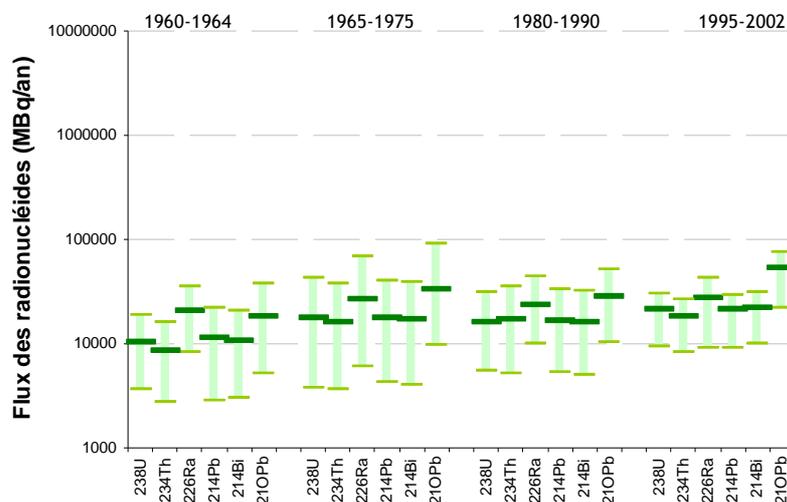


Figure 159 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{238}U au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

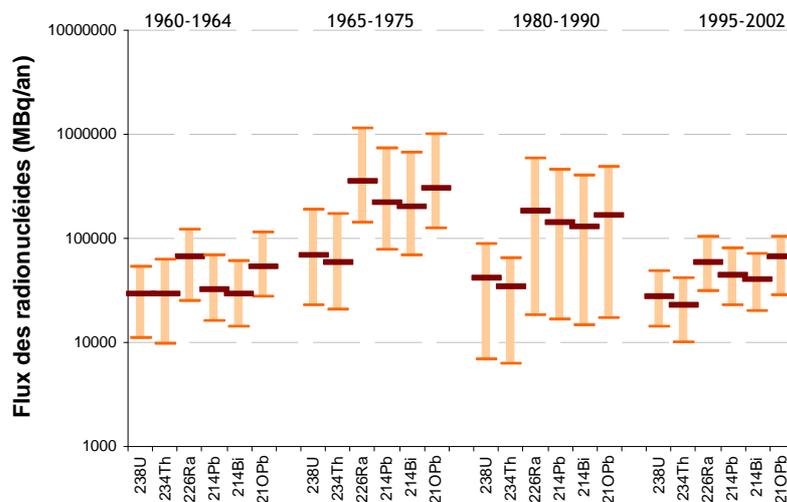


Figure 160 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{238}U au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Le $^{239,240}\text{Pu}$ présente des flux maximaux durant la période 1960-1964, qui diminuent ensuite régulièrement au cours du temps passant de valeurs de l'ordre de $2000 \text{ MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ à $180 \text{ MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ (Figure 161 et Figure 162). Les flux du $^{239,240}\text{Pu}$ sont logiquement semblables sur les deux sites.

Les flux de ^{238}Pu sont maximaux durant les périodes 1965-1975 et 1980-1990, avec des valeurs moyennes de l'ordre de $120 \text{ MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. Les flux de ^{238}Pu calculés sont légèrement supérieurs à Bouafles par rapport à la Darse des Docks, alors que l'anomalie de ^{238}Pu est moins bien enregistrée sur

le premier site. La bioturbation observée dans la plaine alluviale de Bouafles engendre une décroissance lente des activités de ^{238}Pu dans les sédiments carottés à la suite du rejet : si, pour ces niveaux postérieurs à 1975, les débits solides correspondant sont plus importants, alors les flux moyens calculés sur cette période seront plus élevés à Bouafles. Le calcul des flux de cet élément doit être pris avec précaution pour le site de Bouafles.

L' ^{241}Am présente des flux particulaires analogues sur les deux sites. Pour les périodes 1960-1964 et 1965-1975, les valeurs sont de l'ordre de 200 $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ au niveau de la Darse des Docks et de 250 $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ au niveau de Bouafles. Par la suite, les flux sont de l'ordre de 80 $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$ sur les deux sites.

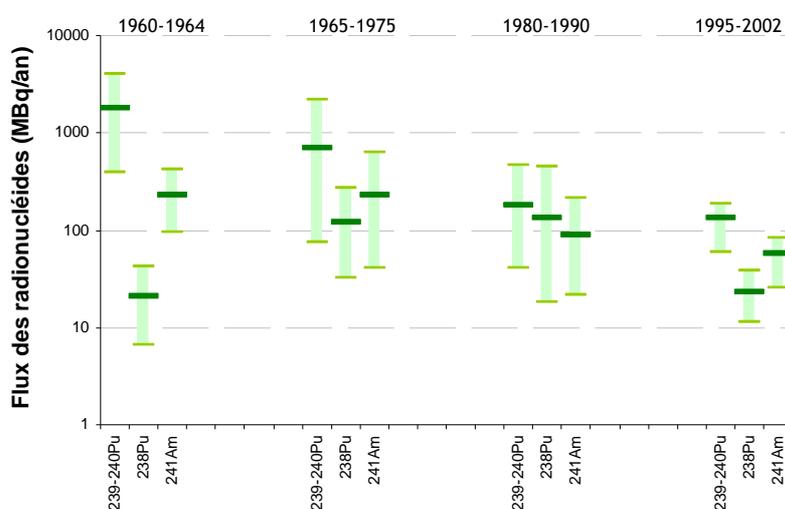


Figure 161 : Flux moyens annuels des radionucléides émetteurs α au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$.

Le ^{238}Pu prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments.

La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.

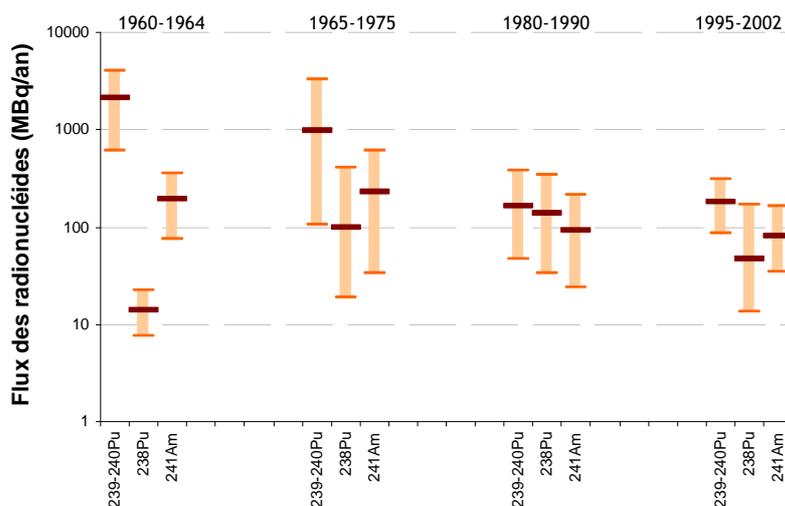


Figure 162 : Flux moyens annuels des radionucléides émetteurs α au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$.

Le ^{238}Pu prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments.

La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.

Pour synthétiser, les flux des radionucléides artificiels (^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am) présentent globalement les mêmes fluctuations dans le temps sur les deux sites. Les activités fluctuantes dans les sédiments marquent de façon notable ces flux. Seule une très faible proportion des radionucléides issus de dépôts atmosphériques parvient jusqu'au fleuve. Les flux des radionucléides d'origine naturelle sont essentiellement régis par la fluctuation des débits solides tels qu'identifiés sur le site de Bouafles, alors que les rejets de phosphogypses impactent ces mêmes flux, tel qu'en témoignent les sédiments carottés dans la Darse des Docks. De ce fait, tout comme pour les éléments stables, les flux calculés pour les radionucléides impactés par les rejets de phosphogypses sont certainement surestimés au moment de ces rejets.

6. Conclusion

Les carottes sédimentaires que nous avons étudiées constituent bien une archive représentative des MES ayant transité dans la Seine au cours du temps ; leurs datations bien contraintes permettent donc d'estimer les flux de contaminants ayant transité dans la zone des sites de prélèvement au cours du temps : aval de la Seine fluviale et amont de l'estuaire. Les flux calculés ici présentent toutefois des incertitudes, en particulier au niveau de la Darse des Docks pour la période de rejets des phosphogypses. Cependant, ils permettent de construire les évolutions de la contamination et de mettre en évidence les différences entre la Seine fluviale et l'estuaire fluvial de la Seine ; elles sont dues (1) aux rejets intra-estuariens de phosphogypses, (2) à la perturbation biologique (bioturbation) présente dans les sédiments consolidés de Bouafles qui perturbe le signal. Les flux sont fortement régis par les fluctuations du débit solide de la Seine, ce qui nous a amenés à confirmer que la part d'éléments dissous est certainement variable en fonction de la disponibilité du matériel particulaire. Les flux annuels de quelques métaux ont déjà été calculés dans la Seine sur des périodes de temps plus courtes. Les résultats produits ici sont généralement du même ordre de grandeur que ceux obtenus dans les études antérieures, même si l'on observe quelques disparités, généralement liées à la méthode de calcul. Les sources de radionucléides artificiels étant majoritairement situées en amont du site de Bouafles, on observe des flux similaires entre le fleuve Seine et son estuaire fluvial. Pour les radionucléides d'origine naturelle, les activités sont influencées par les rejets de phosphogypses dans les années 1970 aux environs de Rouen : on observe donc des flux plus élevés dans l'estuaire fluvial par rapport au fleuve, tout comme pour certains métaux.

Nous obtenons donc ici un historique d'une quarantaine d'années des flux particuliers qui représentent un pourcentage variable du flux total d'un grand nombre de contaminants ayant transité dans la Seine fluviale puis dans l'estuaire fluvial de la Seine ; c'est la première fois, pour autant d'éléments stables et radioactifs, et sur une aussi longue période.

CHAPITRE VI :
Détermination de la contribution respective
des apports amont et intra-estuariens
à la contamination
de l'estuaire fluvial de la Seine

1. Introduction

Dans l'estuaire fluvial de la Seine (Darse des Docks), les contaminants métalliques et les radionucléides peuvent provenir :

- du bassin versant de la Seine à l'amont de Poses : sources agricoles, industrielles, urbaines...
- du bassin versant intra-estuarien : rejets directs à l'estuaire de la Seine, ruissellement et apport des affluents (Eure, Andelle, Austreberthe, ...)

Dans une moindre mesure, la mer peut représenter une source possible de contaminants, ces derniers pouvant pénétrer dans l'estuaire sous l'action de la marée, phénomène que nous étudierons dans le chapitre VII.

Dans ce chapitre, nous distinguerons dans un premier temps, les apports amont des apports intra-estuariens en comparant les séries temporelles des sites de la Darse des Docks et de Bouafles. Les sources de contaminants dans le bassin versant de la Seine ont été identifiées par les études du programme scientifique PIREN-Seine ; nous rappellerons donc celles présentes en amont de Poses, puis nous étudierons les apports internes à l'estuaire. Comme nous avons pu le voir dans le chapitre II de ce mémoire, les rejets de phosphogypses ont considérablement marqué les sédiments de l'estuaire fluvial dans les années 1970 : nous chercherons à identifier et quantifier ces rejets en s'appuyant à la fois sur des données historiques et sur les mesures de contaminants que nous avons effectuées sur les carottes que nous avons prélevées. Enfin, grâce à ces données, nous tenterons de quantifier le temps de résidence des particules dans l'estuaire fluvial de la Seine.

2. Détermination de la contribution respective des apports amont et intra-estuariens à la contamination de l'estuaire fluvial de la Seine

L'objectif de ce paragraphe est de discriminer les origines, amont ou intra-estuarienne, des différents éléments stables et radionucléides mesurés dans les carottes de Bouafles et de la Darse des Docks.

2.1. Méthodologie

Dans un premier temps, afin de pouvoir comparer les données du site de Bouafles et de la Darse des Docks, les données sont ré-échantillonnées afin d'obtenir des séries datées avec un pas de temps de 0,1 an. Afin de conserver les données réellement mesurées, ces dernières sont rattachées au dixième d'année le plus proche de leur date initiale.

Pour s'affranchir des effets de la granulométrie entre les sites et dans le temps, les données sont toutes normalisées à l'Al. Pour faciliter la lecture des valeurs, les concentrations sont rapportées à une

concentration moyenne en Al de 3,8 %, concentration moyenne en Al des sédiments de la Darse des Docks, selon la formule suivante :

$$E_{norm.Al} = \frac{E}{Al} \times Al_{moy} \quad \text{Équation 12}$$

$E_{norm.Al}$: teneur normalisée à l'Al de l'échantillon en l'élément E

E : teneur brute de l'échantillon en l'élément E

Al : teneur en Al de l'échantillon

Al_{moy} : moyenne de la teneur en Al des échantillons de la Darse des Docks, soit 3,8 %

Ensuite, pour éviter d'avoir un trop grand nombre de données, mais aussi d'avoir un signal trop bruité, les données obtenues sont moyennées sur un pas de temps annuel. Nous pouvons maintenant représenter les données des sites de la Darse des Docks et de Bouafles sur un même graphique, ce qui permettra d'effectuer une comparaison visuelle précise.

2.2. Comparaison des séries temporelles de concentration des éléments stables entre les sites de Bouafles et de la Darse des Docks

La Figure 163 représente les teneurs en éléments majeurs et en Li sur les sites de la Darse des Docks et de Bouafles. La comparaison met en évidence les particularités de chacun des sites.

Certains des éléments étudiés présentent des teneurs particulièrement stables sur les deux sites d'étude : le Fe, le Mg, le K, le Ti et le Li. Les séries temporelles d'autres restent très stables sur le site de Bouafles, mais sont en revanche plus variables sur le site de la Darse des Docks, en particulier de 1990 à 2000 ; il s'agit du Si, du Mn, du Na, du Ca et du P. Rappelons qu'à cette époque, la Darse des Docks change de régime hydrosédimentaire : son comblement engendre une émergence régulière de la surface des sédiments en étiage. Les apports ne se font donc presque exclusivement en forts débits (crue), ce qui peut changer la nature du matériel sédimentaire et notamment les teneurs en Al qui se révèlent légèrement plus basses et surtout plus variables à cette époque. La normalisation à l'Al apporte donc un peu de variation sur les séries temporelles des éléments considérés pour cette période.

Les séries temporelles du Ca sont variables et différentes sur les deux sites. Les excès de Ca observés à La Darse des Docks sont dus à des apports entre Poses et Rouen : les fonds du chenal de la Seine à Rouen sont creusés dans du tuf carbonaté d'âge holocène (Lesueur et al., 1999).

Les teneurs en P présentent des disparités fortes d'un site à l'autre ; en 1973, elles sont 5 fois plus importantes sur le site de la Darse des Docks que sur le site de Bouafles. Comme nous l'avons déjà vu, ces fortes valeurs sont associées aux rejets de phosphogypses de deux usines rouennaises. Nous quantifierons la contribution de ces rejets dans le paragraphe 4.5. Le P présente également des valeurs assez élevées entre 1990 et 2000 au niveau de la Darse des Docks ; elles ne sont pas liées *a priori* à

des rejets de phosphogypses, mais plus certainement à des variations de la minéralogie des sédiments : elles s'accompagnent d'ailleurs d'une variation parallèle des teneurs en Ca.

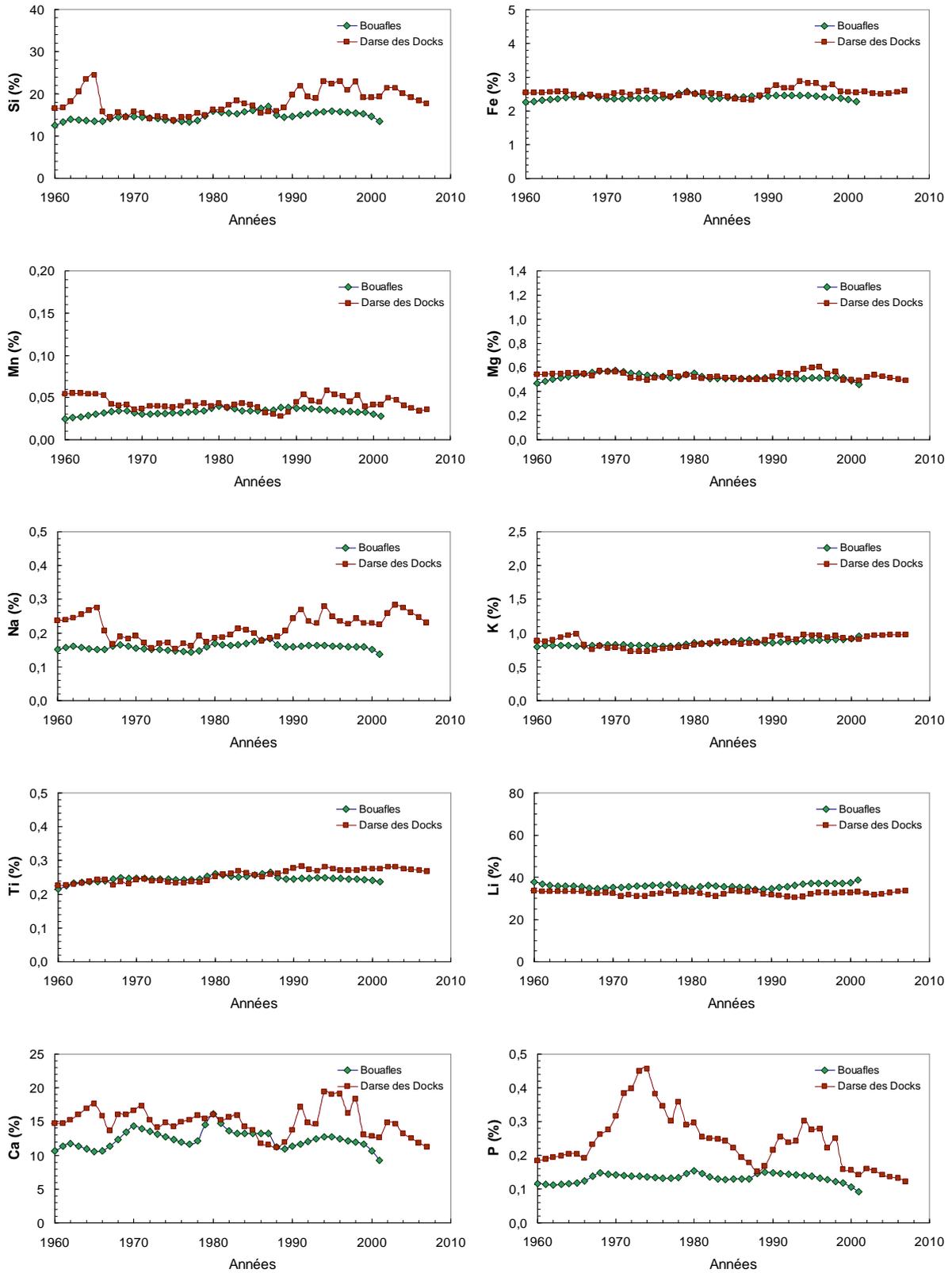


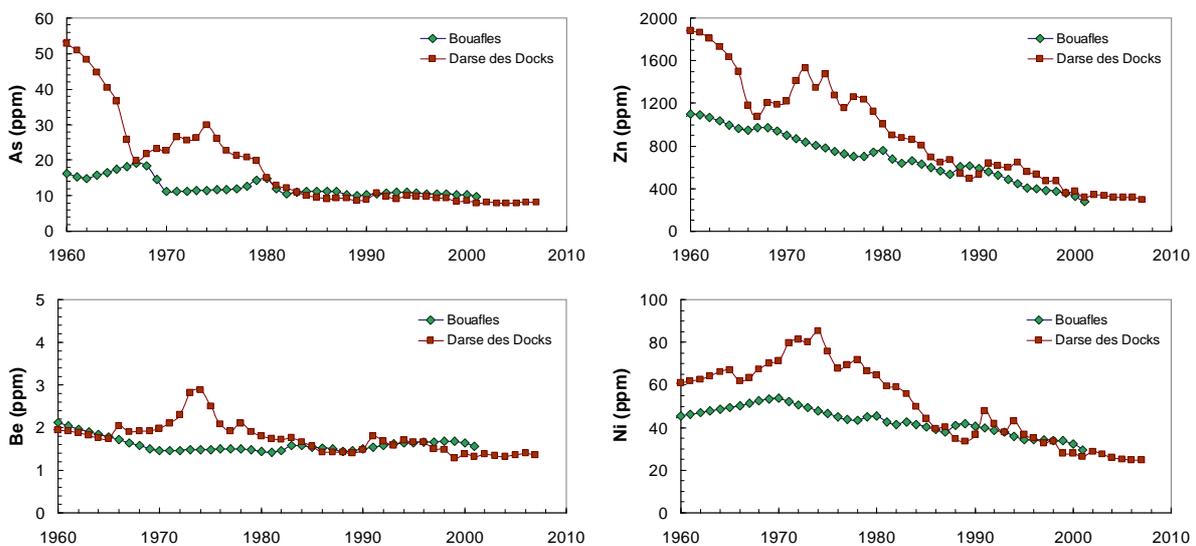
Figure 163 : Séries temporelles des teneurs en éléments majeurs recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al, pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron).

Les séries temporelles de la Darse des Docks présentent pour l'ensemble des éléments considérés des teneurs plus fluctuantes dans le temps que celles de Bouafles. Cette observation est très certainement à mettre en relation : (1) avec les taux de sédimentation très différents sur les deux sites, l'important taux de sédimentation dans la Darse des Docks permet une plus grande précision des mesures ; (2) la bioturbation sur le site de Bouafles tend à homogénéiser le sédiment et à lisser le signal.

La Figure 164 présente les séries temporelles des éléments dont les teneurs ont été grandement influencées par les rejets de phosphogypses dans la région rouennaise. On peut y distinguer deux groupes d'éléments :

- Les éléments correspondant à des apports anthropiques issus uniquement des rejets de phosphogypses. Ils présentent des teneurs très stables à Bouafles, alors que la série temporelle est perturbée par un pic de concentration centré sur 1974 à la Darse des Docks : il s'agit de Be, Th, Y et U.
- Les autres éléments montrés sur cette figure présentent déjà tous une contamination sur le site de Bouafles ; les rejets de phosphogypses viennent donc augmenter les teneurs. Les rejets de phosphogypses à la Seine ayant été très importants, le pic de concentration autour de 1974 reste très visible sur toutes les séries temporelles. Les contaminations en provenance du bassin versant amont, visibles sur le site de Bouafles, sont plus ou moins importantes selon les éléments. Ainsi, on remarque des teneurs particulièrement élevées en Cu, Cd et Bi.

Au paragraphe 4.5, nous quantifierons pour chaque élément, la part due aux rejets de phosphogypses à partir des données présentées ici.



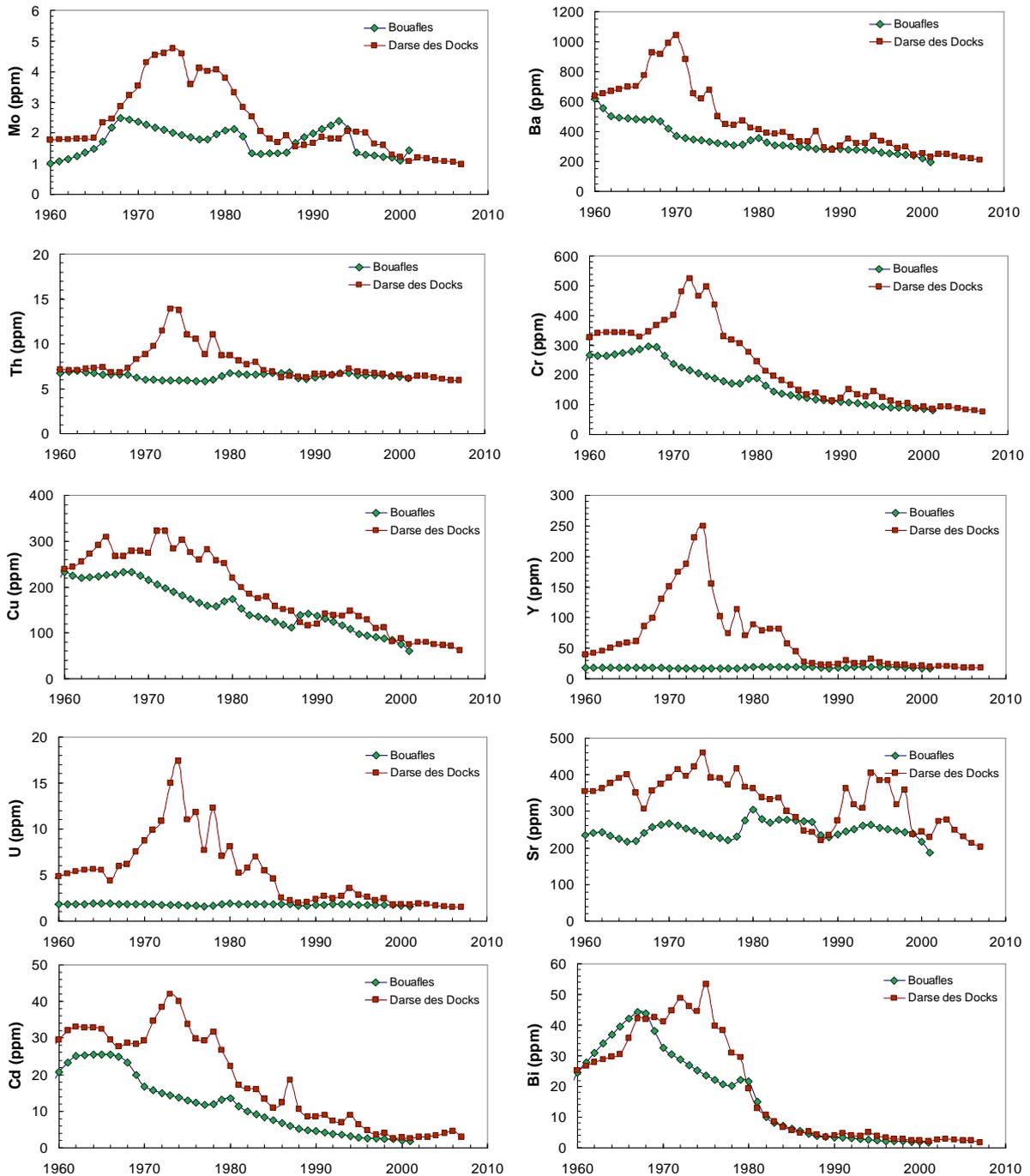


Figure 164 : Séries temporelles des teneurs en éléments-traces concernés par les rejets de phosphogypses dans la région rouennaise. Sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron).
Les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.

La Figure 165 présente les séries temporelles des éléments dont les teneurs sont peu variables dans le temps dans les sédiments des deux sites d'étude. Les concentrations de certains d'entre eux sont très stables sur les deux sites : Rb, Nb, Cs et Ta. D'autres éléments ont des teneurs très stables à Bouafles, mais plus variables à la Darse des Docks : V, Co, Ge et Ga. Pour ces quatre éléments, l'influence des rejets de phosphogypses est suspectée. Si Co et V font partie des éléments habituellement identifiés dans les phosphogypses ; ce n'est pas le cas du Ge et du Ga, le Ga étant même considéré comme appauvri dans la composition des phosphogypses par rapport à la référence

shales (Rutherford et al., 1994). Enfin, Zr et Hf présentent une évolution temporelle assez singulière : teneurs stables jusqu'en 1990, teneurs plus élevées après 1990. Cela est à mettre en relation avec l'abondance de Si, et d'une fraction sableuse plus abondante comportant des minéraux lourds porteurs de ces éléments (zircon...). Cette singularité pourrait également tracer un changement de fonctionnement des sources en matériel particulaire contribuant à la sédimentation dans la Darse, en lien avec son émergence en étiage à basse mer de plus en plus fréquente.

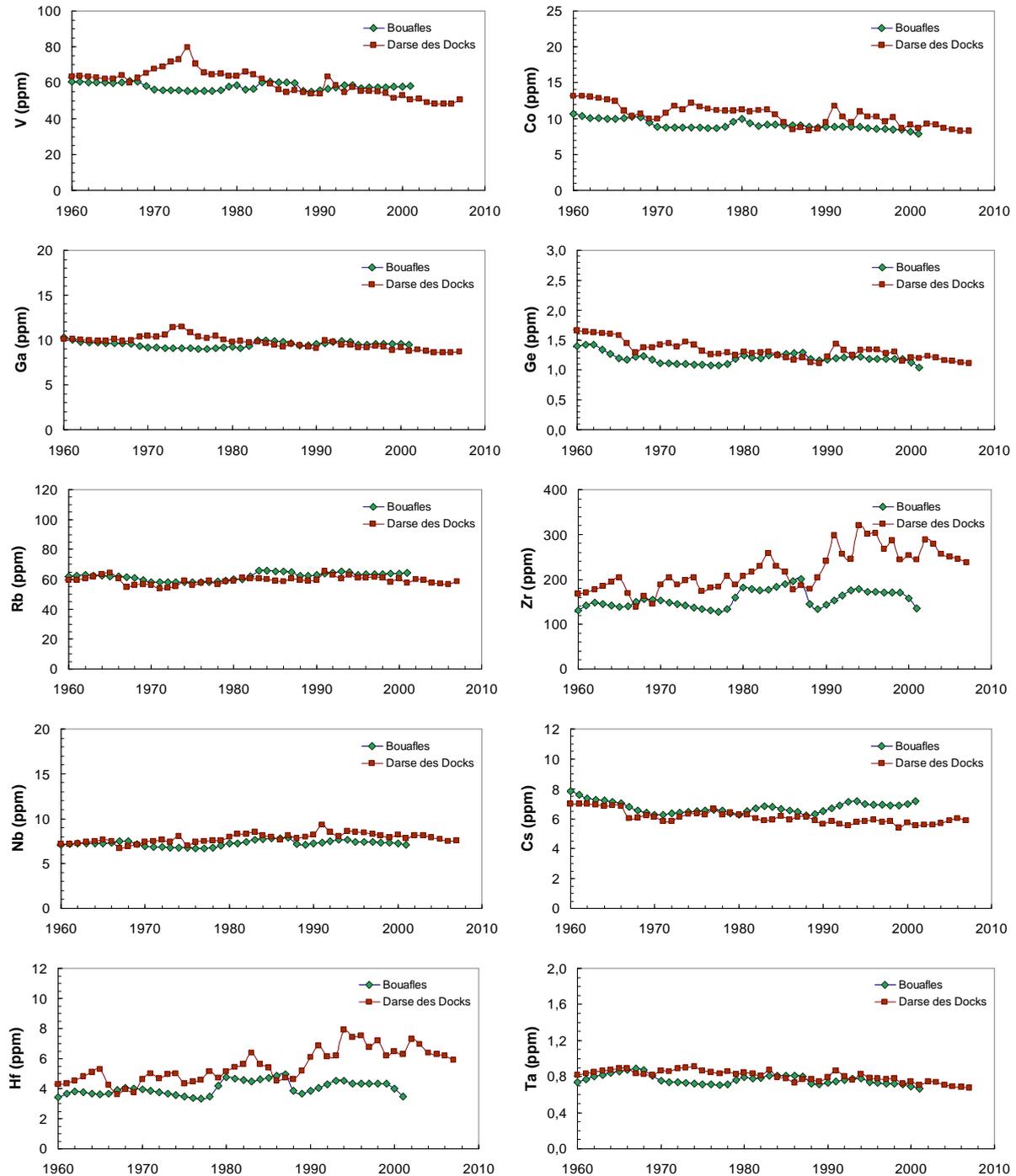


Figure 165 : Séries temporelles des teneurs des éléments-traces présentant des teneurs non enrichies ou peu enrichies par rapport aux shales. Sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron).
Les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.

La Figure 166 présente les séries temporelles des éléments dont les teneurs sont en constante décroissance au cours du temps. Toutes ces séries temporelles présentent de surcroît, un pic de concentration plus ou moins important dans les années 1970 sur le site de la Darse des Docks, dû aux rejets de phosphogypses. En dehors de ce pic, les graphes sont comparables sur les deux sites pour les éléments suivants : Sn, Sb, W, et Ag.

As, Zn et Pb présentent quant à eux des valeurs plus élevées au début des années 1960 à la Darse des Docks qu'à Bouafles. Ceci souligne l'existence d'une autre contamination un peu plus ancienne que celle des phosphogypses dans le bassin versant intra-estuarien amont, ayant marqué les sédiments au début des années 1960.

Nous allons maintenant nous intéresser aux radionucléides selon le même principe.

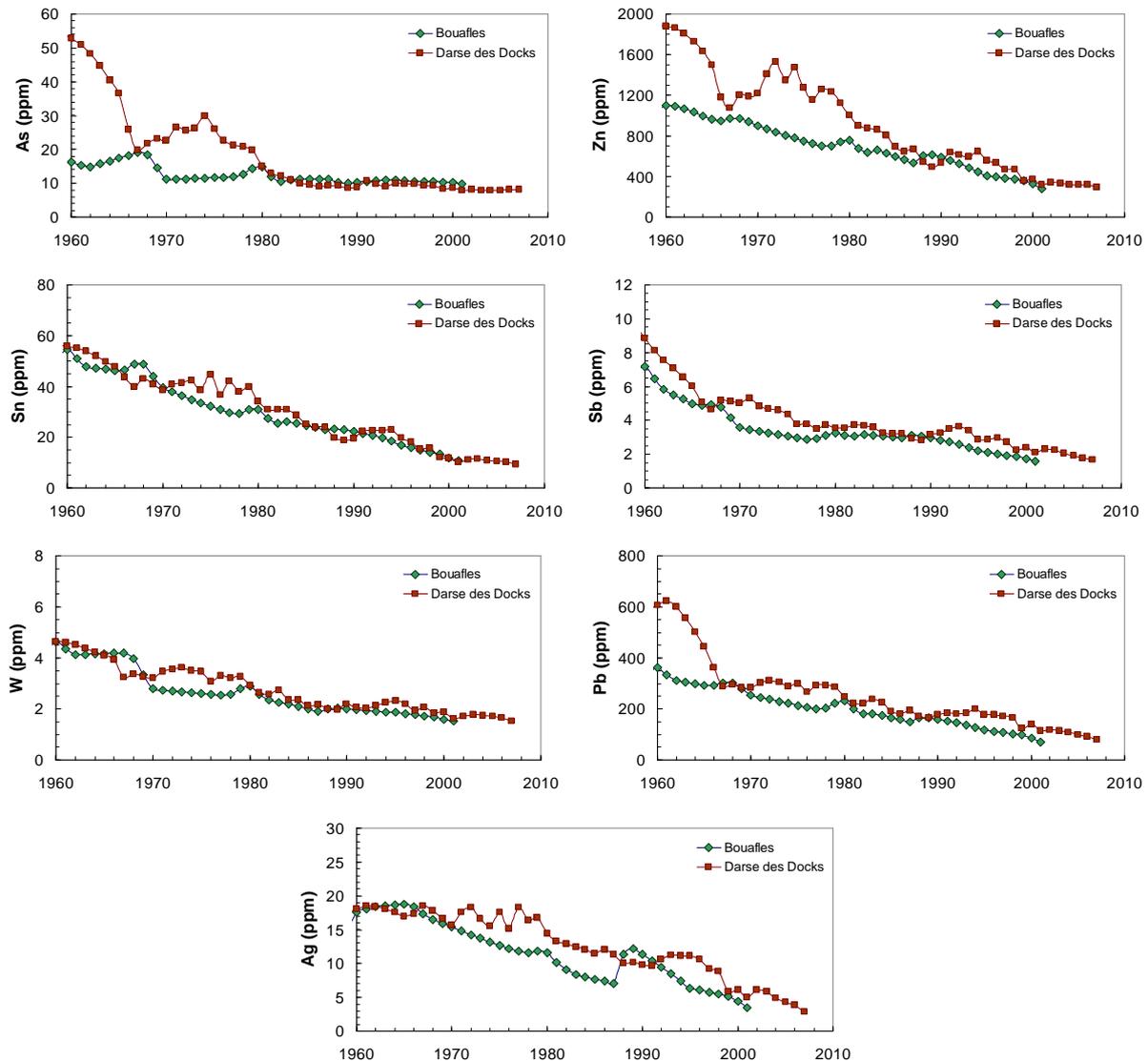


Figure 166 : Séries temporelles des teneurs des éléments-traces présentant des teneurs en décroissance constante pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron).
Les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.

2.3. Comparaison des séries temporelles des activités des radionucléides entre les sites de Bouafles et de la Darse des Docks

2.3.1. Radionucléides émetteurs gamma d'origine artificielle : le ^{137}Cs

La Figure 167 représente l'évolution temporelle des concentrations en ^{137}Cs des sites de Bouafles et de la Darse des Docks.

Les profils diffèrent au niveau des pics d'activité :

- dans les années 1960, le signal enregistré sur le site de Bouafles correspond à des activités plus fortes que le signal enregistré dans la Darse des Docks. Pour rappel, il existe un hiatus sédimentaire correspondant à cette période dans la carotte de la Darse des Docks et il est possible que le maximum d'activité n'ait pas été préservé.
- le pic consécutif à l'accident de Tchernobyl (1986) est au contraire mieux enregistré à la Darse des Docks qu'à Bouafles pour deux raisons déjà évoquées : (1) les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl ayant eu lieu après la crue de 1986, le site de Bouafles n'a pu recevoir les apports de ^{137}Cs qu'en 1987 ; (2) les sédiments de Bouafles sont soumis à une bioturbation qui lisse le signal et l'étale dans le temps. En dehors de ces deux pics, les profils d'activité des deux sites sont quasi superposables.

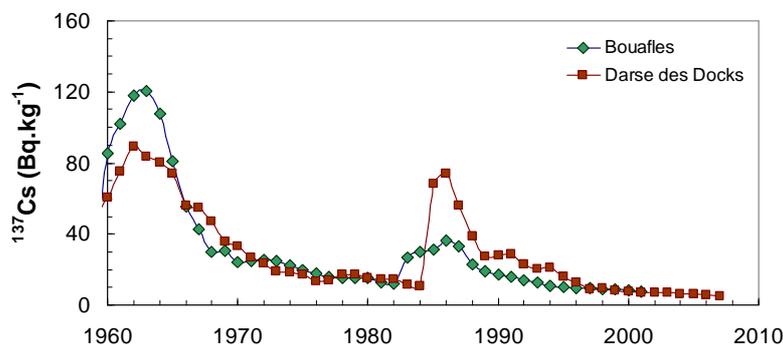


Figure 167 : Séries temporelles de l'activité du ^{137}Cs pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron) ; les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al ; le ^{137}Cs a été corrigé de la décroissance depuis le dépôt.

2.3.2. Radionucléides émetteurs gamma d'origine naturelle

La Figure 168 présente les séries temporelles de trois radionucléides naturels représentant chacun une famille différente : ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th . Ces séries temporelles sont stables à Bouafles, tandis qu'elles affichent un pic principal d'activité centré sur les années 1973-1974 à la Darse des Docks, épaulé par des pics secondaires s'étalant de 1968 à 1985. Cette activité est encore une fois à associer aux rejets de phosphogypses. Toutefois avant 1968, les séries de Bouafles et de la Darse des Docks ne sont pas confondues : les rejets de phosphogypses existaient déjà avant les années 1970, mais en quantités beaucoup plus faibles (Paragraphe 4.3). Après 1985, les valeurs des deux sites sont confondues hormis pour les années 1990, où une légère augmentation d'activité est observée à Rouen.

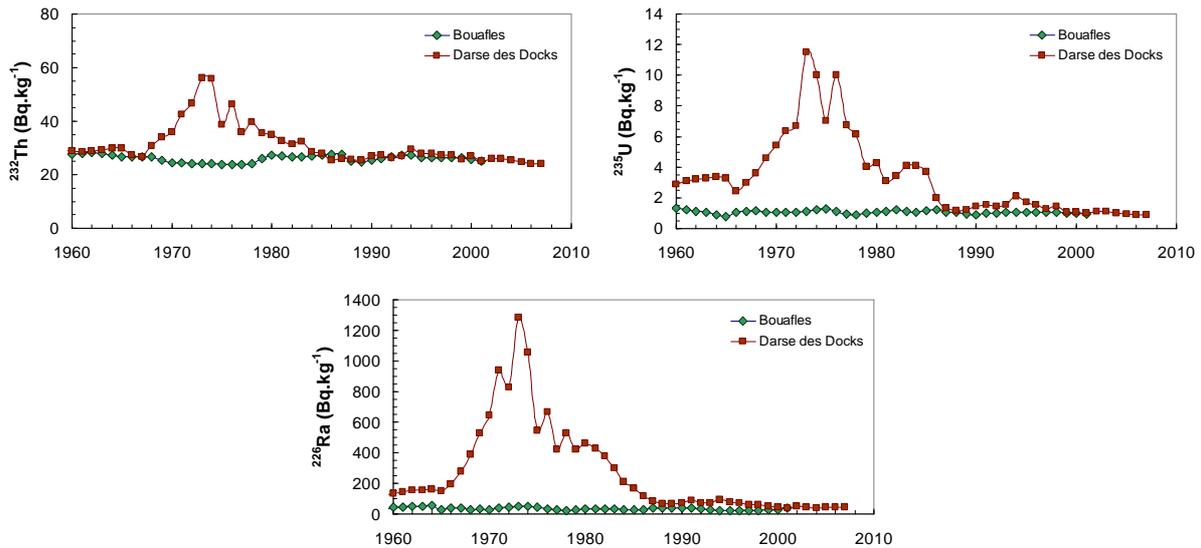


Figure 168 : Séries temporelles de l'activité de 3 radionucléides naturels ^{232}Th , ^{235}U et ^{226}Ra sur les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron) ; les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.

2.3.3. Radionucléides émetteurs alpha d'origine artificielle

La Figure 169 présente les séries temporelles de trois radionucléides artificiels émetteurs alpha. Les séries temporelles de l'activité du $^{239,240}\text{Pu}$ sont caractérisées par un pic très prononcé au début des années 1960 sur les deux sites d'étude. Ce pic est en relation avec les retombées atmosphériques des essais nucléaires de 1960 ; on remarque toutefois que son maximum n'est pas strictement contemporain de celui du ^{137}Cs . Une installation nucléaire de la région parisienne a rejeté des radionucléides émetteurs alpha au début des années 1960. Le pic observé ici n'est donc pas totalement représentatif des retombées atmosphériques des essais nucléaires.

Les séries temporelles du ^{238}Pu des deux sites sont marquées par un rejet ponctuel d'une installation nucléaire de la région parisienne ayant eu lieu au cours de l'année 1975. L'étalement du pic à Bouafles est dû à la bioturbation des sédiments.

Les séries temporelles de l' ^{241}Am indiquent sur les deux sites un pic d'activité à l'époque des retombées atmosphériques des essais nucléaires. Les plus faibles activités sur le site de la Darse des Docks par rapport au site de Bouafles peuvent s'expliquer par le défaut d'enregistrement sédimentaire au premier site, comme montré pour le ^{137}Cs .

Pour les trois radionucléides représentés ici, deux petits pics d'activités sont identifiés dans les années 1990. A peine visibles avec les données brutes, ils sont accentués par la normalisation à l'Al. A noter que l'on observe également la présence de ces deux petits accroissements sur la série temporelle du Cs, ainsi que sur un grand nombre d'éléments stables et, en moindre mesure, sur les radionucléides d'origine naturelle. Ces activités plus fortes peuvent provenir à cette époque : (1) d'une remise en suspension de matériel un peu plus ancien, (2) de changements dans les conditions hydrologiques du système, engendrant des modifications dans la nature et la composition des sédiments concernés.

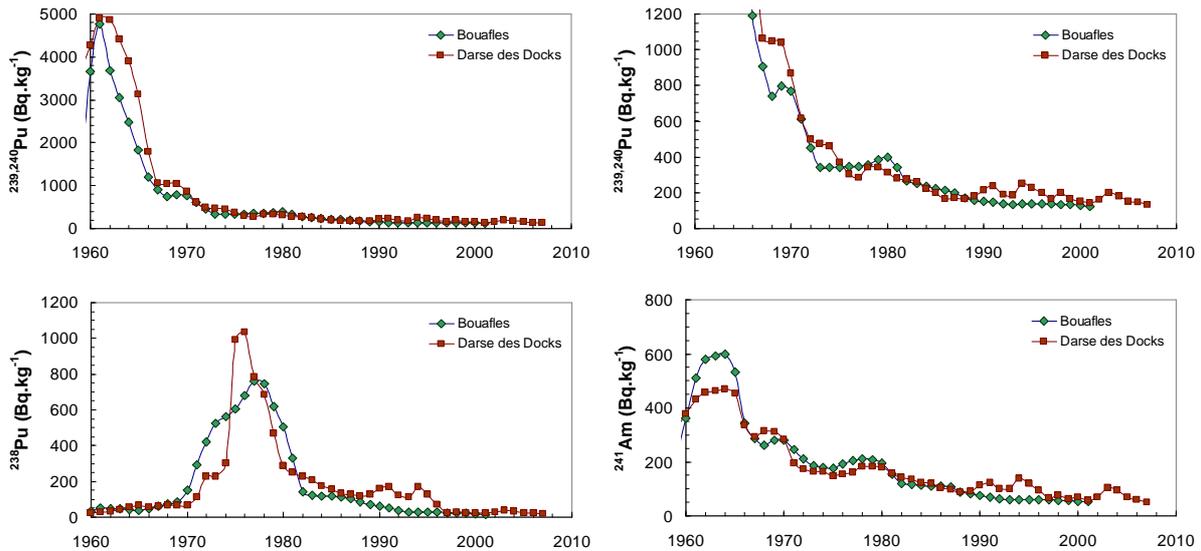


Figure 169 : Séries temporelles de l'activité de 3 radionucléides artificiels émetteurs α , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu et ^{241}Am pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron) ; le $^{239,240}\text{Pu}$ est représenté à deux échelles différentes ; les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al ; le ^{238}Pu a été corrigé de la décroissance depuis le dépôt.

En résumé, que ce soient les éléments stables ou les radionucléides, les différences majeures entre les deux séries temporelles des deux sites s'expliquent essentiellement par les rejets de phosphogypses dans la région rouennaise. D'autres disparités, moins importantes, sont plutôt imputables à une différence de fonctionnement hydrosédimentaire.

La comparaison des séries temporelles de concentrations des sites de Bouafles et de la Darse des Docks permet de déceler si un contaminant provient du bassin versant amont de la Seine, ou du bassin versant intra-estuarien, ou des deux. Nous allons maintenant nous intéresser aux sources de contaminants de chaque site à partir : (1) des résultats des travaux du PIREN-Seine, (2) des travaux du GIP Seine-Aval, (3) d'une étude particulière effectuée dans le cadre du projet RHAPSODIS sur les rejets de phosphogypses et (4) des informations fournies par une installation nucléaire de la région parisienne. Enfin, nous chercherons à quantifier la part respective des apports amont et intra-estuariens.

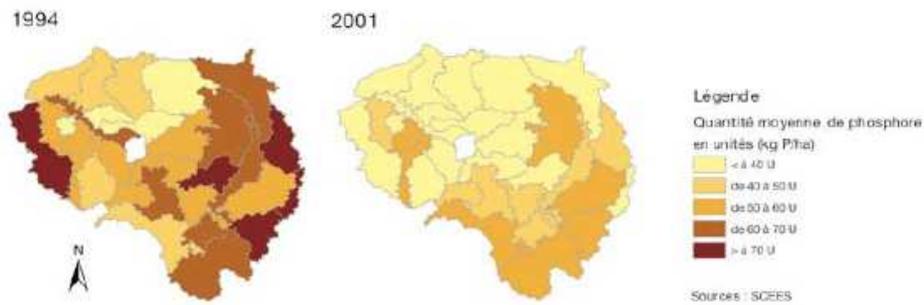
3. Identification des principales sources des contaminants en provenance de l'amont

Sur les profils présentés dans la section précédente, nous observons des contaminations déjà bien marquées sur le site de Bouafles. Le bassin versant de la Seine étant très vaste, les origines de ces contaminations sont multiples et variées. Les équipes travaillant dans le programme de recherche PIREN-Seine ont fait un bilan de ces sources.

3.1. Les éléments stables

3.1.1. Pollution agricole

Au cours du dernier demi-siècle, les pratiques agricoles ont évolué, impliquant une pression forte sur les milieux. Les pollutions issues de l'agriculture sont essentiellement liées à la fertilisation (apports en azote et en phosphates) et à l'utilisation de produits phytosanitaires. Sur la carotte de Bouafles, le FE du P varie entre 2,5 à 5,2 et diminue à partir des années 1990. Cela semble être la conséquence de la diminution des apports en engrais phosphatés dans les mêmes années (Figure 170).



Notons que les engrais phosphatés contiennent certains métaux, dont du Cd, qui par lessivage peuvent être apportés aux eaux de la Seine (Meybeck et al., 1998).

3.1.2. Pollution industrielle

La contamination par les industries peut s'effectuer par des rejets d'eaux usées ou contaminées, ou par des rejets atmosphériques pouvant se disperser à grande distance de leur lieu d'émission (Meybeck et al., 1998).

Les activités industrielles constituent ou ont constitué la source de nombreux contaminants métalliques (Thévenot et al., 2009) :

- le Cd issu de la production de certains pigments, des traitements de surface de divers matériaux, de la production d'accumulateurs Ni/Cd ;
- le Cu présent dans le réseau d'eau potable ;
- le Cr utilisé comme agent tannant et pour le traitement de surface ;
- le Ni utilisé pour le traitement des surfaces ;
- le Pb présent dans les accumulateurs, les plombs de chasse, certains pigments, dans les réseaux d'eau potable ;
- le Zn utilisé pour le traitement de surface, la fabrication de certains pigments...

Les industries sont connectées au réseau urbain de traitement des eaux usées ; certaines possèdent en plus une station interne à l'installation qui permet de rejeter une eau moins chargée dans le réseau.

Le rendement des stations d'épuration pour le traitement des métaux est bas, autour de 50 %, ces derniers n'étant pas biodégradables (Meybeck et al., 1998). Les boues issues des stations d'épuration contiennent donc encore des quantités importantes de métaux. Si l'épandage de ces boues est aujourd'hui réglementée, ce ne fut pas toujours le cas, en particulier dans les années 1960 à 1980, et des sols agricoles ont donc été contaminés par l'apport de ces boues (Baize et al., 2005). Ces terres polluées sont aujourd'hui la source d'une contamination diffuse sur le bassin versant de la Seine. De plus, du fait des rejets atmosphériques industriels et de leur rabattement par la pluie, il n'existe aujourd'hui pratiquement aucune terre exempte de contamination dans le bassin versant de la Seine.

3.1.3. *Pollution urbaine*

Les surfaces urbaines du bassin versant de la Seine est une source de contamination pour le fleuve, notamment par le ruissellement des eaux sur les toitures (Zn, Pb, Cd) ou dans les gouttières (Cu, Zn). L'importance de la population sur un territoire restreint engendre d'importantes quantités d'eaux usées, au traitement desquelles il fut parfois difficile de faire face, et des déchets ménagers dont l'incinération peut engendrer la libération de divers métaux dans l'atmosphère (Meybeck et al., 1998 ; Thévenot et al., 2009). Les transports sont également une source de contamination sur l'ensemble du bassin versant, en particulier le trafic routier.

3.2. Les radionucléides

En amont du barrage de Poses, les particules sédimentaires ont été marquées par des radionucléides de plusieurs origines, dont certaines ont déjà été très documentées. Nous allons, dans les paragraphes suivants, en présenter les sources.

3.2.1. *Les retombées atmosphériques des essais nucléaires*

Les Etats-Unis, la Russie, la Grande-Bretagne, la France et la Chine ont procédé à un grand nombre d'essais nucléaires atmosphériques entre 1945 et 1980, provoquant un apport massif de radionucléides artificiels dans l'environnement à l'échelle planétaire. La plupart des explosions ont eu lieu dans l'hémisphère Nord. Au cours de l'année 1962, l'URSS et les USA ont effectuée 118 essais atmosphériques représentant presque 40 % de la puissance totale libérée par l'ensemble de ces essais. A chaque explosion aérienne, des particules radioactives sont libérées dans l'atmosphère à une altitude qui dépend des conditions du tir. Elles y séjournent de quelques heures à quelques mois avant de retomber au sol. Compte tenu de la répartition des sites, du nombre d'essais et de la variété de puissance des tirs, les dépôts affectent la planète toute entière. De nombreuses études ont montré l'impact de ces essais dans les sédiments (e.g. Lima et al., 2005 ; Saito-Kokubu et al., 2008 ; Sayles et al., 1997 ; Snyder et al., 2012).

Les radionucléides libérés lors de ces essais sont nombreux. Parmi eux, nous avons mesuré, dans les carottes étudiées ici, les éléments suivants : ^{137}Cs , ^{241}Am , $^{239,240}\text{Pu}$ et, en moindre proportion, le ^{238}Pu . Entre 1945 et 1975, les essais nucléaires atmosphériques ont disséminé environ 13 PBq de $^{239,240}\text{Pu}$, dont 80 % dans l'hémisphère Nord, et 0,3 PBq de ^{238}Pu , dont 60 % dans l'hémisphère sud (UNSCEAR, 1982). Le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ correspondant à ces essais est estimé à 0,04.

Les essais nucléaires ont marqué l'environnement de radionucléides non présents auparavant. Les carottes sédimentaires prélevées dans l'estuaire de la Seine sont marquées par ces événements. En amont du barrage de Poses, il semble que ces essais nucléaires soient l'unique source d'apport de ^{137}Cs avant 1980. Ce n'est pas le cas des isotopes du Pu, comme nous allons le voir maintenant.

3.2.2. *Les rejets d'une installation nucléaire de la région parisienne*

Depuis 1954, une installation nucléaire de la région parisienne a effectué des rejets liquides de radionucléides émetteurs alpha. Les activités rejetées n'ont jamais dépassé les limites réglementaires ; cependant, elles ont été suffisantes, certaines années, pour marquer les sédiments des carottes que nous avons prélevées et étudiées. En 1975, un pic d'activité des rejets est enregistré : les rejets alpha sont, pour cette seule année 1975, plus importants que la moyenne des rejets des vingt années qui l'entourent. Les effluents rejetés présentaient une forte dominante de radionucléides émetteurs alpha, avec la présence de ^{238}Pu . Comme nous avons pu le voir, ce rejet marque notablement les sédiments de la Seine. Thomas (1988) avait déjà remarqué un rapport isotopique (RI) $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ anormalement élevé : une mesure effectuée en février 1981 à Elbeuf a révélé un RI de 2,9. Il est probable que cette valeur soit la conséquence de la remise en suspension d'un matériel sédimentaire ancien marqué par le rejet de 1975.

Des rejets effectués entre 1958 et 1965 se sont ajoutés à ceux des radionucléides provenant des retombées atmosphériques des essais nucléaires. Finalement, si pour le Pu et l'Am, les pics d'activité observés dans les carottes sédimentaires au début des années 1960 ne sont pas totalement représentatifs des retombées des essais nucléaires, c'est qu'il convient d'y ajouter l'éventuelle contribution de rejets autorisés des installations nucléaires de la région parisienne.

3.2.3. *Les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl*

Le 26 avril 1986, le réacteur nucléaire n° 4 de la centrale de Tchernobyl, en service depuis 1983, explose accidentellement. Suite à cette explosion, les produits radioactifs émis s'élèvent jusqu'à plus de 1 200 mètres d'altitude. Les rejets se poursuivent jusqu'au 5 mai. Au total, près de 12 000 PBq sont émis dans l'environnement en 10 jours (IRSN, 2006). Entre le 26 avril et la mi-mai 1986, le panache radioactif dissémine des éléments radioactifs tels que ^{131}I , ^{134}Cs et ^{137}Cs . Le Pu issu de cet accident est dispersé uniquement à proximité du réacteur. En France, la concentration des éléments radioactifs dans l'air augmente au cours du 30 avril 1986 dans l'extrême est du pays, pour atteindre un maximum

le 1^{er} mai. Les principaux éléments radioactifs mesurés dans l'air au début mai 1986, sont par ordre décroissant d'activité : ^{131}I , ^{132}Te , ^{129}Te , ^{103}Ru , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{140}Ba . Parmi ces radionucléides, le ^{137}Cs possède la période la plus longue (30 ans), c'est pour cette raison qu'on le détecte encore aujourd'hui dans les sédiments déposés à la suite de l'accident de Tchernobyl. Les apports totaux moyens en ^{137}Cs sur les surfaces agricoles au moment du dépôt vont de 120 Bq.m^{-2} dans l'ouest du pays, à $3\,560 \text{ Bq.m}^{-2}$ dans l'est où les activités peuvent dépasser localement $6\,000 \text{ Bq.m}^{-2}$. Le ^{137}Cs issu des retombées de l'accident de Tchernobyl a également été détecté dans de nombreuses carottes sédimentaires dans différents pays d'Europe (Erlinger et al., 2008 ; Ilus and Saxén, 2005 ; Lima et al., 2005).

3.2.4. *Le Centre Nucléaire de Production d'Electricité de Nogent-sur-Seine*

Le Centre Nucléaire de Production d'Electricité (CNPE) de Nogent-sur-Seine (PK -140) se compose de deux réacteurs mis en fonctionnement en octobre 1987 et décembre 1988. Le CNPE effectue des rejets liquides contrôlés dans l'environnement. Des suivis radioécologiques sont effectués annuellement à proximité, sur divers supports, dont les sédiments de la Seine (Claval et al., 2009). Ces derniers sont prélevés en amont et en aval de la centrale afin de pouvoir estimer au mieux l'impact de cette dernière. Les activités de certains radionucléides sont régulièrement mesurées : radionucléides émetteurs gamma d'origine naturelle (^{40}K , famille du ^{232}Th , famille du ^{238}U), radionucléides émetteurs gamma d'origine artificielle (dont le ^{137}Cs). Les radionucléides émetteurs alpha (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am) sont mesurés tous les 10 ans, dans le cadre du suivi décennal (Parache, 2008).

Les mesures de ^{137}Cs effectuées depuis sa mise en fonctionnement ne révèlent pas d'influence de la centrale sur les activités des sédiments, excepté pour une mesure effectuée en mai 1989, suite à la mise en fonctionnement des 2 tranches de la centrale (Boust et al., 1999). A cette date, une mesure effectuée en aval de la centrale a révélé une activité plus grande en ^{137}Cs qu'une mesure faite en amont de la centrale. Cette anomalie n'a pas semblé marquer durablement les sédiments puisqu'elle n'est pas retrouvée dans les carottes sédimentaires. Globalement, l'impact des rejets liquides de la centrale n'est pas détectable, même à proximité immédiate de l'installation ; il est donc logique d'en conclure qu'il ne l'est pas non plus à plus grande distance après mélange du stock sédimentaire avec les autres apports sédimentaires du bassin versant.

Les mesures de Pu effectuées en amont et en aval du site de Nogent en 1997 et en 2008 présentent le même rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, typique des retombées atmosphériques des essais nucléaires du début des années 1960 (de 0,04 dans les années 1960, de l'ordre de 0,028 aujourd'hui suite à la décroissance du ^{238}Pu). De même, le rapport $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ n'est pas significativement différent en amont et en aval de la centrale. La centrale n'impacte donc pas l'environnement en ce qui concerne les radionucléides émetteurs alpha. Les activités détectées dans les sédiments depuis la mise en fonctionnement de cette centrale, sont donc à associer aux évènements antérieurs (retombées atmosphériques des essais nucléaires).

Nous venons de présenter les sources de contamination de la Seine en amont du barrage de Poses, nous allons maintenant nous tourner vers les sources de contaminants d'origine intra-estuarienne.

4. Identification des principales sources intra-estuariennes de contaminants

4.1. Introduction

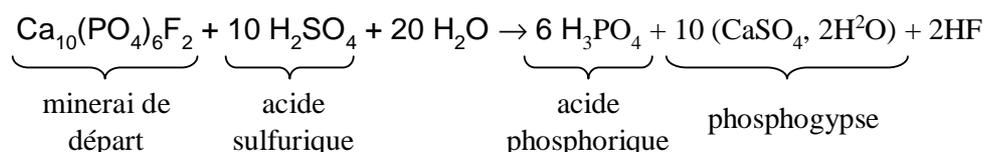
Les contaminants d'origine intra-estuarienne peuvent provenir (1) des rivières affluentes à l'estuaire de la Seine qui ont pu recevoir des rejets industriels ou être soumises à une contamination diffuse, (2) de rejets industriels effectués directement dans l'estuaire, essentiellement par les usines de l'agglomération de Rouen.

Dans les années 1970, d'importants rejets de phosphogypses ont été réalisés dans l'estuaire de la Seine au niveau de l'agglomération de Rouen (Chiffolleau et al., 2001). Il a été jugé nécessaire de reconstituer l'histoire de la production d'acide phosphorique qui en est responsable ; ceci a été entrepris à partir de documents d'archives et de témoignages des industriels, dans le cadre du projet RHAPSODIS (Dillies, 2010). Les objectifs de l'étude ont été de déterminer le mieux possible les quantités de phosphogypses rejetés, les lieux de rejets, ainsi que leur composition chimique.

Nous commencerons par rappeler ce que sont les phosphogypses, puis après avoir présenté les résultats de cette enquête, nous discuterons de la relation existant entre les rejets industriels et les teneurs en métaux mesurées dans les sédiments.

4.2. L'industrie des phosphates

La fabrication d'acide phosphorique (engrais phosphatés) génère un sous-produit, le phosphogypse, selon l'équation générique suivante :



La production d'une tonne d'acide phosphorique nécessite 4 tonnes de minerai et 2,5 tonnes d'acide sulfurique, et elle 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 (Andrieux et al., 1978). Cette production s'est achevée en 2004.

Les phosphogypses concentrent de nombreux métaux ainsi que des traces d'éléments radioactifs provenant des impuretés naturelles du minerai de phosphates (Rutherford et al., 1994). Les rejets de phosphogypses engendrent donc une contamination du milieu naturel. Les métaux les plus couramment rencontrés dans les phosphogypses sont : Sr, Ba, Zr, Ti et Cd.

4.3. Les rejets de phosphogypses dans l'estuaire de la Seine

Dans l'estuaire amont de la Seine, deux usines ont produit de l'acide phosphorique : (1) l'usine Grande-Paroisse, située à Grand-Quevilly, à environ 5 km en amont de la Darse des Docks, de 1930 à 2004, (2) l'usine Potasse et Engrais Chimiques, située à Grand-Couronne, 5 km en aval de l'entrée de la Darse des Docks, de 1974 à 1992 (Dillies, 2010).

Jusqu'en 1974, l'usine Grande Paroisse (GP) a rejeté les sous-produits uniquement et directement dans l'estuaire de la Seine. Les rejets les plus importants ont eu lieu entre 1968 et 1974 (Figure 171).

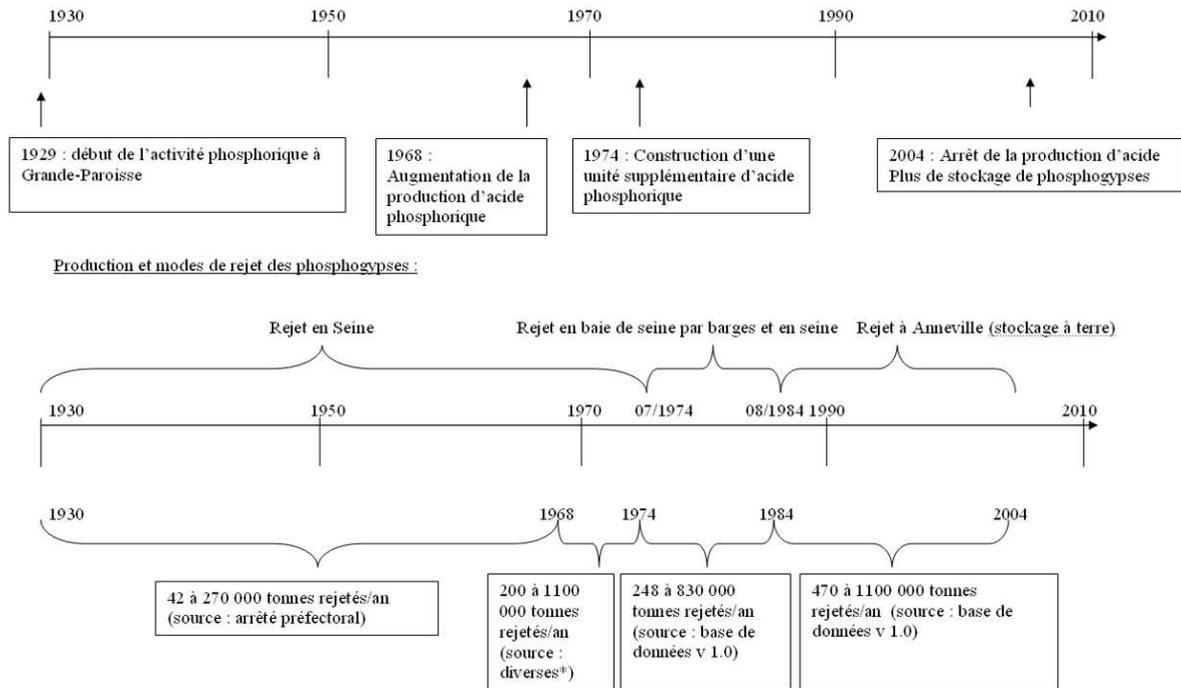


Figure 171 : Historique de l'activité de l'usine Grande Paroisse (Dillies, 2010).

L'usine Potasse et Engrais Chimique (PEC) a commencé son activité en 1974 (Figure 172). 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, environ 80 % des phosphogypses sont transportés par barge jusqu'à l'embouchure de la Seine, mais ce transport engendre de la surverse, c'est-à-dire une perte de produit liquide par débordement lors du transport vers le large. A noter que lors des périodes de mauvais temps, les usines sont autorisées à déverser les phosphogypses dans une "zone de repli" (zone estuarienne 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 phosphogypses est stoppée en 2004 pour GP et en 1992 pour PEC (Figure 171 et Figure 172).

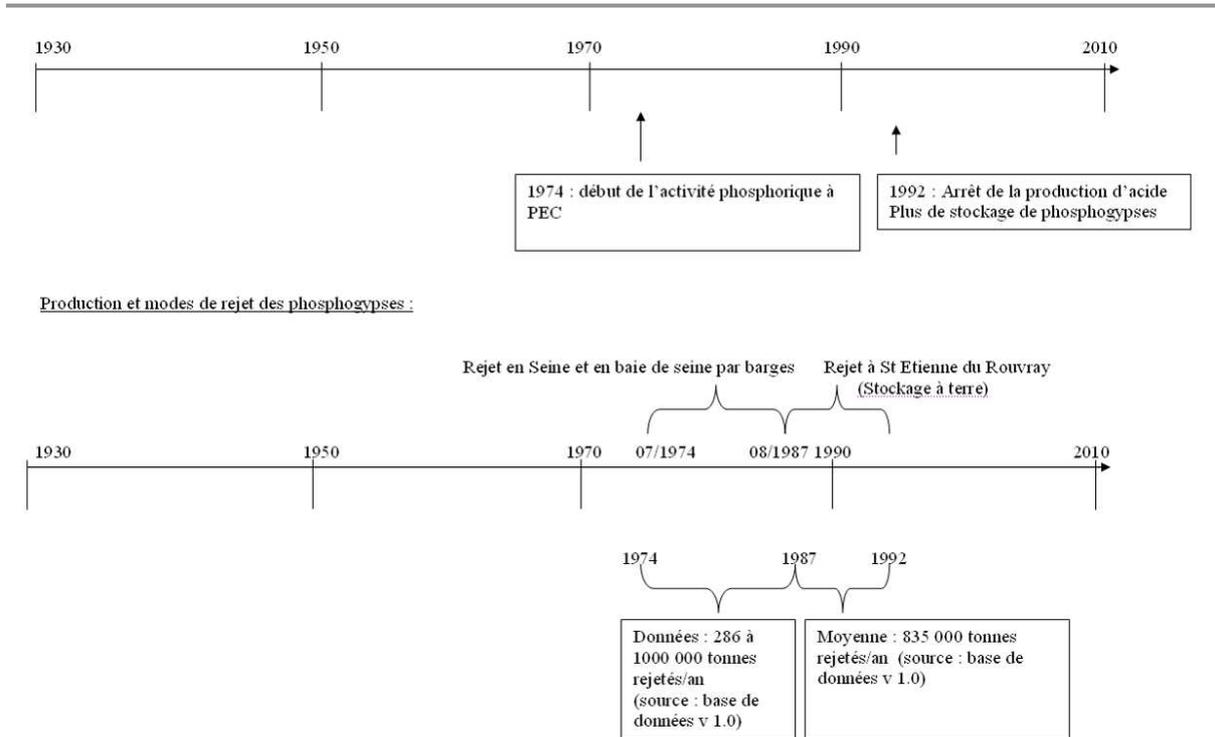


Figure 172 : Historique de l'activité de l'usine Potasse et Engrais Chimiques (Dillies, 2010).

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

Cette base comporte également les teneurs en certains composés minéraux (SO_4 , CaO , P_2O_5 , F , Al_2O_3 , SiO_2 , NO_3 , Cl) du minerai utilisé, l'origine de ce minerai et les teneurs de quelques métaux (As , Cd , Co , Cr , Cu , Fe , Hg , Mn , Ni , Pb , Ti , V et Zn) dans les phosphogypses rejetés.

Les rejets directs dans l'estuaire de la Seine sont particulièrement importants entre 1972 et 1974 (Figure 173). Entre 1975 et 1979, ils diminuent considérablement, relayés par les rejets en Baie de Seine qui sont très importants (Figure 174). On estime que 15 % de ces rejets sont perdus dans l'estuaire lors de leur transport.

Il est important de signaler que le débit solide de la Seine étant compris entre 100 000 et 1 700 000 T de MES par an (Seine-Aval, 2008), les rejets de phosphogypses correspondaient à des tonnages du même ordre de grandeur au début des années 1970. En 1973, les rejets ont été proches de 1 200 000 T. Cependant les archives historiques nous apprennent que seuls 3 à 8 % des rejets ne sont pas dissous : après leur rejet, plus de 90 % sont donc transportés dans l'estuaire sous forme dissoute. Les apports solides sont donc négligeables en termes d'apports de particules solides à l'estuaire de la Seine et pour cette raison, ils n'ont pas été ajoutés au débit solide mesuré à Poses dans nos calculs de flux (Chapitre V).

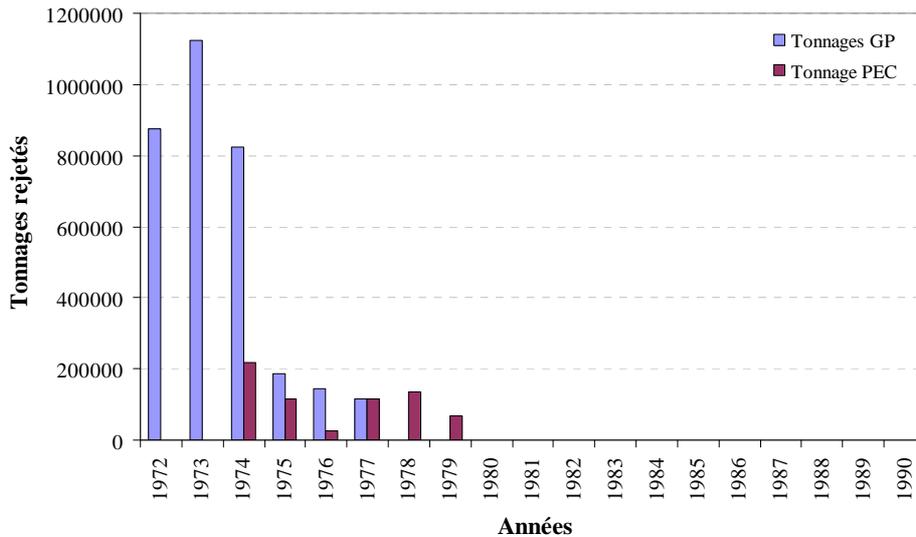


Figure 173. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés directement dans l'estuaire de la Seine (la surverse n'est pas représentée sur ce graphique) (Dillies, 2010).

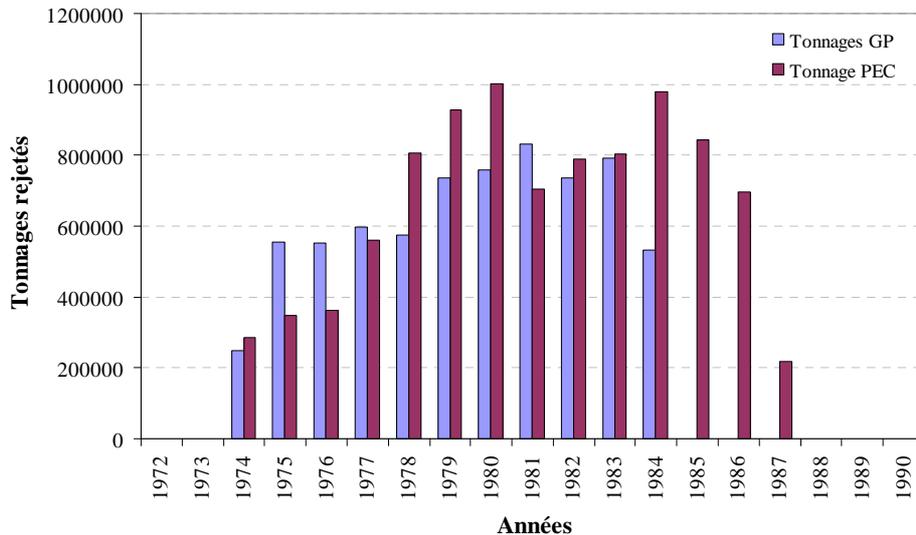


Figure 174. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés en baie de la Seine (Dillies, 2010).

4.4. Autres contaminations intra-estuariennes

Le bassin versant intra-estuarien de la Seine est soumis comme le bassin versant de la Seine à plusieurs types de contaminations : (1) celles, diffuses, par lessivage des terres agricoles pouvant avoir reçu des boues de stations d'épuration ou des dépôts atmosphériques issus de rejets industriels, ou par lessivage des surfaces urbaines, (2) celles dues aux autres rejets industriels : directement dans l'estuaire ou dans les rivières affluentes.

De nombreuses industries sont installées sur le bassin versant intra-estuarien. L'Eure, affluent de la Seine à 18 km en amont de Rouen, est à l'origine d'apports significatifs de contaminants : on identifie au bord de cette rivière, de nombreuses zones industrielles situées à Chartres, à Dreux, ainsi qu'à Evreux (ville traversée par l'Iton, affluent de l'Eure)... La région de Rouen, surtout, est le siège

de nombreuses industries. D'après le Registre français des émissions polluantes (IREP, 2012), certaines industries rejettent des métaux dans l'air et directement en rivière.

En résumé, si différentes sources de contaminations par les métaux sont identifiables sur le bassin versant intra-estuarien de la Seine, les rejets de phosphogypses semblent avoir été *a priori* la source la plus importante de la contamination intra-estuarienne par les métaux au cours de ces cinquante dernières années.

4.5. Quantification de la contamination par les phosphogypses

Nous cherchons ici à identifier, pour différentes années et pour un élément donné, la part respective de chaque source (naturelle, amont et intra-estuarienne) dans la concentration mesurée de l'élément considéré au sein des sédiments carottés dans de la Darse des Docks.

4.5.1. Méthodologie

Toutes les concentrations élémentaires ont été normalisées à l'Al comme indiqué au paragraphe 2.1, y compris la référence shales qui permet d'estimer quelle part on doit attribuer à une origine naturelle de l'élément. Pour une année donnée, et un élément donné E, nous avons effectué les calculs suivants :

- Part de l'origine naturelle $S_{naturelle}$ de l'élément E :

$$S_{naturelle} (\%) = \frac{E_{shales}}{E_{Darse-des-Docks}} \times 100 \quad \text{Équation 13}$$

- Part de l'origine amont S_{amont} de l'élément E :

$$S_{amont} (\%) = \frac{E_{Bouafles} - E_{shales}}{E_{Darse-des-Docks}} \times 100 \quad \text{Équation 14}$$

- Part de l'origine intra-estuarienne $S_{intra-estuarienne}$ de l'élément E :

$$S_{intra-estuarien} (\%) = \frac{E_{Darse-des-Docks} - E_{Bouafles}}{E_{Darse-des-Docks}} \times 100 \quad \text{Équation 15}$$

E_{shales} = Teneur en l'élément E de la référence shales pour un teneur en Al de 3,8 %.

$E_{Bouafles}$ = Teneur en l'élément E normalisé à l'Al (teneur de référence 3,8 %) dans les sédiments de Bouafles.

$E_{Darse-des-Docks}$ = Teneur en l'élément E normalisé à l'Al (teneur de référence 3,8 %) dans les sédiments de la Darse des Docks.

Il arrive que la référence shales présente, pour un élément et une année donnés, une teneur légèrement plus importante que celles mesurées dans les sédiments de Bouafles ou de la Darse des Docks ; on obtient alors un pourcentage négatif sur le site représentant une valeur moindre. Dans ce cas, la valeur négative est ramenée à 0. Il arrive également que la valeur calculée dans les sédiments de Bouafles soit supérieure à celle calculée dans les sédiments de la Darse des Docks ; nous procédons alors de la même façon : la valeur correspondant à la Darse des Docks est rapportée à 0 et l'origine de l'élément est partagée entre une origine naturelle et une origine amont.

4.5.2. Contribution des différentes sources à la contamination intra-estuarienne

Les Figure 175, Figure 176 et Figure 177 représentent pour les années 1965, 1974 et 2000 respectivement, et pour chaque élément-trace, la part de chaque source (naturelle, amont, intra-estuarienne) contribuant aux apports de cet élément dans les sédiments de la Darse des Docks. Il faut prendre ces estimations avec précaution, notamment du fait de la proximité du site de la Darse des Docks avec le point de rejet de phosphogypses.

On remarque rapidement que la contribution intra-estuarienne est beaucoup plus importante en 1974 qu'en 1965 ou 2000 pour un grand nombre d'éléments ; la cause est, comme expliqué auparavant, les rejets de phosphogypses dans la région rouennaise qui ont été les plus importants dans les années 1970.

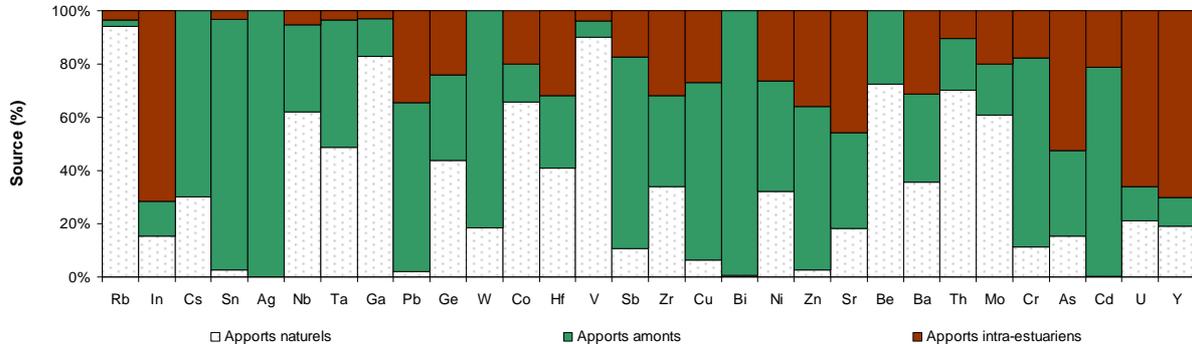


Figure 175 : Origine des éléments-traces mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 1965.

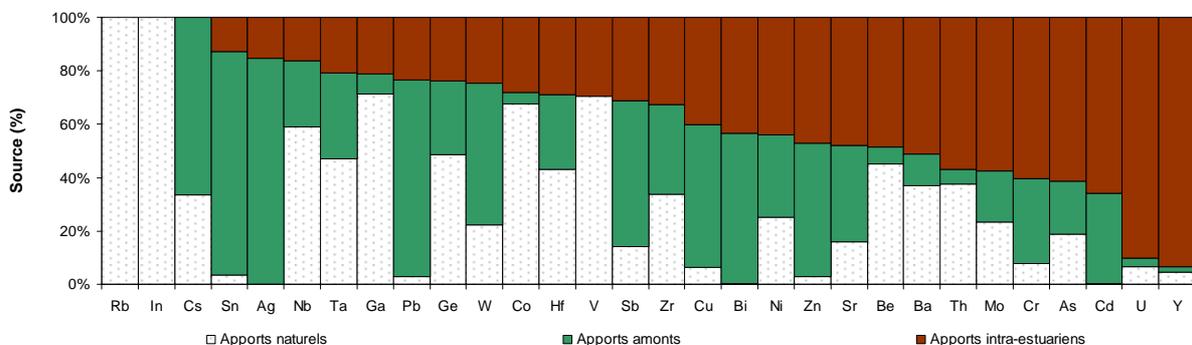


Figure 176 : Origine des éléments-traces mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 1974.

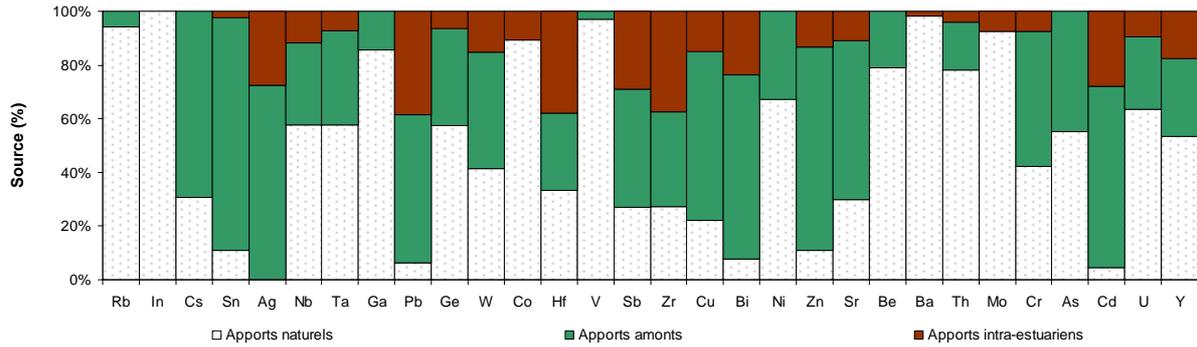


Figure 177 : Origine des éléments-traces mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 2000.

En 1965, les apports en provenance du bassin versant amont apparaissent majoritaires pour certains des éléments mesurés ; ainsi, ils représentent :

- 75 à 100 % des apports des éléments suivants : Ag, Bi, Sn, W et Cd.
- 50 à 75 % des apports de : Sb, Cr, Cs, Pb, Cu et Zn.

D'autres éléments sont essentiellement d'origine naturelle avec une part de :

- 75 à 100 % des apports de : Rb, V et Ga.
- 50 à 75 % des apports de : Be, Th, Co, Nb et Mo.

Enfin, des éléments ont une contribution intra-estuarienne majoritaire dès 1965, avec 50 à 75 % pour l'As, l'U et l'Y, témoins de rejets industriels déjà existants. En 1965, on remarque une contribution importante des apports intra-estuariens pour l'In, mais les concentrations sont toujours près de la limite de détection.

En 1974, la contribution intra-estuarienne est considérable pour Y et U (> 90 %), pour Cd, As, Cr, Mo, Th et Ba (50 à 70 %). D'autres éléments sont enrichis par les rejets de phosphogypses, mais en moindre proportion. La contribution du bassin versant reste très forte pour Sn et Ag, mais aussi pour Pb, Cs, Sb, Bi, Cu et Zn. Quelques éléments ont une origine naturelle, tels le Rb et l'In (100 %), ou prépondérante : V, Ga, Co et Nb (50 à 75 %).

En 2000, les apports intra-estuariens sont beaucoup plus faibles que dans le passé pour l'ensemble des éléments. Cette contribution est au maximum de 38 % pour Pb, Hf et Zr. La contribution du bassin versant demeure très importante pour un grand nombre d'éléments, en particulier pour Sn (87 %) et Zn (76 %) ; elle est comprise entre 50 et 75 % pour les éléments suivants : Ag, Cs, Bi, Cd, Cu, Sr, Pb et Cr. Corrélativement, la contribution naturelle dans les concentrations mesurées est en augmentation. Ainsi, neuf éléments présentent une contribution naturelle supérieure à 75 % : In, Rb, V, Ba, Mo, Co, Ga, Be et Th ; sept éléments présentent une contribution naturelle comprise entre 50 et 75 % : Ni, U, Nb, Ta, Ge, As et Y.

En résumé, si certains éléments présentent des teneurs encore élevées dans les sédiments de l'estuaire, un grand nombre d'entre eux sont marquées pendant la période la plus récente par des contributions anthropiques moins importantes que dans le passé. Les carottages de sédiments réalisés

dans la Darse des Docks sont les archives incontestables de l'activité industrielle dans l'estuaire amont, dont l'année 1974 représente le témoin le plus démonstratif.

En ce qui concerne les radionucléides, nous savons que le ^{137}Cs , le ^{238}Pu , le $^{239,240}\text{Pu}$ et l' ^{241}Am sont exclusivement d'origine artificielle et qu'ils proviennent de l'amont du barrage de Poses (une part faible pourrait provenir de l'usine de retraitement de La Hague par pompage tidal ; Chapitre VII). Les radionucléides des familles du ^{232}Th , du ^{238}U et du ^{226}Ra sont d'origine naturelle et sont uniquement enrichis dans l'estuaire par les rejets de phosphogypses. Les sédiments de Bouafles constituent donc la référence naturelle, et nous évaluons l'importance des rejets intra-estuariens à partir de cette référence (Figure 178).

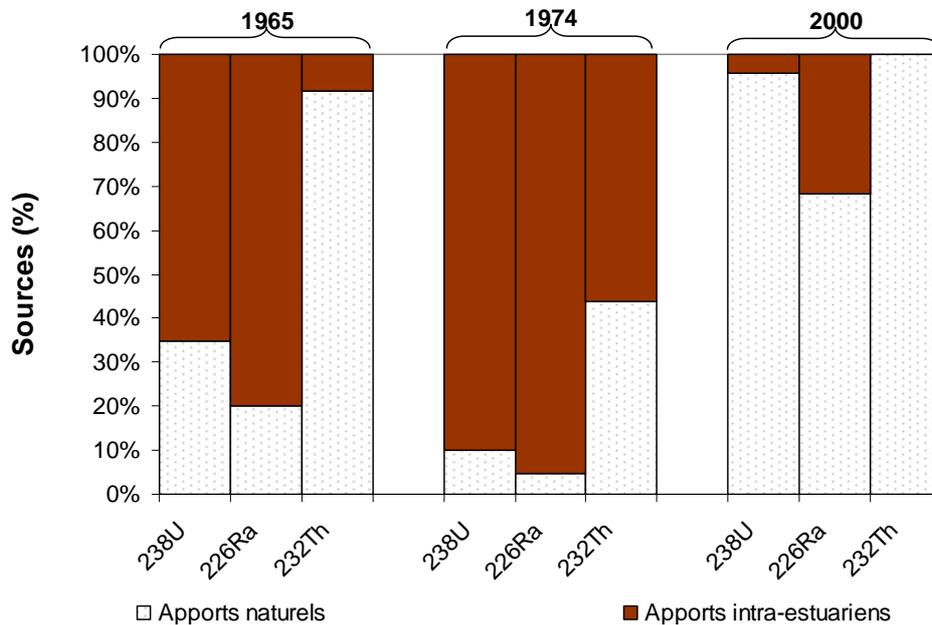


Figure 178 : Origine de radionucléides mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 1965, 1974 et 2000.

En 1965, on note que les rejets de phosphogypses contribuent déjà largement à la présence de ces radionucléides dans les sédiments de la Darse. En 1974, la contribution des apports intra-estuariens est maximale avec 90 % pour le ^{238}U , 95 % pour le ^{226}Ra et 56 % pour le ^{232}Th . En 2000, la contribution intra-estuarienne redevient plus modeste, les apports en radionucléides correspondent de nouveau en grande partie à des sources naturelles. En résumé, les chaînes des différentes familles de radionucléides présentées ici semblent uniquement marquées par les apports associés aux phosphogypses (maxima en 1974), puis les concentrations redeviennent progressivement naturelles.

En conclusion, les calculs illustrés par les figures précédentes permettent d'estimer l'importance de chaque source des nombreux contaminants présents dans les sédiments carottés dans la Darse des Docks. Les rejets de phosphogypses ont eu un impact considérable sur les teneurs des éléments stables mesurés et des radionucléides d'origine naturelle dans les sédiments de la Darse des Docks, qui se révèle un témoin historique de la contamination de l'estuaire amont. Comme nous l'avons vu dans le

chapitre V, cet impact est renforcé par la proximité du site de carottage par rapport au point des rejets des phosphogypses.

5. Evaluation du temps de résidence des particules dans l'estuaire fluvial de la Seine

Sur la base des données des exploitants industriels responsables des rejets de phosphogypses et des concentrations des différents contaminants contenus dans ces rejets, nous pouvons tenter d'estimer le temps de résidence des particules dans l'estuaire.

5.1. Eléments de comparaison entre les rejets de phosphogypses et les concentrations des éléments mesurés dans les carottes de la Darse des Docks

Les phosphogypses ont une composition variable dans le temps, fonction de la composition du minerai employé (le phosphate). La teneur en un élément donné n'est donc pas simplement proportionnelle aux rejets de phosphogypses réalisés au cours du temps.

Des analyses élémentaires ont été régulièrement effectuées sur les phosphates avant leur utilisation : P_2O_5 , CaO, SO_4^{2-} , F, CO_2 , SiO_2 , Fe_2O_3 , MgO, Na_2O , K_2O . Ainsi, l'analyse du phosphate (P_2O_5) montre des teneurs 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 considérer que les rejets de phosphogypses sont en première approximation proportionnels aux teneurs en P.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 4.3, les rejets s'effectuent de différentes façons au cours du temps (rejets directs dans l'estuaire, rejets en baie de Seine avec surverse, stockage à terre).

Pendant la période de rejets des phosphogypses en baie de Seine, l'estuaire continue d'en être affecté, puisqu'on estime que 15 % de la masse de phosphogypses transportée en baie de Seine est perdue lors de son transport le long de l'estuaire par le phénomène de surverse. De plus, lors de périodes de mauvais temps, les usines sont autorisées à rejeter les phosphogypses dans une zone de repli, dont la localisation exacte n'est pas connue, mais qui se trouve dans l'estuaire.

A partir de ces différentes informations et de l'historique de la production de phosphogypses des deux usines rouennaises, nous avons estimé les tonnages de phosphogypses libérés chaque année dans l'estuaire fluvial de la Seine.

Les teneurs en P étant relativement constantes, on peut donc faire l'hypothèse que les concentrations de P 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 P des sédiments carottés (Figure 179).

Il est intéressant de remarquer que sur la Figure 179, l'histogramme représentant les rejets de phosphogypses en fonction du temps présente une forme comparable à celle de la distribution des teneurs en P dans les sédiments carottés jusqu'à la fin des rejets (1987). Notons cependant que les teneurs en P des 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 phénomène de rémanence : il faut un certain temps avant qu'une contamination soit évacuée. Ainsi, la différence observée entre les concentrations excédentaires mesurées dans les sédiments et celles attendues du fait des rejets annuels de phosphogypses est interprétée en termes de temps de résidence des particules sédimentaires dans l'estuaire de la Seine.

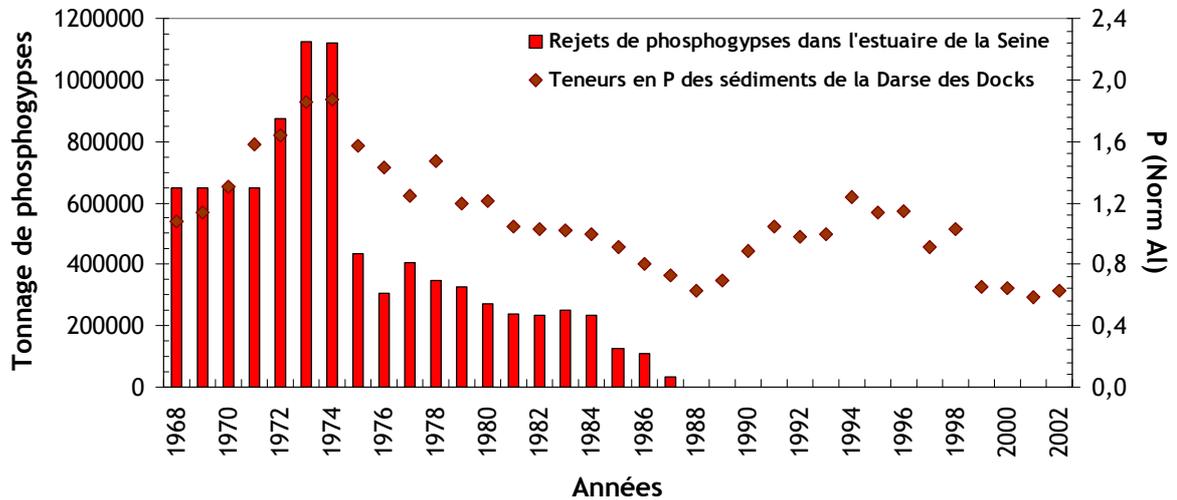


Figure 179. Rejets de phosphogypses dans l'estuaire fluvial de la Seine (rejets directs + estimation de la surverse) et teneurs normalisées à l'Al du P dans les sédiments de la Darse des Docks.

5.2. Détermination du temps de résidence à partir des concentrations d'yttrium mesurées dans les carottes

Nous avons choisi d'évaluer ce temps de résidence à partir des données d'Y. Cet élément semble idéal puisqu'il ne présente pas d'excès en amont du barrage de Poses, le profil d'Y restant parfaitement stable à Bouafles. La série temporelle de la Darse des Docks montre quant à elle que les concentrations d'Y semblent uniquement perturbées par les rejets de phosphogypses (Figure 164).

Nous devons dans un premier temps estimer la relation existante entre rejet de phosphogypses et concentrations d'Y dans les sédiments. Cette relation ne sera qu'approximative, puisque nous avons vu (Chapitre V) que la contamination des sédiments était en partie fonction de la quantité de MES présente dans l'estuaire au moment des rejets. On calcule cette relation pour l'année où le rejet de phosphogypses est maximal, soit l'année 1974. Pour les années suivantes, on calcule la quantité d'Y rejeté à l'aide de la relation suivante :

$$(Y_{\text{théorique}})_n = \frac{(\text{Phosphogypses})_n \times Y_{1974}}{(\text{Phosphogypses})_{1974}} \quad \text{Équation 16}$$

$(Y_{\text{théorique}})_n$ = Concentration théorique en Y dans les sédiments de la Darse des Docks pour l'année n en l'absence de rémanence.

$(\text{Phosphogypses})_n$ = Quantité de phosphogypses rejetée au cours de l'année n.

Y_{1974} = Concentration en Y mesurée dans les sédiments de la Darse des Docks pour l'année 1974.

$(\text{Phosphogypses})_{1974}$ = Quantité de phosphogypses rejetée au cours de l'année 1974.

On peut ainsi comparer deux séries (Figure 180) :

- les mesures en Y effectuées sur la carotte de la Darse des Docks (en marron sur le graphique)
- les mesures théoriques en Y dans les sédiments de la Darse des Docks en l'absence de rémanence des sédiments dans l'estuaire fluvial (en violet sur le graphique).

Il convient maintenant d'évaluer le temps de résidence nécessaire pour passer d'une série à l'autre. Pour cela, nous appliquons à l' $Y_{\text{théorique}}$ que nous avons estimé, un temps de résidence suivant l'équation suivante :

$$(Y_{\text{modélisé}})_n = (Y_{\text{théorique}})_n + \sum_{i=1972}^n (Y_{\text{théorique}})_i \times \exp(-\lambda \times (n+1-i)) \quad \text{Équation 17}$$

$(Y_{\text{modélisé}})_n$ = Y théorique auquel ont été ajoutés les concentrations d'Y rémanentes des années précédentes
n = année variant de 1972 à 1987 (période pour laquelle les données des exploitants sont disponibles)

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{T} \quad \text{Équation 18}$$

λ = Constance de décroissance

T = Temps de résidence des sédiments dans l'estuaire,

soit le temps nécessaire pour que la moitié des particules sédimentaires soit renouvelée.

Différents temps de résidence T sont testés dans le but de corrélérer au mieux la courbe des concentrations mesurées sur les sédiments de la Darse des Docks avec la courbe d'Y théorique à laquelle a été imposé un temps de résidence T (Figure 180).

A partir de ces essais, le temps de résidence est estimé à $0,6 \pm 0,1$ année : la moitié des particules intra-estuariennes est donc renouvelée tous les 7 mois en moyenne. Il ne s'agit là que d'une estimation : les paramètres hydrologiques étant variables d'une année sur l'autre, le temps de résidence des particules dans l'estuaire fluvial n'est pas constant dans le temps.

Les incertitudes de ces calculs sont liées à l'insuffisance de certaines données :

- les concentrations exactes en Y dans les phosphogypses ;
- la relation existant entre rejets de phosphogypses et concentrations dans les sédiments pour un rejet ponctuel ;
- la quantité exacte de phosphogypses rejetée dans l'estuaire par le phénomène de surverse.

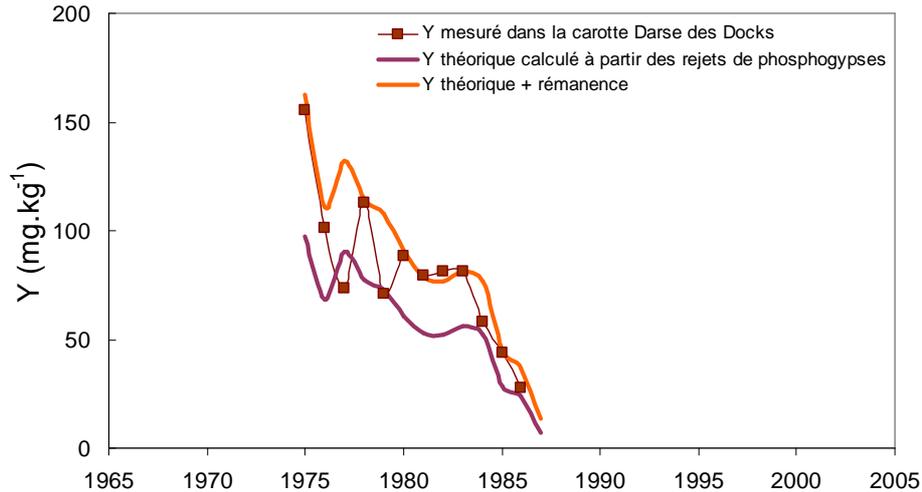


Figure 180 : Série temporelle de l'Y en mg.kg^{-1} ; (1) Concentrations mesurées dans les sédiments de la Darse des Docks (2) Concentrations calculées à partir de l'historique des rejets de phosphogypses pour un temps de résidence nul des sédiments dans l'estuaire fluvial (3) Concentrations calculées à partir de l'historique des rejets de phosphogypses pour un temps de résidence T des sédiments dans l'estuaire fluvial.

Enfin, le temps de résidence varie en fonction des saisons et en fonction des années, suite aux fluctuations de différents paramètres régissant la sédimentation des particules fines dans l'estuaire, parmi lesquels (Dupont et al., 1997) :

- L'extension des zones de piégeage du matériel particulaire ;
- En période d'étiage et lors des périodes de vives-eaux, le temps de résidence des particules est accru : un stockage d'eau dans l'estuaire amont est observé. En outre, les périodes de vives-eaux (plus forts courants) correspondent à la remise en suspension d'une partie des particules déposées. A la fin des périodes de vives-eaux, l'estuaire amont se vide ;
- Lors des périodes de crue, l'influence de la marée se trouve atténuée ; le courant de flot peut alors être considérablement affaibli, voire disparaître, et le temps de résidence est donc moins important.
- En fonction des années, les débits de crue sont plus ou moins intenses, de même que ceux d'étiage, engendrant des variations dans le temps de résidence des particules dans l'estuaire fluvial à l'échelle pluriannuelle.

5.3. Bilan sur le temps de résidence des particules

Le temps de résidence des particules dans l'estuaire fluvial de la Seine est moindre que dans l'estuaire aval, siège du bouchon vaseux (Dubrulle-Brunaud, 2007). Avoine et al. (1986) ont estimé le temps de résidence apparent des particules à 0,8 ans dans l'estuaire, mais sans tenir compte du phénomène de sédimentation. Le temps de résidence réel dans l'estuaire aval est donc certainement plus long, de l'ordre de quelques années. Pour comparaison, pour l'estuaire de la Gironde, Saari

(2008) a mesuré un temps de résidence des particules variable en fonction des saisons : il serait de 400 jours en étiage et seulement de quelques mois en période de crue. Ce temps de résidence est du même ordre que celui que nous pouvons observer dans l'estuaire fluvial de la Seine.

6. Conclusion

L'un des objectifs principaux de ce travail de thèse est de reconstituer l'historique de la contamination dans l'estuaire fluvial de la Seine. Dans ce chapitre, nous avons montré que cet objectif n'aurait pu être atteint en l'absence d'un carottage en amont du barrage de Poses. Cette carotte prélevée près de la limite aval du fleuve (Bouafles) représente le témoin de l'ensemble des apports du bassin versant de la Seine ; elle est un élément clef dans la détermination et surtout la quantification des sources de contaminants dans l'estuaire fluvial de la Seine.

Beaucoup de sources de contaminants ont été répertoriées dans des études antérieures, en particulier dans le cadre des travaux du programme scientifique PIREN-Seine. Une autre source de contaminants originaire de la Seine fluviale est composée par des radionucléides émetteurs alpha ; elle a été bien documentée durant ce travail, à l'appui des informations sur les rejets fournies par une installation nucléaire de la région parisienne. Enfin, une importante source intra-estuarienne de contaminants, jusqu'alors connue mais non quantifiée, a été documentée au cours du projet RHAPSODIS du programme Seine-Aval : il s'agit des rejets de phosphogypses, sous-produits industriels incluant des quantités considérables d'éléments chimiques.

La présente étude a permis de reconstituer l'histoire de cette contamination qui a considérablement marqué les sédiments estuariens. Ayant identifié les sources de contamination intra-estuariennes, nous avons pu constater que l'excès d'Y était uniquement issu des rejets de phosphogypses. A partir de ce marqueur, par comparaison des rejets de phosphogypses avec les concentrations d'Y mesurées dans nos carottes sédimentaires rigoureusement datées, il a été possible d'estimer à environ 0,6 an le temps de résidence moyen des particules dans l'estuaire fluvial de la Seine.

Les sources des contaminants associés aux sédiments prélevés dans la Darse des Docks sont nombreuses et variées et leur identification n'est pas toujours aisée. Le travail de comparaison effectué à partir des différents sites de carottage est un élément essentiel à la discrimination des sources. La multiplication des sites de carottage pourrait permettre de préciser la localisation des sources de contaminants, mais les sites potentiels de préservation des sédiments à l'échelle du dernier siècle le long de la basse vallée de la Seine, tel celui de la Darse des Docks, sont extrêmement rares.

CHAPITRE VII :
Identification du pompage tidal
dans l'estuaire fluvial de la Seine ;
essai de quantification entre 1980 et 2000

1. Introduction

Dans les estuaires macrotidaux, l'asymétrie de la courbe de marée engendre un transport résiduel de matériel sédimentaire, en particulier en suspension et d'origine marine, vers l'amont (Salomon and Allen, 1983).

Dans ce chapitre, nous chercherons à quantifier la part de sédiment d'origine marine pouvant atteindre l'estuaire fluvial selon ce processus. Pour ce faire, nous comparons les rapports d'activité de certains radionucléides dans les sédiments de nos sites d'étude. Le préalable nécessaire est d'évaluer la représentativité en sédiments marins du site le plus aval (la Vasière Nord), ce qui est fait à partir de mesures réalisées sur des sédiments carottés à l'extérieur de l'estuaire (rade de Cherbourg). Puis, après avoir établi le bilan des connaissances sur le pompage tidal dans l'estuaire de la Seine, nous recherchons ses modalités dans l'estuaire fluvial et évaluons la proportion de matériel qu'il concerne.

2. Caractérisation des apports marins à la Vasière Nord

Du fait de son emplacement, la Vasière Nord reçoit des apports du bassin versant de la Seine, mais elle est aussi ouverte aux apports d'origine marine. Le stock sédimentaire présent dans l'estuaire aval est considérable ; en plus de la présence du bouchon vaseux (de 100 000 à 300 000 T) qui représente quantitativement 2 à 6 fois les apports annuels en provenance du bassin versant selon les années (Dupont et al., 2001), il existe un stock sédimentaire important sur les vasières internes et sur les zones subtidales internes et externes à l'estuaire ; ces sédiments sont potentiellement remobilisables. Les particules en provenance directe du bassin versant sont donc mélangées dans un stock beaucoup plus important, dont l'origine est ubiquiste (Avoine, 1986 ; Dubrulle-Brunaud, 2007).

2.1. Origine des radionucléides associés aux sédiments du site de la Vasière Nord

L'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague a commencé son activité en 1966. Selon Boust et al., (2002), il faut 10 ans pour que les particules sédimentaires marquées par les rejets de cette installation parviennent à l'embouchure de la Seine. Les sédiments marqués par les rejets de l'usine ne peuvent donc s'être déposés au niveau de la Vasière Nord avant 1976 environ.

Nous disposons d'analyses effectuées dans le cadre d'une étude antérieure sur la rade de Cherbourg (Boust, com. pers.). Une quinzaine de carottes y ont été prélevées entre 1981 et 1997 avec des analyses des ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sur des niveaux sédimentaires datés. Le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ y est compris entre 0,4 et 1,8 et en moyenne autour de 0,9 (Figure 181).

Dans la Darse des Docks, ce rapport est plus élevé : de 1,6 à 11,3 ; cette valeur maximale ne concerne toutefois qu'un seul échantillon (daté autour de 1965), la seconde valeur maximale étant de 3,3. Sur ce site, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ est en moyenne de 2,7 (Figure 181).

Dans les sédiments de la Vasière Nord, on distingue deux périodes correspondant à des rapports d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ très différents :

- de 1965 à 1975, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ est compris entre 2,7 et 3,2 ; il est en moyenne de 2,9.
- de 1979 à 2002, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ devient entre 0,7 et 1,1 ; il est en moyenne de 0,9 (Figure 181).

Avant 1976, seuls les radionucléides associés aux apports issus du bassin versant de la Seine peuvent marquer les sédiments de la Vasière Nord. Ceci explique que les sédiments de la Darse des Docks et ceux de la Vasière Nord soient caractérisés par des rapports d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ comparables pendant la période 1965 à 1975. Ce n'est donc qu'à partir de 1976 que les sédiments de l'embouchure peuvent contenir des particules marquées par l'usine de La Hague, puis pénétrer dans l'estuaire avec un temps de transit nécessaire à la remontée résiduelle. A partir de 1979, on remarque une nette baisse du rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ dans les sédiments de la Vasière Nord ; les valeurs de ce rapport deviennent alors semblables à ceux des carottes prélevées dans la rade de Cherbourg. Il semble donc que les apports marins sur ce site soient suffisamment conséquents pour que le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ des sédiments diminue nettement avec les premiers apports de radionucléides issus des rejets de l'usine de retraitement de La Hague.

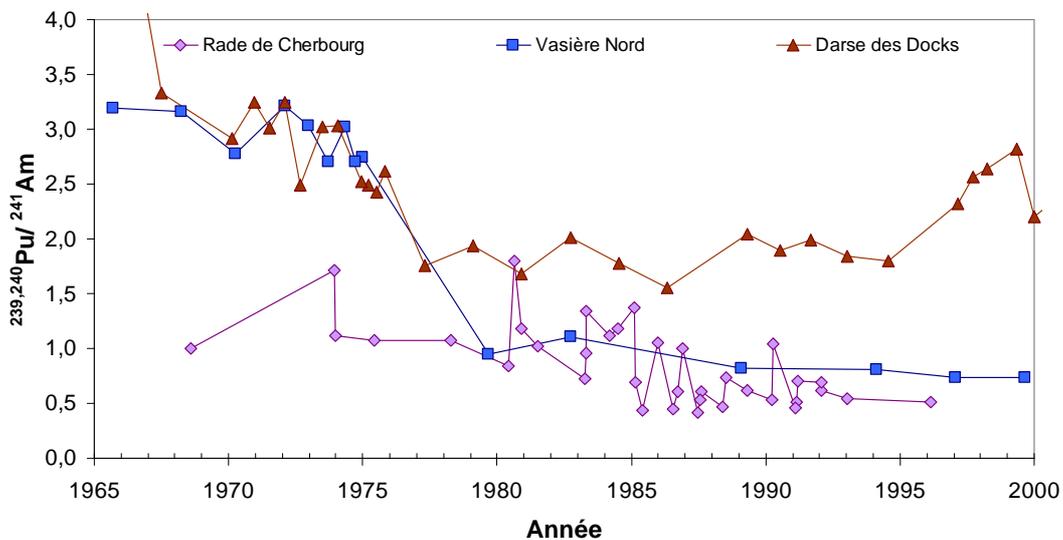


Figure 181 : Rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ dans les carottes prélevées dans la rade de Cherbourg (violet), sur la Vasière Nord (bleu), et dans la Darse des Docks (marron).

De plus, les activités en ^{241}Am dans les sédiments de la Vasière Nord augmentent considérablement entre 1975 et 1979, avec des activités passant d'environ 200 mBq.kg^{-1} à environ 3000 mBq.kg^{-1} (Figure 182). Les activités en ^{241}Am au niveau de la Darse des Docks n'excèdent jamais quant à elles 450 mBq.kg^{-1} ; même s'il peut y avoir une différence liée à la granulométrie, il ne peut expliquer des teneurs en ^{241}Am aussi fortes sur le site de la Vasière Nord. Les activités en ^{241}Am étant en moyenne de 24 000 mBq.kg^{-1} dans les sédiments de la rade de Cherbourg, ce sont donc les

apports en radionucléides d'origine marine qui engendrent les activités élevées mesurées sur le site de la Vasière Nord.

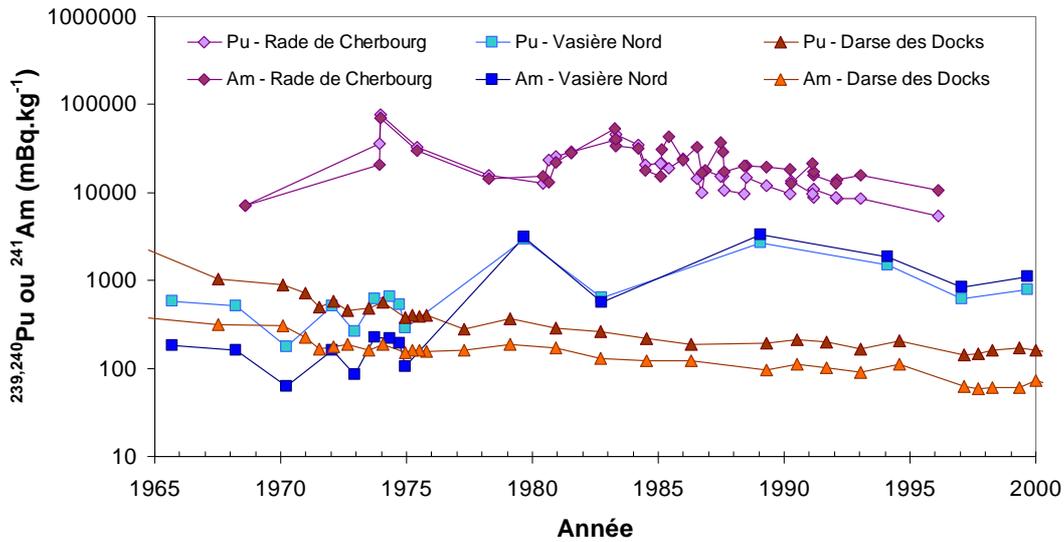


Figure 182 : Activités en $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am dans les carottes prélevées dans la rade de Cherbourg (violet), sur la Vasière Nord (bleu), et dans la Darse des Docks (marron) ; exprimées en mBq.kg^{-1} .

Nous allons maintenant chercher à quantifier la part de radionucléides d'origine marine et celle d'origine continentale sur le site de la Vasière Nord entre 1979 et 2002.

2.2. Quantification des apports marins à la vasière Nord

Pour quantifier les apports de sédiments marins à la Vasière Nord, nous utilisons des modèles de mélange qui visent à déterminer la quantité de sédiments marins nécessaire à ce que le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ atteigne des valeurs comprises entre 0,7 et 1,1 sur ce site (caractéristiques de 1979 – 2002). Nous avons testé ces modèles sur trois années : 1990, 1995 et 2000 (Figure 183). Pour les sédiments issus de la rade de Cherbourg, les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am utilisées pour ces modèles sont respectivement ceux des années 1990, 1995 et 2000 (considérant que le parcours des particules entre le méridien de Cherbourg et l'embouchure de la Seine est d'environ 10 ans).

Les activités en $^{239,240}\text{Pu}$ et en ^{241}Am des particules circulant dans cette partie de la Manche étant nettement supérieures à celles des sédiments du bassin versant de la Seine, il apparaît *a priori* qu'une infime partie de matériel marin (1 à 2 %) est suffisante pour que le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ soit semblable à celui des carottes de la rade de Cherbourg. Pour l'année 1995 (Figure 183), il apparaît que seulement 3 % d'apports de particules d'origine marine sont nécessaires pour que le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ dans les sédiments de la Vasière Nord soit semblable à celui des sédiments de la rade de Cherbourg. Ce n'est pas le cas pour les deux autres années testées, pour lesquelles le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ calculé sur les sédiments de la Vasière Nord est légèrement inférieur à celui des sédiments des carottes de la rade de Cherbourg. Cela signifie que pour ces deux années le rapport d'activité est similaire à celui des sédiments marins. Il est difficile de tirer des conclusions

quant à la proportion d'apports d'origine marine sur le site de la Vasière Nord : en effet, entre 0 et 90 % d'apports marins, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ évolue peu. En tenant compte de l'erreur sur les mesures, on peut même affirmer que ces variations ne sont pas significatives. L'évolution précise des rapports d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ est difficile à interpréter.

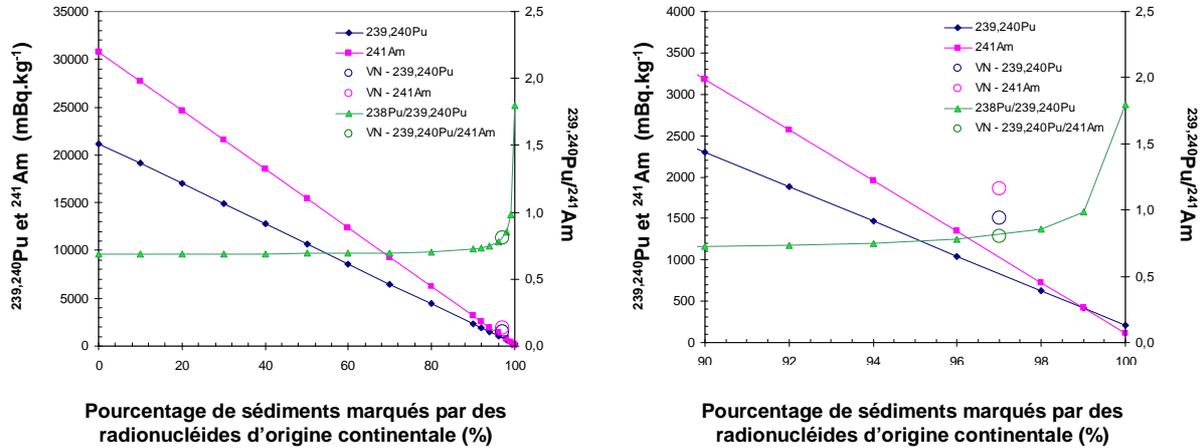


Figure 183 : Modèle de mélange construit à partir du rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ pour la quantification de la proportion de sédiments marqués par des radionucléides issus du bassin versant ; le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ de la rade de Cherbourg est porté sur l'axe à 0 %, celui de la Darse des Docks est porté sur l'axe à 100 % ; exemple de l'année 1995. Le graphique de droite est un zoom de la partie 90-100 % de l'axe des abscisses du graphique de gauche.

Toujours est-il que les sédiments de la Vasière Nord, sont représentatifs des sédiments marins en ce qui concerne le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ à partir de 1979. Ils peuvent donc être utilisés comme traceurs pour identifier et quantifier la remontée de particules marines dans l'estuaire amont.

3. Le pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine

3.1. Définition du pompage tidal

Dans les estuaires, l'onde de marée subit des déformations en se propageant vers l'amont (Salomon and Allen, 1983) (Figure 184). Parmi elles, l'asymétrie de l'onde qui correspond à la différence de propagation de la vitesse lors de la marée montante et de la marée descendante est, avec la circulation résiduelle de densité liée à la différence de salinité, l'une des causes de l'existence d'un bouchon vaseux situé dans la partie aval des estuaires macrotidaux (Brenon and Le Hir, 1999). Ce transport, qui entraîne une remontée résiduelle de particules marines, est nommé "pompage tidal" (*tidal pumping*). Dans le cas de la Seine, il a été détecté jusque dans l'estuaire fluvial (Boust et al., 2002).

Les ondes de marée océaniques, sinusoïdales, subissent aux abords des côtes, et à mesure que les profondeurs diminuent, plusieurs types de déformations (Figure 184) :

- une asymétrie causée par la diminution de hauteur d'eau vers l'amont ;
- une réduction du marnage du fait du frottement sur les fonds ;

- une augmentation du marnage due au rétrécissement des sections vers l'amont.

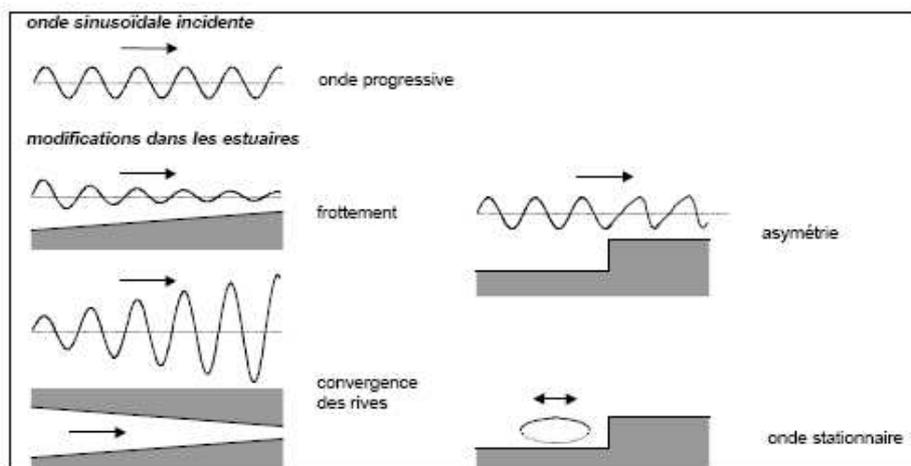


Figure 184 : Modifications de l'onde de marée dans les zones côtières (D'après Salomon and Allen, 1983 ; in Guézennec, 1999)

De l'asymétrie de l'onde de marée découle une asymétrie des vitesses de courants (Figure 185) : les courants de flot (montant) sont plus puissants que les courants de jusant (baissant). Ainsi, la quantité de MES transportée lors du flot vers l'amont et déposée lors de l'étape de pleine mer, ne sera pas totalement reprise vers l'aval lors du baissant par le courant de jusant suivant (Le Hir et al., 2001). Le pompage tidal existe donc si, au cours d'un cycle semi-diurne, des particules d'origine aval demeurent préservées en un lieu donné de l'estuaire. Au cours d'un cycle suivant, ces particules sont susceptibles d'être reprises puis transportées un peu plus amont.

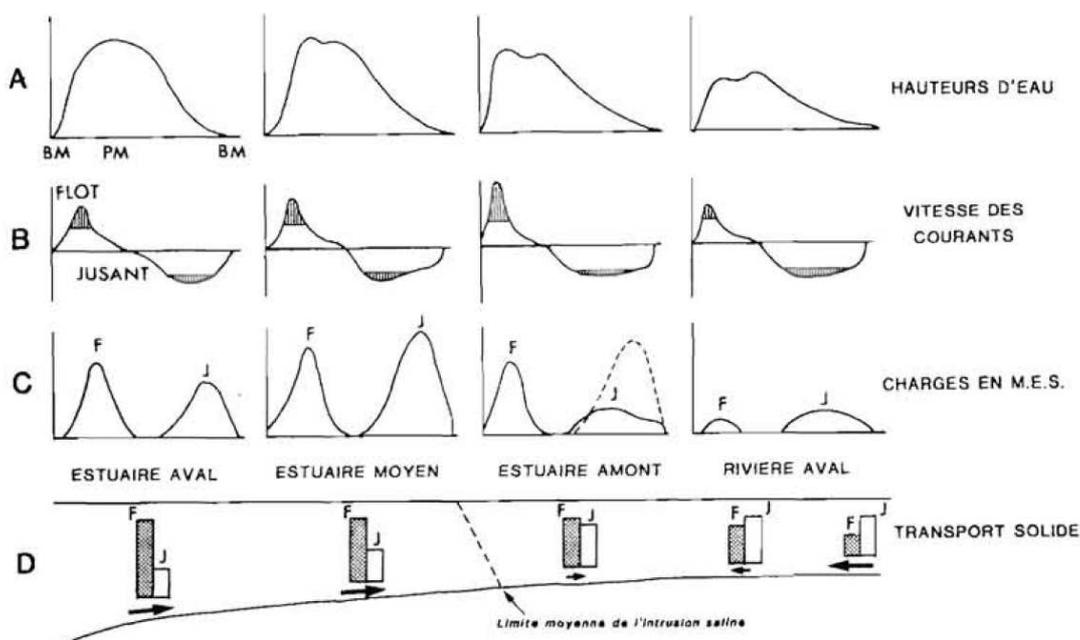


Figure 185 : Evolution schématique des principaux paramètres physiques dans les estuaires macrotidaux de la Baie de Seine. Conditions de vives-eaux et d'étiage (F : flot ; J : Jusant) (Avoine et al., 1986).

Le processus qui permet la remontée progressive de MES en amont d'un estuaire sur de longues distances est très lent, et est considérablement limité par le débit du fleuve. Si plusieurs années de

débits modérés peuvent permettre une résultante sur des distances importantes, le processus peut être contrarié par une crue importante.

3.2. Le pompage tidal dans quelques estuaires

Le phénomène a été étudié dans les estuaires macrotidaux, principalement dans leur partie aval (Li and Zhang, 1998 ; Uncles et al., 1985). Cependant, il a aussi été relevé en amont de la limite de salinité (Uncles et Stephens (1993) in Guézennec (1999) ; (Castaing, 1981)). Dans l'estuaire marin du Konkouré (estuaire tropical), le pompage tidal a lieu pendant la saison sèche ; durant cette période, les MES envahissent l'estuaire et la plaine côtière. En période de crue, les MES sont expulsées hors du système (Capo et al., 2009). Ce phénomène est ici plus efficace en période d'étiage, mais il est tout de même présent avec des débits de rivière relativement élevés. Dans l'estuaire macrotidal de Daly (Australie), une imposante formation sédimentaire est créée par les apports fluviaux. Les sédiments apportés par le fleuve peuvent être réintroduits dans l'estuaire par pompage tidal. Il faut 3 années de faibles débits suivant une année de forts débits pour que l'ensemble des sédiments soient remobilisés (Wolanski et al., 2006). Il s'agit un phénomène spécifique à chaque estuaire, et la quantification des processus qu'il engendre est difficile à établir.

3.3. Le pompage tidal dans l'estuaire de la Seine

Tout comme dans d'autres estuaires macrotidaux, le pompage tidal est associé dans l'estuaire de la Seine à l'asymétrie de l'onde de marée (Figure 186), la réduction importante de la durée du montant induisant une augmentation rapide des courants de flot après la basse mer (Avoine et al., 1986).

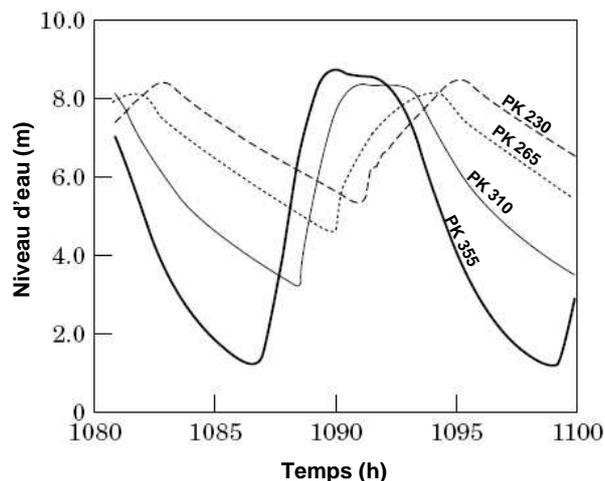


Figure 186 : Evolution de la hauteur d'eau dans l'estuaire de la Seine durant un cycle semi-diurne de marée (Brenon and Le Hir, 1999).

La modélisation du processus de mise en place du bouchon vaseux dans l'estuaire de la Seine a souligné l'importante contribution de l'asymétrie de marée dans la formation de cette masse turbide (Brenon and Le Hir, 1999). Le phénomène a été essentiellement remarqué en période d'étiage où des

matériaux fins se trouvent stockés dans l'estuaire (Deloffre, 2005 ; Lesourd et al., 2003).

Dans l'estuaire de la Seine, le pompage tidal est responsable du transport de particules marines plus en amont que dans la zone du bouchon vaseux. Selon Guézennec (1999), cela est rendu possible par la présence de zones transitoires de piégeage des particules. De petites quantités de MES d'origine marine remontent l'estuaire en période d'étiage à la faveur des vives-eaux par une série de bonds successifs entre ces zones de dépôt (Guézennec, 1999). Dans les MES de l'estuaire fluvial, des particules (Guézennec, 1999) et des radionucléides (Boust et al., 2002), tous d'origine marine, ont été identifiés. Il est cependant encore difficile de définir les conditions optimales qui engendrent la remontée de ces particules.

Des mesures de radionucléides artificiels, effectuées sur des sédiments de surface prélevés à différents endroits de l'estuaire, ont permis de mettre en évidence le parcours de particules d'origine marine. L'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague a effectué des rejets contrôlés de ^{60}Co et ^{137}Cs dont le ratio est connu. Les sédiments marqués par ces radionucléides ont donc pu être suivis et détectés à 80 km en amont de l'embouchure de la Seine et leur vitesse moyenne de progression a été estimée à 10 km.an^{-1} (Boust et al., 2002).

Le pompage tidal est donc un phénomène reconnu dans l'estuaire fluvial de la Seine, mais quelles sont les conditions de son fonctionnement dans cette partie de l'estuaire ? La quantité de particules d'origine marine apportée par pompage tidal est-elle importante ? L'étude de radionucléides artificiels dans les carottes sédimentaires de la Darse des Docks, de Bouafles et de la Vasière Nord, doit nous permettre de donner des éléments de réponse à ces questions.

Après avoir présenté la méthodologie utilisée pour définir les variations d'intensité du pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine, nous discuterons de ces résultats et tenterons de repérer les conditions hydrologiques qui lui sont les plus favorables.

4. Identification et quantification du pompage tidal au niveau de Rouen entre 1980 et 2000: méthode et résultats

Afin d'identifier le pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine, nous allons travailler sur les rapports d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ de chaque site. Ce rapport étant caractéristique de chaque source d'émission, il permet de tracer les particules sédimentaires. Nous allons dans un premier temps faire une comparaison inter-site de ce rapport d'activité, puis à partir de modèles de mélange, nous tenterons de quantifier la part de sédiment d'origine marine apportée au fleuve.

4.1. Utilisation des radionucléides $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am

4.1.1. Origine des radionucléides utilisés

Pour rappel, trois sources de Pu et d'Am (Figure 187), radionucléides artificiels, sont recensées :

les essais d'armes, les rejets d'installations et les accidents nucléaires (Chapitre VI).

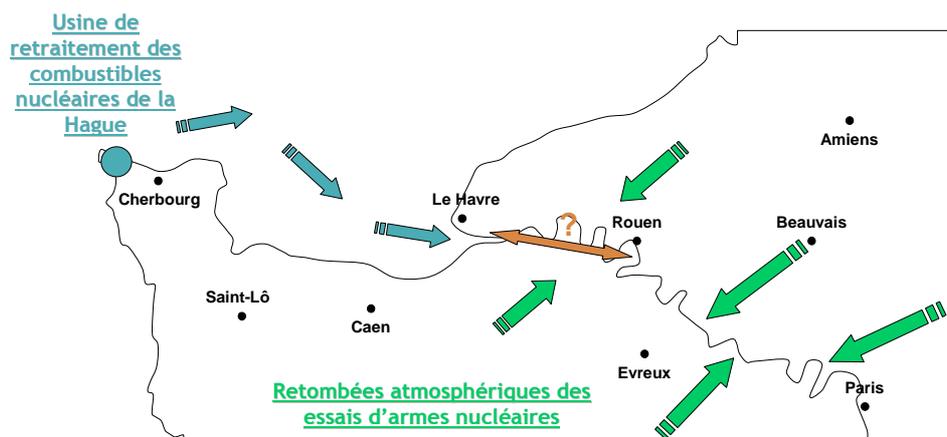


Figure 187 : Sources et trajets schématiques des radionucléides apportés à l'estuaire de la Seine.

4.1.2. Rapports d'activité des radionucléides $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am

Les sources de ces deux éléments sont bien distinctes et connues. Le site de Bouafles, situé en amont du barrage de Poses, ne recevra donc que les apports des sources amont, alors que la Vasière Nord recevra en grande majorité les apports de la source aval (usine de retraitement de La Hague), les apports des radionucléides continentaux étant pour ce dernier site en quantité négligeable devant les apports marins à partir de 1975. En effet, ces derniers sont caractérisés par un rapport d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ proche de 1, tandis que les apports continentaux ont un rapport d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ plus élevé, entre 1,8 et 12, mais proche de 2 à partir de 1980. En connaissant le rapport d'activités de chaque site (Bouafles, Darse des Docks et Vasière Nord) à une époque donnée, il est d'abord possible de déterminer si le site de la Darse des Docks a reçu une part de sédiment provenant de l'aval et ensuite de quantifier la contribution de cet apport par rapport aux matériels provenant de l'amont, évidemment très majoritaire.

4.2. Evolution au cours du temps du rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ en chaque site et comparaison inter-sites

4.2.1. Etude des données en chaque site et interpolation

Afin de pouvoir comparer les données entre les sites, il est nécessaire d'avoir pour chacun d'eux des données à des dates communes ; il faut donc interpoler les valeurs entre les échantillons mesurés à des dates différentes. Le pas de temps choisi est le dixième d'année. Pour garder dans le jeu de données de chaque site les maxima et les minima mesurés, à chaque valeur réellement mesurée est affecté, pour rappel, le dixième d'année le plus proche de la date réellement attribuée. Par exemple, l'échantillon 2VC1A-020 est daté à 1991,43 : on lui attribue alors la date de 1991,4. Entre deux valeurs mesurées, on interpole les valeurs de façon linéaire.

4.2.2. Identification des périodes de pompage tidal

Après avoir obtenu une valeur tous les dixièmes d'année sur chaque site pour les radionucléides $^{239,2340}\text{Pu}$ et ^{241}Am , le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ est calculé pour les trois sites tous les dixièmes d'années. On superpose ensuite sur un même graphique les rapports d'activité des 3 sites en fonction du temps (Figure 188). Lorsque les valeurs des sites de Bouafles et de la Darse des Docks sont semblables, il n'y a pas de pompage tidal : l'ensemble des radionucléides apportés à la Darse des Docks provient de l'amont. Lorsque le rapport d'activités est significativement plus faible dans les sédiments de la Darse des Docks par rapport aux sédiments de Bouafles, cela signifie que la Darse des Docks a reçu des apports de l'aval qui ont engendré une diminution du rapport d'activité. Il devient donc possible de repérer les périodes où le pompage tidal est actif et d'estimer son intensité.

Sur la Figure 188, on repère deux périodes où le pompage tidal est significatif : de 1980 à 1987 puis de 1992 à 1996 (barres d'erreur non recouvrantes).

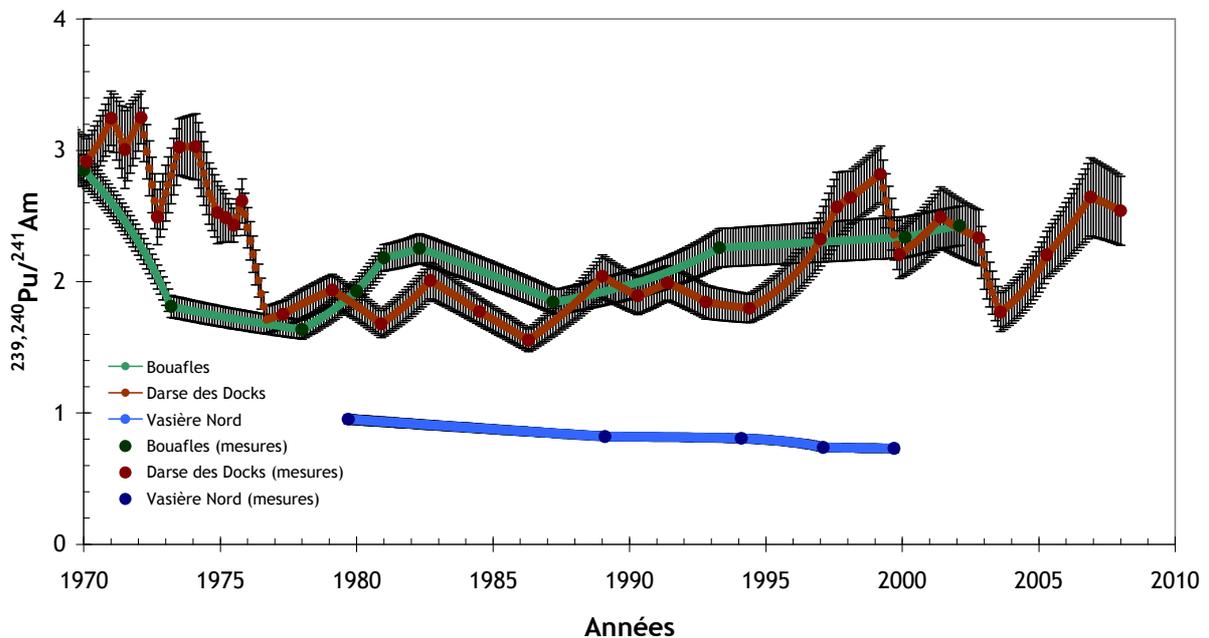


Figure 188 : Rapport d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ sur les 3 sites d'étude en fonction du temps.

On note que le rapport d'activité des sédiments de la Darse des Docks est, pendant d'autres périodes, supérieur à celui de Bouafles. Dans les années 1960, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ atteint la valeur de 11. En 1973, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ est de 1,8 à Bouafles alors qu'il est de 3,0 à la Darse des Docks. Cependant, en ajoutant à un échantillon de Bouafles 5 à 6 % d'un sédiment datant de l'année 1961, on obtient un rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ de 3, soit celui de la Darse des Docks. Or, l'historique de la Darse des Docks fourni par le GPMR (Annexe A) indique que des dragages ont eu lieu jusqu'en 1979 ; les valeurs du rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ de la Darse des Docks supérieures à celles de Bouafles dans les années 1970 sont donc expliquées par des remises en suspension de matériel ancien dû à ces dragages. Cette situation est encore observée par la suite

(1989, 1997 à 1999) mais de manière moins nette (recouvrement partiel des bandes d'incertitude) ; pour ces périodes, on ne peut pas conclure par manque de données plus précises à Bouafles.

4.3. Quantification du phénomène de pompage tidal au cours du temps

4.3.1. Exemple de quantification du pompage tidal pour une année donnée

Pour chacune des années représentées sur le graphique (Figure 188), le pourcentage de radionucléides provenant de l'aval a été quantifié. Pour cela, un modèle de mélange est établi à un pas de temps annuel. Pour une année donnée, 1995 par exemple (Figure 189), les mesures de $^{239,240}\text{Pu}$ et de ^{241}Am effectuées sur la carotte de la Vasière Nord sont considérées comme représentatives du matériel marin ; de même, les mesures de $^{239,240}\text{Pu}$ et de ^{241}Am effectuées sur la carotte de Bouafles représenteront les apports continentaux. Ainsi sur la Figure 189, les valeurs de la Vasière Nord sont placées sur l'abscisse à "0 % de radionucléides provenant de l'amont" et les valeurs de Bouafles sont placées sur l'abscisse à "100 % de radionucléides provenant de l'amont". Entre ces valeurs, nous interpolons les données de façon linéaire et le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ est ensuite calculé (valeurs en vert, Figure 189).

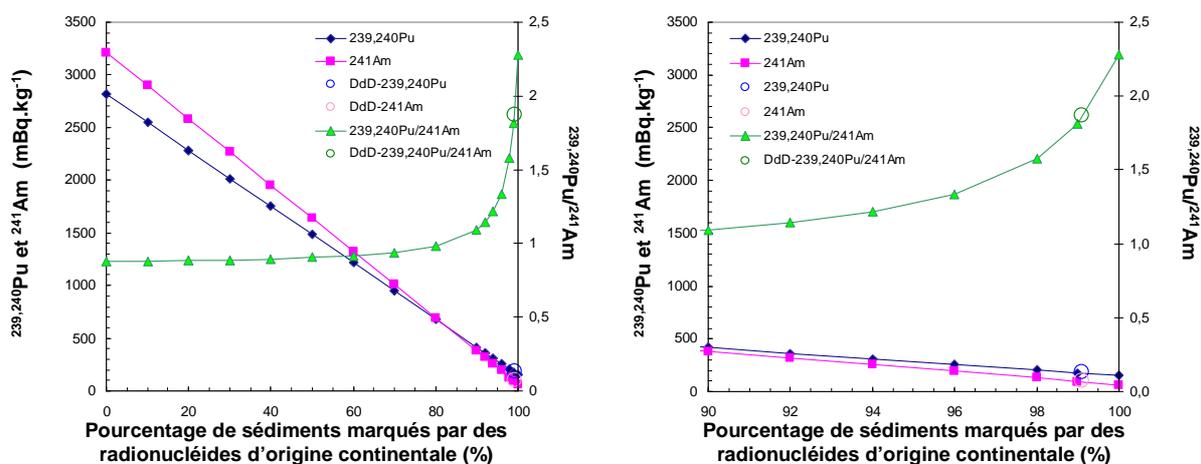


Figure 189 : Modèle de mélange effectué à partir du rapport d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ pour la quantification de la proportion de sédiments marqués par des radionucléides issus du bassin versant ; le rapport $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ de la Vasière Nord est porté sur l'axe à 0 %, celui de Bouafles est porté sur l'axe à 100 %, les valeurs sont extrapolées entre ces deux points. Exemple de l'année 1995. Le graphique de droite représente un zoom de la partie 90-100 % de l'axe des abscisses du graphique de gauche.

A partir des rapports d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ calculés entre les sites de la Vasière Nord et de Bouafles, le rapport d'activité $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ correspondant à la Darse des Docks est recherché ; le pourcentage de particules provenant du bassin versant amont est alors obtenu. Le pourcentage de radionucléides provenant de l'aval en est déduit : pour l'année 1995, on trouve la valeur de 1 %.

Cette opération est reproduite pour les autres années et on obtient ainsi pour chaque année le pourcentage de radionucléides d'origine marine dans les sédiments de la Darse des Docks.

4.3.2. Quantification relative des apports de radionucléides d'origine marine à l'estuaire fluvial de 1980 à 2000

Le pompage tidal est un phénomène variable avec le temps et le pourcentage de radionucléides provenant de l'aval demeure très faible, entre 0 et 4 % (Figure 190). Il n'est mis en évidence qu'à partir de l'année 1979, ses traceurs (rejets de l'usine de retraitement de La Hague) n'existant qu'à partir de 1966 et il faut environ 15 ans pour que les premiers radionucléides issus de l'usine de retraitement de La Hague gagnent cette partie de l'estuaire fluvial (Figure 190).

Au cours de la période la plus récente, le pompage tidal est également peu visible. La Darse des Docks étant comblée en sédiment depuis la fin des années 1990 (Chapitre II), et la sédimentation n'a plus lieu qu'en période de crue (Vrel, 2009) ; ce sont donc des conditions peu favorables à la remontée de matériel marin (Paragraphe 3.3).

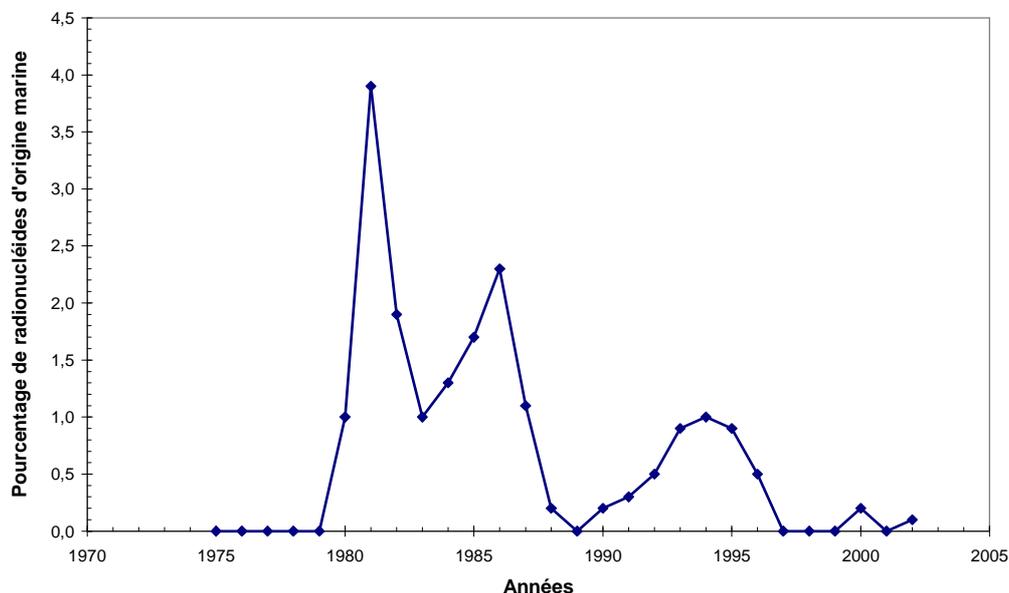


Figure 190 : Variation de l'intensité du pompage tidal en fonction du temps dans l'estuaire fluvial de la Seine.

4.3.3. Essai de quantification absolue des apports de sédiments d'origine marine à l'estuaire fluvial de 1980 à 2000

La Figure 190 présentant le pourcentage de radionucléides d'origine marine arrivant à l'estuaire fluvial chaque année, deux questions peuvent être posées :

- les valeurs étant exprimées en pourcentage, les variations observées sur la Figure 188 sont-elles dues à des variations d'intensité du pompage tidal ou aux apports continentaux qui changent au cours du temps ?
- peut-on estimer que le pourcentage de radionucléides d'origine marine est représentatif du pourcentage de sédiment d'origine marine ?

A partir de l'historique des flux annuels de MES mesurés au barrage de Poses (Seine-Aval, 2008), il a été possible de convertir le pourcentage de radionucléides d'origine marine en quantité de sédiments d'origine marine (Figure 191).

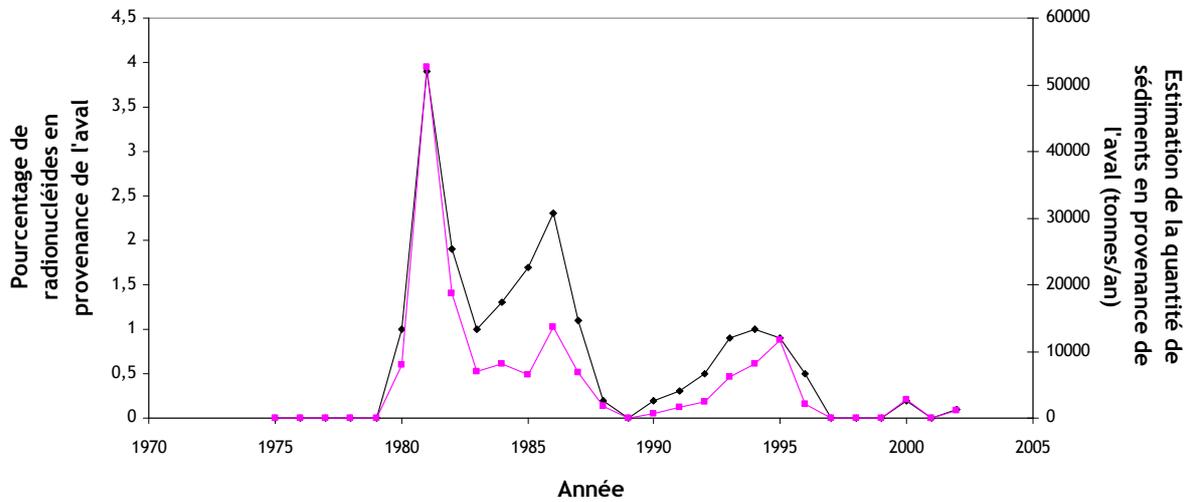


Figure 191 : Comparaison entre le pourcentage de radionucléides en provenance de l'aval (en noir) et la quantité estimée de sédiments en provenance de l'aval (en rose).

Le passage d'une quantité relative à une quantité absolue permet de mieux apprécier les variations du pompage tidal. Les deux courbes présentent cependant des allures similaires.

Les apports sédimentaires d'origine marine présentent une valeur maximale autour de 52 000 T.an⁻¹ et une valeur moyenne autour de 7 000 T.an⁻¹ en 20 ans.

Cette estimation doit être prise avec précaution, notamment du fait que les concentrations en radionucléides dépendent fortement de la granulométrie des particules. Les résultats exposés dans la Figure 191 sont basés sur le principe que les sédiments marins et continentaux ont la même répartition granulométrique. Si les sédiments apportés par pompage tidal sont plus grossiers que les sédiments provenant de l'amont, la Figure 191 sous-estime les apports en sédiments d'origine marine. Par contre, si les sédiments apportés par pompage tidal sont plus fins que les sédiments provenant de l'amont, la Figure 191 surestime les apports en sédiments d'origine marine.

D'après Lafite et al. (1998), la granulométrie des MES lors du jusant et lors du flot est différente en surface et au voisinage du fond. En surface, le sédiment est plus fin lors de la période de flot ; sur le fond, c'est le contraire, le sédiment est alors plus grossier (Figure 192).

Il est donc difficile de savoir si globalement, les sédiments transportés en flot, et donc concernant le pompage tidal, sont plus fins ou plus grossiers que ceux transportés en jusant.

En tout état de cause, il semble pertinent de considérer que le biais éventuellement induit par les différences de distribution granulométrique entre les stocks marins et fluviaux ne change pas de façon significative les estimations réalisées.

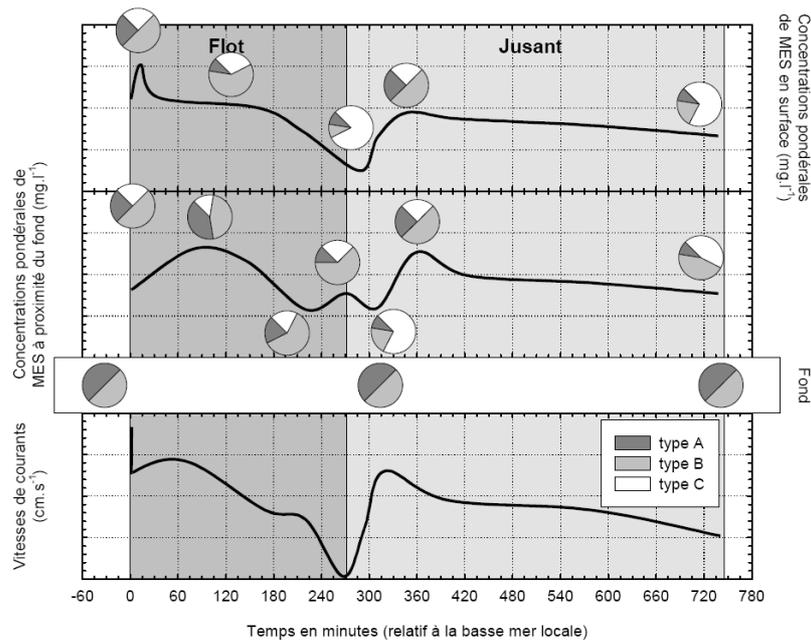


Figure 192 : Evolution des populations granulométriques au cours d'un cycle de marée ; type A : sablons, type B : silts grossiers, type C : silts fins et argiles (Lafite et al., 1998)

5. Quel lien entre pompage tidal, débit et marée ?

5.1. Pompage tidal et débit de la Seine

Les forts débits fluviaux sont un frein au pompage tidal. La Figure 193 représente le nombre de jours par an où le débit de la Seine est inférieur à $200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (marron), $300 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (orange) et $500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (jaune) en fonction du temps. On constate que le pourcentage de radionucléides d'origine marine ne semble pouvoir n'être corrélé à aucune de ces trois séries de données.

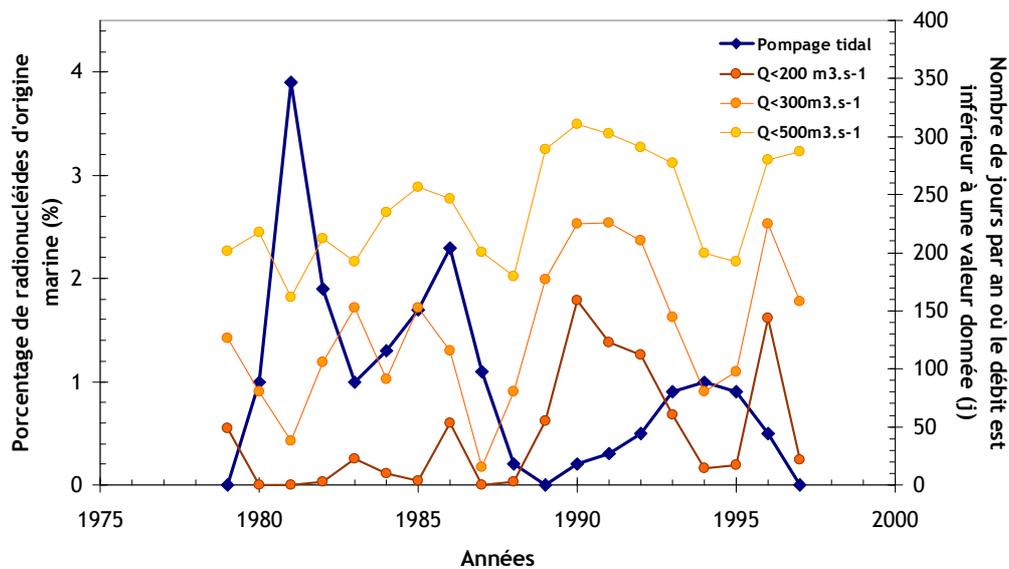


Figure 193 : Nombre de jours par an où le débit de la Seine >200 , >300 , $>500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (ordonnée à droite). Comparaison à l'intensité du pompage tidal (ordonnée à gauche).

D'après Boust et al. (2002), les radionucléides ayant besoin d'environ 10 ans pour atteindre

l'estuaire fluvial depuis l'embouchure, il est donc préférable de considérer le débit moyenné sur les 10 dernières années. La Figure 194 représente le nombre moyen de jours par an, pendant les 10 dernières années, où le débit est inférieur à $200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (marron), $300 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (orange) ou $500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (jaune). Les trois courbes présentent des valeurs minimales autour de 1989, en correspondance avec un arrêt du pompage tidal. Il semble donc que le nombre de jours de faibles débits sur les 10 dernières années constitue un paramètre favorable au pompage tidal.

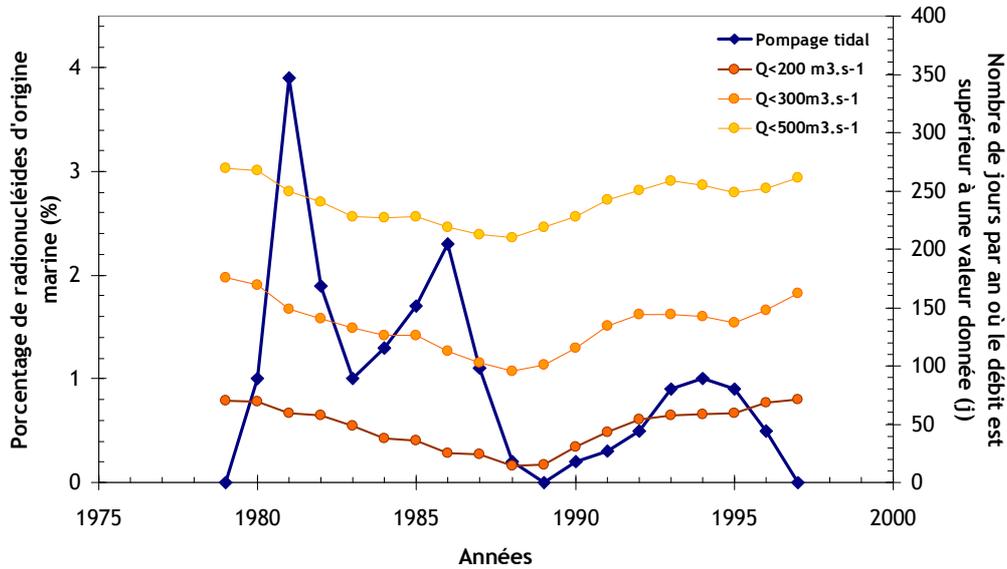


Figure 194 : Moyenne sur les 10 dernières années, du nombre de jours par an où le débit de la Seine >200 , >300 , $>500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ et comparaison à l'intensité du pompage tidal.

Cependant, le nombre de jours de faible débit a-t-il plus d'influence l'année en cours ? La Figure 195 est similaire à la Figure 194, mais des coefficients de pondération ont été attribués à chacune des 10 années précédentes, permettant à l'année en cours d'être 4 fois plus représentée que les autres.

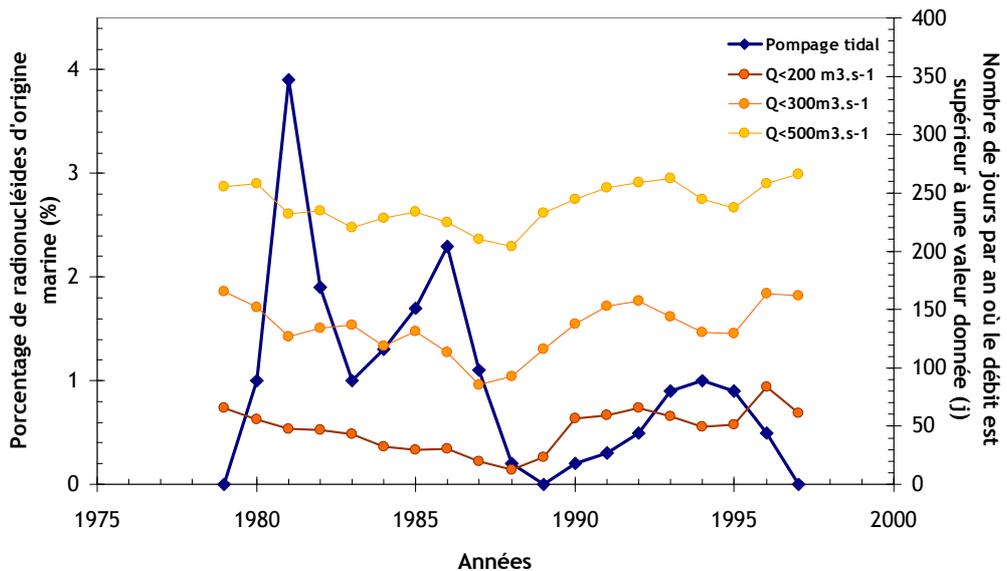


Figure 195 : Influence du débit au cours des 10 dernières années : Indice du nombre de jours par an où le débit de la Seine >200 , >300 , $>500 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$; un coefficient permet d'attribuer 4 fois plus d'importance à l'année en cours. Comparaison à l'intensité du pompage tidal.

Différents essais ont été effectués pour l'attribution de ces coefficients. L'essai présenté sur la Figure 195 a semblé le plus pertinent. Il semble que la corrélation entre l'intensité du pompage tidal et le débit des 10 dernières années soit moins bonne sur la Figure 195 que sur la Figure 194. Cette tentative d'amélioration n'apporte rien de mieux.

5.2. Pompage tidal / débit / marée

En plus du débit fluvial, facteur limitant, le pompage tidal étant généré par la marée, les variations de cette dernière doivent être prises en compte dans son fonctionnement à long terme. La marée obéit à de nombreux cycles : semi-diurne, diurne, semi-lunaire, lunaire, semi-annuel ; il existe également des cycles pluriannuels dont l'important cycle du Saros, de 18,6 ans (Fischer and Bottjer, 1991). La marée ne se reproduit donc pas à l'identique d'une année à l'autre et le couplage entre l'intensité du débit de la Seine et l'intensité de la marée varient. Ainsi, il est possible qu'une année enregistre de très fortes marées lors de crues et qu'il se produise le contraire l'année suivante.

Plusieurs tests sont donc effectués ci-après pour trouver la meilleure corrélation entre pompage tidal et couplage débit-marée.

La Figure 196 représente d'une part l'intensité du pompage tidal par le pourcentage de radionucléides d'origine marine, et d'autre part, la moyenne sur les 10 dernières années du nombre de jours par an où pour un débit inférieur à $300 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 (de marée moyenne à vive-eau moyenne).

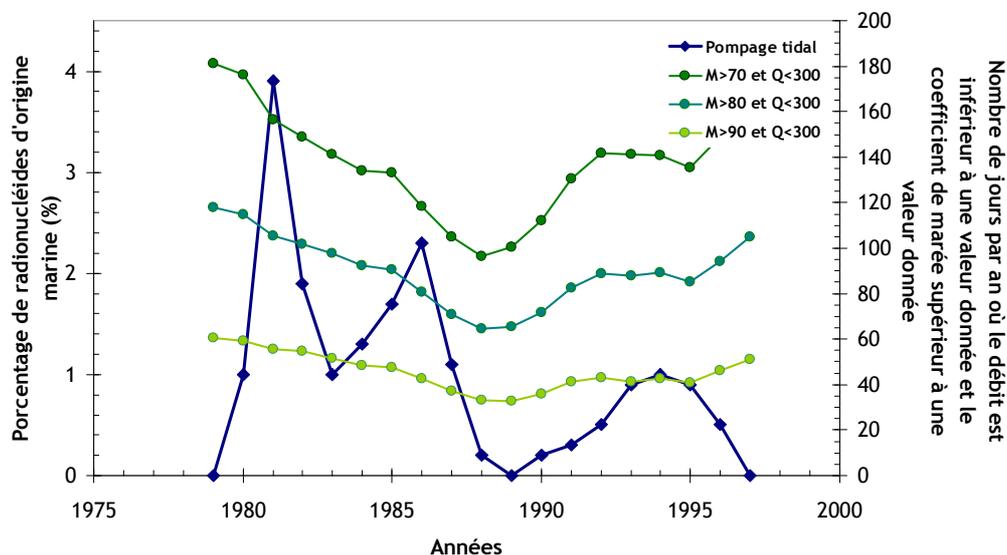


Figure 196 : Moyenne sur les 10 dernières années du nombre de jours par an où, pour un débit inférieur à $300 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; comparaison à l'intensité du pompage tidal.

Cette figure montre une légère corrélation entre l'intensité du pompage tidal et les courbes représentant les forçages marée-débit : à la fin des années 1980, la diminution de l'intensité du pompage tidal semble pouvoir être mise en relation avec la diminution du nombre moyen de jours avec faibles débits et fortes marées. Cependant la corrélation n'étant pas idéale, d'autres valeurs ont

été testées (Figure 197).

La Figure 197 est semblable à la Figure 196, à ceci près que les jours sont comptabilisés pour des débits inférieurs à $200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (au lieu de 300) : la relation apparaît plus pertinente.

Pour expliquer le pompage tidal, le facteur "débit fluvial" est donc important, surtout en le couplant au critère "intensité de la marée".

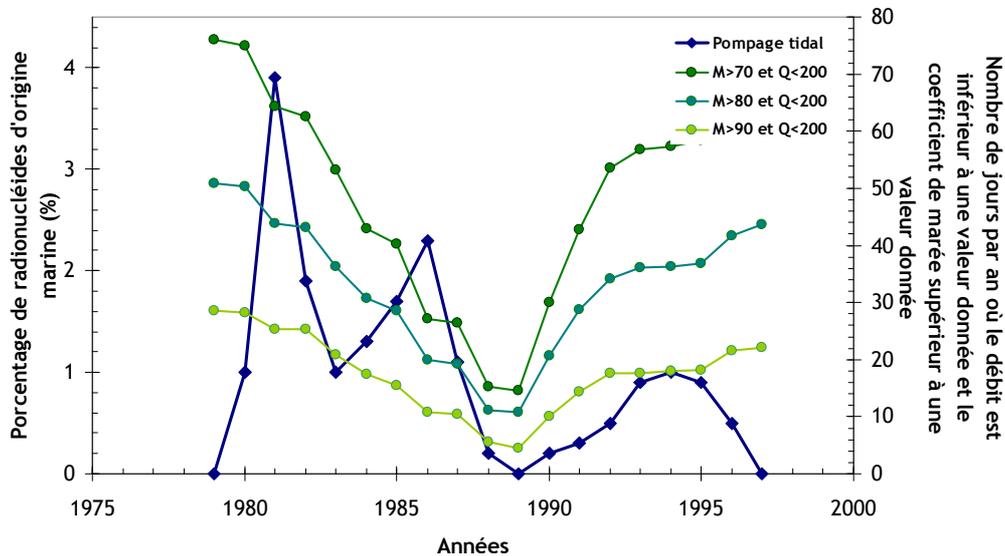


Figure 197 : Moyenne sur les 10 dernières années du nombre de jours par an où, pour un débit inférieur à $200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; comparaison à l'intensité du pompage tidal.

La comparaison comporte tout de même des différences, surtout autour de 1983. Les paramètres hydrologiques ont été moyennés sur la période des 10 dernières années, mais des questions se posent : (1) les années récentes n'ont-elles pas plus d'influence sur l'intensité du pompage tidal que les années plus anciennes ? (2) ne faut-il pas donner plus d'importance à l'année en cours ?

Sur la Figure 198, le poids de l'année en cours a été augmenté par l'attribution d'un coefficient de 3,5. La corrélation semble meilleure autour de 1985, il semble donc que les événements hydrologiques de l'année en cours soient d'une plus grande importance que ceux des années précédentes. Cependant, la corrélation semble moins bonne pour les années 1990.

Sur la Figure 199, l'importance donnée aux événements de l'année en cours est encore accentuée, puisque son influence a été augmentée par l'attribution d'un coefficient permettant de lui donner 7,5 fois plus d'importance que les autres années. La corrélation autour de 1985 est encore meilleure, mais elle se dégrade encore autour de 1990.

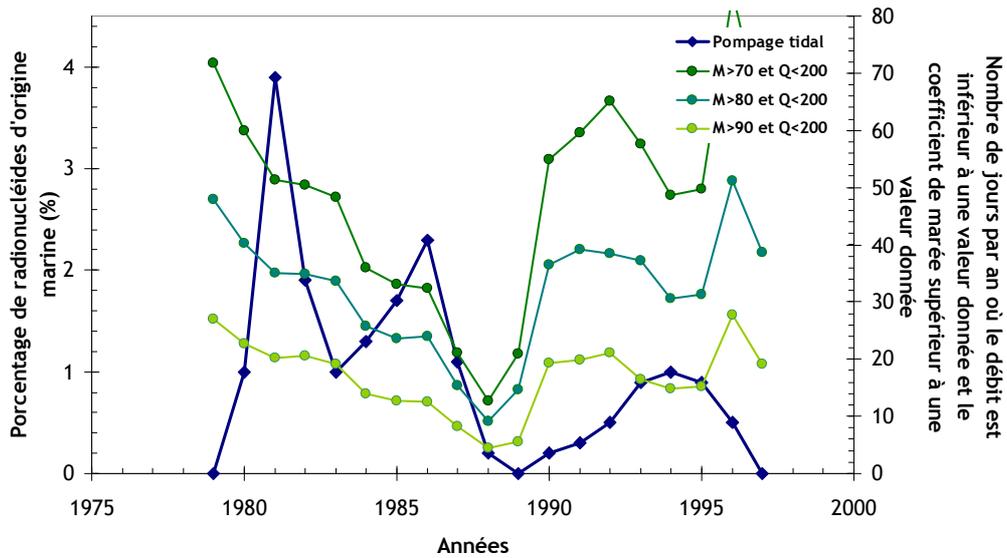


Figure 198 : Influence des coefficients de marée relevés pour un débit inférieur à $200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ sur les 10 dernières années. Indice du nombre de jours par an où le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; un coefficient permet d'attribuer 3,5 fois plus d'importance à l'année en cours.

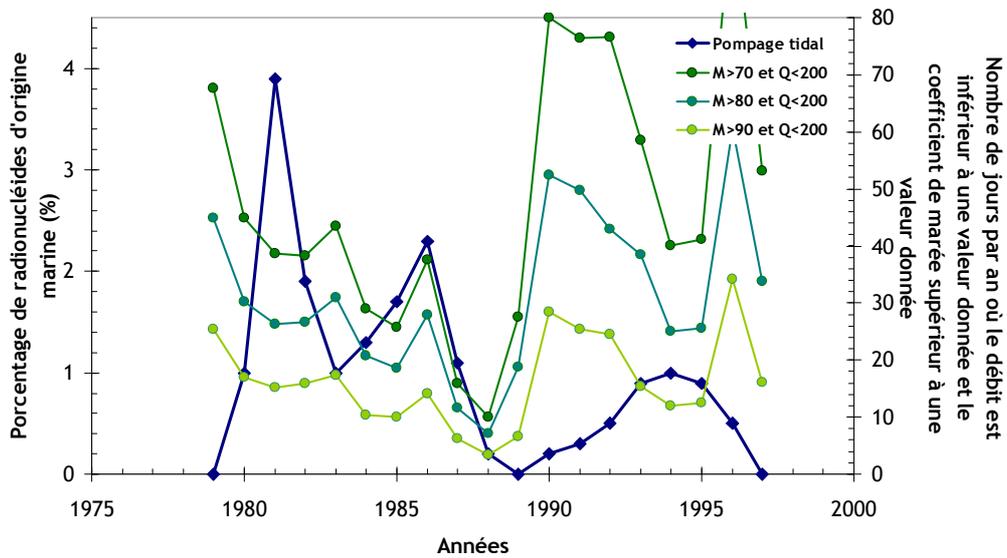


Figure 199 : Influence des coefficients de marée relevés pour un débit inférieur à $200 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ sur les 10 dernières années. Indice du nombre de jours par an où le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; un coefficient permet d'attribuer 7,5 fois plus d'importance à l'année en cours.

Il est donc fort probable que l'importance des événements varie : dans le cas d'événements exceptionnels une année donnée, les événements hydrologiques de l'année en question auront beaucoup plus d'importance que les événements des années précédentes ; c'est ce qui se passe autour de 1982-1983, où des crues très fortes limitent l'intensité du pompage tidal.

Dans les années 1990, les crues restent très importantes mais avec des étiages plus marqués, ces derniers favorisant la remontée de matériel fin. Pourtant, bien qu'on observe un pompage tidal en légère augmentation jusqu'en 1994, son intensité n'est pas très forte. Les étiages ne suffisent donc pas à amplifier le phénomène : il est également important que les débits de crue ne soient pas trop intenses, ce qui n'est pas le cas dans les années 1990.

En résumé, les paramètres contrôlant le pompage tidal sont très variables d'une période à une autre. L'intensité de la marée et du débit de la Seine ont tous deux une très grande importance dans l'apport de particules marines à l'estuaire fluvial, mais la combinaison de ces paramètres permettant une accentuation de ce phénomène est très complexe, difficile à modéliser y compris en croisant les conditions de forçage pendant une durée d'antériorité de plusieurs années.

6. Conclusion

Le pompage tidal est un phénomène régulièrement observé dans l'estuaire fluvial de la Seine. Le pourcentage de radionucléides d'origine marine apportés en amont de l'estuaire est faible (0 à 4 %). Le passage du pourcentage de radionucléides d'origine marine à une quantité massique de sédiment est délicat ; cependant, les sédiments de la Darse des Docks sont fins, on peut donc estimer que le biais de conversion est acceptable. Le pompage tidal dans l'estuaire de la Seine résulte de la combinaison de différents forçages hydrologiques que l'on a tenté d'identifier. Il est au moins nécessaire de prendre en compte : (1) le nombre de jours par an couplant forts coefficients de marée et faibles débits de rivière ; (2) les conditions hydrologiques des 10 dernières années ; (3) l'importance de la crue hivernale (des débits de crue modérés favorisent le pompage tidal), en particulier pour l'année en cours ; (4) les courts évènements de crues les plus intenses.

Le transport de particules d'origine marine jusque l'estuaire fluvial, déjà démontré à partir de radionucléides de courte période dans les sédiments superficiels (Boust et al., 2002) est donc confirmé ici grâce aux radionucléides de longue période en se basant sur une chronique correspondant à deux décennies, établie à partir de l'enregistrement sédimentaire de carottes longues de nos sites d'étude.

CHAPITRE VIII :
Transfert des radionucléides
issus de retombées atmosphériques
vers l'estuaire de la Seine

1. Introduction

1.1. Problématique générale

Le lessivage des radionucléides déposés par voie atmosphérique sur les bassins versants désigne leur transport sous l'action du ruissellement (Bulgakov et al., 1991). On parle en général de lessivage liquide quand les radionucléides sont transportés sous forme soluble, et de lessivage solide quand ils sont transportés sous forme particulaire. Le lessivage constitue à la fois un terme de décontamination et de redistribution de la contamination en milieu terrestre (Khanbilvardi et al., 1999) et un terme de contamination secondaire des milieux aquatiques aval (Menzel, 1960). Le lessivage est un flux intermittent mais récurrent, comme le ruissellement dont il dépend. Aux échelles temporelles fines (jour/mois/année), on observe en général des flux accrus lors de pluies intenses, de crues ou de fonte des neiges (Salbu et al., 1992 ; Spezzano et al., 1994). Cependant, à des échelles plus grandes (année), après un dépôt ponctuel, les flux de lessivage diminuent avec le temps. Le lessivage est particulièrement intense pendant les premières semaines après le dépôt, et on parle de lessivage rapide (Jacobi, 1971). Le lessivage est beaucoup moins important ensuite, mais peut rester actif pendant plusieurs décennies (Menzel, 1960) et on parle alors de lessivage lent. D'un point de vue terrestre, le lessivage n'est pas un processus efficace de décontamination (Borzilov et al., 1988). En revanche, d'un point de vue aquatique, ce processus est potentiellement important car il fait converger vers les exutoires des flux issus de vastes zones potentiellement contaminées qui restent soumises à l'action de l'eau (Salo et al., 1984). A Kiev pour la période 1986-2056, on estime que cette voie d'exposition a une contribution relative importante à la dose efficace à l'homme pour certains radionucléides, comme le ^{90}Sr , (Voitsekhovitch et al., 1997).

1.2. Problématique particulière

L'évaluation du lessivage vers les écosystèmes aval est cruciale, notamment en situation post-accidentelle où le lessivage peut rester le seul terme source persistant des milieux aquatiques (lacs, réservoirs, cours d'eau, mer) dont dépendent de nombreux écosystèmes et activités humaines. Dans ce cadre, des approches simples prédisant *a minima* les flux moyens (annuels) et reposant sur un faible nombre de paramètres documentés sont recherchées (modèles opérationnels).

Dans une optique opérationnelle, le flux moyen annuel de lessivage aux exutoires, qu'il soit liquide ou solide, est généralement modélisé par des approches de type fonction de transfert (Monte, 1995). La fonction de transfert f d'un bassin versant modélise sa réponse caractéristique après une contamination ponctuelle unitaire. L'emploi de la notion de fonction de transfert suppose que le système modélisé (ici un bassin versant) a une réponse (ici par lessivage) qui est linéaire en fonction de ses sollicitations (ici par flux de dépôt atmosphérique) (Jury and Roth, 1990). En d'autres termes,

l'approche fonction de transfert suppose que le lessivage satisfasse aux 3 axiomes suivants : (1) le lessivage est le même pour des dépôts identiques se produisant à des temps différents (principe d'invariance) ; (2) il est proportionnel à l'inventaire déposé (principe de proportionnalité) ; (3) il est la somme des réponses individuelles en cas de plusieurs épisodes de dépôt (principe de superposition).

Mathématiquement, si un bassin versant, de fonction de transfert par lessivage f , est soumis à un flux de dépôt atmosphérique D ($\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$), alors le flux de lessivage à l'exutoire F_{BV} (Bq.s^{-1}) sera prévisible à chaque instant t et sera modélisé par (Chow et al., 1988) :

$$F_{BV}(t) = \int_0^t D(\tau) f(t - \tau) d\tau \quad \text{Équation 19}$$

F_{BV} (Bq.s^{-1}) : flux de lessivage à l'exutoire

$t - \tau$ (s) : délai

D (Bq.s^{-1}) : flux de dépôt atmosphérique

f (s^{-1}) : fonction de transfert

τ (s) : date de dépôt

La plus grande partie des modèles opérationnels de lessivage sont de type fonction de transfert, même si tous ne sont pas nécessairement décrits comme tels. On peut exprimer sous forme analytique les fonctions de transfert des modèles satisfaisant aux axiomes 1 à 3 présentés ci-dessus, ce qui est le cas notamment de tous les modèles compartimentaux à coefficients constants. Cela aboutit à une grande diversité de formes analytiques pour la fonction f , qu'on peut réécrire sous la forme générique suivante (Garcia-Sanchez, 2008) :

$$f(t) = \sum_{i=0}^2 f_i \cdot \lambda_i \cdot \exp[-(\lambda_i + \lambda_r) \cdot t] \quad \text{Équation 20}$$

t (s) : délai écoulé après le dépôt

λ_r (s^{-1}) : constante de décroissance radioactive

Cette formulation distingue dans le dépôt disponible au lessivage jusqu'à 3 fractions, chacune caractérisée par :

λ_i (s^{-1}) : cinétique de lessivage de la fraction i

f_i (s.d.) : proportion du dépôt disponible à la fraction i

1.3. Question spécifique de ce chapitre

Les paramètres f_i et λ_i de la fonction de transfert f doivent être vus comme des paramètres de lessivage à différentes échelles temporelles. Il existe assez peu de valeurs de paramètres de lessivage

documentées dans la littérature sur de longues chroniques concernant des bassins versants français. Il existe peu de valeurs pour la cinétique rapide, de même pour la cinétique très lente ; les fractions lessivables sont très peu connues, sauf pour le lessivage liquide suite à l'accident de Tchernobyl.

Dans ce chapitre, nous avons voulu estimer les paramètres de lessivage de la fonction de transfert du bassin versant de la Seine à partir des mesures indirectes de lessivage solide que constituent les profils de ^{137}Cs mesurés et datés dans les carottes de la Darse des Docks et de Bouafles (Chapitres II et III). Nous visions deux objectifs : (1) avoir une nouvelle grille d'analyse des profils acquis, et notamment de cohérence par comparaison avec les cinétiques et fractions de lessivage d'autres bassins comparables et déjà documentés ; (2) tester et documenter l'approche fonction de transfert par lessivage solide en ^{137}Cs pour le bassin versant de la Seine.

2. Matériel et méthodes

Nous décrivons ici comment nous avons calculé (1) les activités expérimentales C_{MES} (Bq.kg^{-1}) dans les matières en suspension ; (2) les activités théoriques C_{theo} (Bq.kg^{-1}) pour lesquelles les données d'entrée (Équation 6) sont le flux de dépôt atmosphérique $D(t)$ et la forme analytique de la fonction de transfert f ; et ensuite (3) comment nous avons ajusté les paramètres de lessivage.

2.1. Les deux exutoires

Les sites de la Darse des Docks et de Bouafles sont les 2 exutoires de la Seine pour lesquels on disposait de mesures indirectes de lessivage solide, à travers les profils de ^{137}Cs mesurés et datés dans les carottes sédimentaires ($C_{\text{sédiment}}$).

Les superficies des bassins versants associés sont de $66\,840\text{ km}^2$ pour Bouafles (aire drainée à Poses) et de $79\,000\text{ km}^2$ pour la Darse des Docks (aire drainée au Havre, comprenant le bassin intra-estuarien) (Sources : GIP Seine-Aval).

2.2. Activités mesurées dans les MES : $C_{\text{MES}}(t)$

Comme démontré au chapitre V, les activités de ^{137}Cs mesurées dans les carottes de Bouafles et de la Darse des Docks sont similaires à celles des MES ayant transité dans la Seine à la même époque. Pour toute date t datée dans le sédiment, on a donc :

$$C_{\text{MES}}(t) = C_{\text{sédiment}}(t) \quad \text{Équation 21}$$

Nous avons étendu la fonction C_{MES} en interpolant par paliers centrés sur les mesures. Pour une date donnée, cela signifie qu'on a appliqué l'activité datée la plus proche (la mesure immédiatement antérieure ou postérieure selon les cas). Les mesures $C_{\text{MES}}(t_i)$ considérées dans les ajustements décrits plus bas correspondent aux activités moyennes calculées par pas régulier de 0,5 an, correspondant à

l'échelle supposée résolue par la datation ; les activités en ^{137}Cs mesurées dans les carottes sédimentaires ont été rapportées à la date de prélèvement de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, afin d'obtenir des activités telles qu'elles étaient dans le sédiment à cette époque.

Le site de Bouafles n'a pas enregistré la totalité du signal des retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl (Chapitre III). De même, le site de la Darse des Docks, du fait de hiatus sédimentaires, n'a pas enregistré ou préservé la totalité des retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires (Chapitre II). Nous disposons finalement d'un enregistrement sédimentaire complet des retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires sur le site de Bouafles et d'un enregistrement sédimentaire complet des retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl sur le site de la Darse des Docks. Par conséquent, le modèle a été ajusté sur la période 1960-1981 pour Bouafles et il a été ajusté sur la période 1967-2008 pour la Darse des Docks.

2.3. Densité de flux de dépôt atmosphérique $d(t)$

Les densités de flux de dépôt atmosphérique sec (d_s , $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) et humide (d_h , $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) en ^{137}Cs ont été calculées à partir de chroniques d'activité dans l'air (C_a , $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, 1959-2007) et l'eau de pluie (C_e , $\text{Bq}\cdot\text{L}^{-1}$, 1960-2007) mesurées à Orsay, ainsi que d'historiques d'intensité de pluies (P , $\text{L}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$, 1900-2010) mesurées à Paris Montsouris par Météo-France et contrôlées par l'European Climate Assessment and Dataset (Klein Tank et al., 2002).

Les dépôts secs ont été évalués à l'aide d'une relation de type vitesse de dépôt :

$$d_s = V_d \times C_a \quad \text{Équation 22}$$

où le paramètre V_d , désignant la vitesse de dépôt sec ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$), a été fixé à $1,5\cdot 10^{-3} \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (Roupsard et al., 2012). Cette valeur correspond à la vitesse moyenne de dépôt du ^{137}Cs déterminée expérimentalement sur différentes surfaces (herbe, bitume, zinc incliné à 30° , tuile incliné à 30° et ardoise incliné à 30°). Cette vitesse de dépôt est une vitesse moyenne ; elle varie selon les conditions climatiques, l'évolution des surfaces de dépôt... Elle ne prend pas en compte l'occupation des sols du bassin versant.

Les dépôts humides ont été calculés en remontant à l'activité totale de l'eau déposée par précipitation, soit :

$$d_h = P \times C_e \quad \text{Équation 23}$$

L'historique des précipitations fournit une donnée par jour. Pour chaque mesure d'activité volumique de ^{137}Cs dans l'eau de pluie, nous cumulon l'ensemble des données de précipitations journalières depuis la mesure précédente.

Les flux de dépôt humide du ^{137}Cs sont plus importants que les flux de dépôt sec (Figure 200), en particulier avant 1990, où l'on observe un facteur 13 en moyenne entre les deux jeux de données ; après 1990, on observe seulement un facteur 5 en moyenne entre flux de dépôt humide et sec. Après 1990, le ^{137}Cs n'est pas toujours détecté dans l'eau de pluie. Lorsque les mesures étaient inférieures à la limite de détection, on a supposé que la concentration mesurée est nulle, ce qui donne un rapport flux de dépôt humide / flux de dépôt sec en baisse.

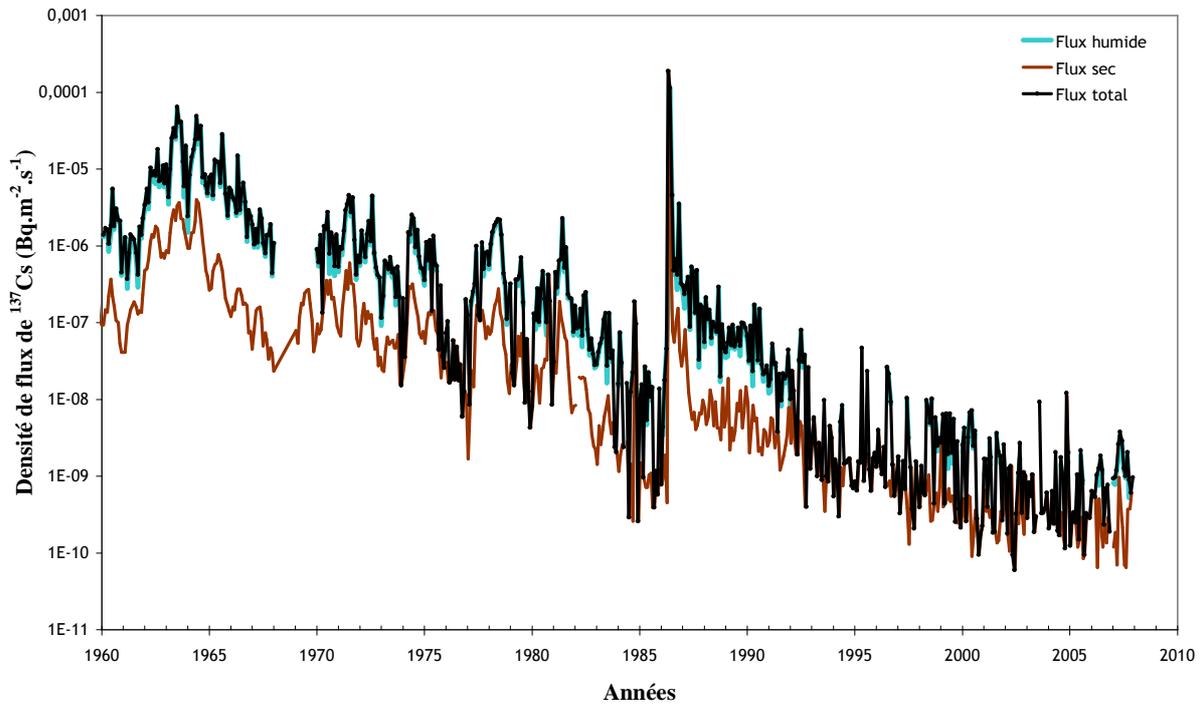


Figure 200 : Densité de flux de ^{137}Cs de dépôt sec, humide et total au cours du temps ; ces flux ont été calculés à partir de prélèvements effectués à Orsay, d'une vitesse moyenne de dépôt ($1,5 \cdot 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$) et d'un historique des précipitations à Paris.

Les essais nucléaires sont nettement visibles avec un flux maximum de dépôt de ^{137}Cs à $6,5 \cdot 10^{-5} \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ atteint en 1963 (Figure 200). L'accident de Tchernobyl est également bien marqué avec un flux maximum de dépôt de ^{137}Cs de $1,9 \cdot 10^{-4} \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$. Contrairement à celui des essais nucléaires, ce deuxième signal est beaucoup plus bref. En quelques mois, les flux de dépôt diminuent d'un facteur 1000, et des valeurs similaires à celle mesurées avant 1986 sont retrouvées en 1993, soit 7 ans plus tard.

Le flux de dépôt total D (Bq.s^{-1}) sur les deux bassins versants étudiés (de surface S) ont été estimés en supposant que les activités dans l'air et l'eau de pluie étaient homogènes au cours du temps, soit, à chaque instant t :

$$D = S \times (d_s + d_h) \quad \text{Équation 24}$$

2.4. Les trois options de modélisation de la fonction de transfert f

La forme analytique retenue pour la fonction de transfert distingue jusqu'à 3 fractions lessivables :

- Une fraction f_0 rapidement lessivable (lessivage rapide). Elle décrit le lessivage à court terme ;
- Une fraction f_1 lentement lessivable (lessivage lent). Elle rend compte du lessivage à moyen terme (3 à 5 ans) ;
- Une fraction f_2 très lentement lessivable (lessivage très lent). Elle correspond à du lessivage à très long terme (> 5 ans).

A chaque fraction est associée une constante de lessivage (hors décroissance) $\lambda_0, \lambda_1, \lambda_2$. La constante de décroissance s'applique par ailleurs à toutes les fractions, soit ici pour le ^{137}Cs :

$$\lambda_r = 0.022952 \text{ an}^{-1}$$

Selon l'information contenue dans les chroniques de mesure, les paramètres des 3 fractions ne sont pas forcément pertinents ou identifiables. Aussi nous avons testé trois options de modélisation pour la fonction de transfert. Chaque option correspond à un nombre différent de fractions lessivables :

- f_1 : lessivage lent uniquement (une seule fraction lessivable) ;
- f_0+f_1 : lessivage rapide et lessivage lent (deux fractions lessivables) ;
- $f_0+f_1+f_2$: lessivage rapide, lent et très lent (trois fractions lessivables).

2.5. Calcul du flux particulaire théorique $F_{BV}(t)$

Pour tenir compte des fortes fluctuations des flux de dépôt $D(t)$, les flux de lessivage ont été calculés en discrétisant la relation de convolution (Équation 24) par pas de $d\tau=0,05$ an (soit 20 pas de temps par an, chacun d'environ 18 jours qui correspond à la résolution du signal dépôt atmosphérique), et en supposant qu'il n'y a pas eu de dépôt atmosphérique antérieur à $t_0=1960$. Soit, si τ_i désigne l'ensemble des temps compris entre t_0 et t par pas de $d\tau$:

$$F_{BV}(t) = \sum_{\tau_i} D(\tau_i) f(t - \tau_i) \times dt \quad \text{Équation 25}$$

2.6. Activité théorique des MES ($C_{theo}(t)$)

Nous avons estimé l'activité des MES lessivées en supposant qu'il y a dilution parfaite de l'inventaire particulaire lessivé (F_{BV}) dans la masse solide exportée, soit :

$$C_{theo}(t) = \frac{F_{BV}(t)}{Q(t) \cdot MES(t)} \quad \text{Équation 26}$$

$C_{theo}(t)$: activité massique des matières en suspension ($Bq.kg^{-1}$)

$Q(t)$: débit de la rivière ($m^3.s^{-1}$)

$MES(t)$: charge en suspension ($kg.m^{-3}$)

$F_{BV}(t)$: flux d'export du ^{137}Cs particulaire ($Bq.s^{-1}$)

Numériquement, nous avons appliqué un débit solide $Q(t).MES(t)$ constant et égal au débit solide moyen de la Seine : $6.10^8 kg.an^{-1}$ (Source : GIP Seine-Aval ; Annexe I), soit $19 kg.s^{-1}$, ce qui est cohérent avec les débits solides des bassins versants de la base USGS traitée dans Laguionie (2006), étant donné la relation en loi puissance existant entre le débit liquide moyen et le débit solide moyen.

2.7. Ajustement des paramètres de transfert

Pour chaque option de modélisation, les paramètres (f_i, λ_i) ont été estimés par la méthode des moindres carrés ordinaires. L'ajustement a consisté à rechercher les paramètres (f_i, λ_i) qui minimisent la somme des carrés des écarts (SS) entre les activités théoriques (C_{theo}) et mesurées (C_{MES}) dans les MES pour l'ensemble des dates (t_j). Soit donc à minimiser :

$$SS(f_0, f_1, f_2, \lambda_0, \lambda_1, \lambda_2) = \sum_j (C_{theo}(t_j) - C_{MES}(t_j))^2 \quad \text{Équation 27}$$

où les autres paramètres de C_{theo} (D, Q, MES) ont été déterminés à partir des données disponibles, comme décrit dans les paragraphes précédents.

Ce problème d'optimisation non linéaire a été résolu avec l'algorithme de Nelder-Mead (Nelder and Mead, 1965), disponible dans la routine *optim* de l'environnement statistique R (R-Core-Team, 2012).

3. Résultats et discussion

3.1. Ajustements pour Bouafles (1960-1981)

Les paramètres de lessivage ajustés sont donnés, pour chaque option de modélisation, dans le Tableau 13. Pour toutes les options de modélisation, on peut constater que le lessivage n'affecte qu'une très faible part de la contamination déposée. En effet, chaque paramètre f_i représente la fraction totale d'un dépôt qui est disponible au lessivage, par la cinétique i , et qui rejoindrait la Seine s'il n'était pas affecté par la décroissance radioactive. Ainsi, pour le modèle f_0+f_1 , il y a 0,21 % du ^{137}Cs déposé sur le bassin versant disponible pour une mobilisation rapide et 0,42 % du ^{137}Cs déposé sur le bassin versant disponible pour une mobilisation à moyen terme.

Pour toutes les options de modélisation, les cinétiques de lessivage estimées sont très contrastées, signe que les chroniques mesurées apportent une information sur le lessivage à plusieurs échelles de

temps. En effet, λ_i représente la cinétique de la fraction i , soit le taux de lessivage hors décroissance, exprimé en an^{-1} . Pour les modèles avec 2 ou 3 cinétiques, les rapports entre les cinétiques sont d'au moins 50. Cela pose *in fine* la question du nombre de cinétiques qu'il faut retenir comme pertinent.

Tableau 13 : Paramètres de lessivage ajustés sur le site de Bouafles (1960-1981) : fractions entrainables (f_i , s.d.) et cinétiques (λ_i , an^{-1}) pour les 3 options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques notées f_1 , f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$)

Paramètre	Modèle f_1	Modèle f_0+f_1	Modèle $f_0+f_1+f_2$
f_0 (s.d.)	-	0,00209	0,00205
f_1 (s.d.)	0,00267	0.00424	0,00315
f_2 (s.d.)	-	-	0,0461
λ_0 (an^{-1})	-	2,03435	2,07725
λ_1 (an^{-1})	1,33233	0,02993	0,04531
λ_2 (an^{-1})	-	-	0,00006

La qualité de l'ajustement augmente avec le nombre de fractions lessivables, mais un mauvais ajustement persiste pour la période 1960-1964 (Figure 201). En effet, pour la période 1967-1980, l'ajustement des modèles f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$ semble satisfaisant, alors que le modèle f_1 reste non explicatif en sous estimant encore systématiquement les mesures. Cependant, pour la période 1960-1964, les activités mesurées dans les carottes (activités observées) sont bien plus fortes que celles prédites par les différents modèles. Cet écart semble provenir du terme source atmosphérique, que nous avons considéré comme nul avant 1960, alors qu'il a continuellement augmenté entre 1954 et 1960 (Cambray et al., 1989). Les paramètres ainsi estimés sont certainement biaisés, dans le sens d'une plus grande mobilité du dépôt. Pour améliorer l'ajustement, il faudra compléter le terme source $D(t)$ pour la période précoce des tirs atmosphériques (1954-1960).

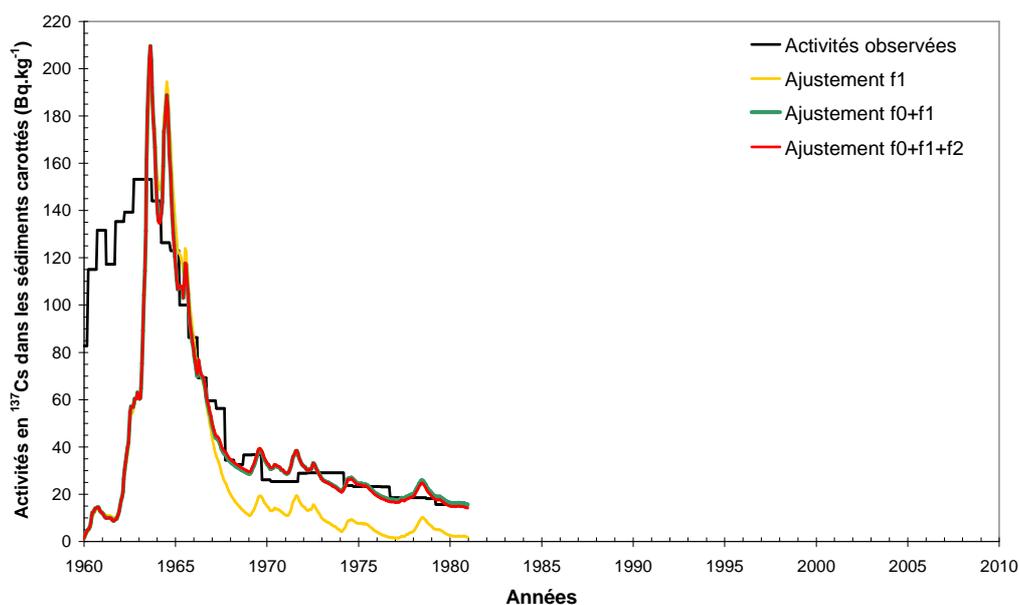


Figure 201 : Activités particulières en ^{137}Cs mesurées et ajustées à Bouafles (1960-1981) pour différentes options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques de lessivage notées f_0 , f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$).

Le meilleur ajustement correspond au modèle à 2 cinétiques (f_0+f_1). En effet, d'une part, la modèle à une cinétique n'est pas du tout explicatif de la période 1967-1981, où il est le seul à sous estimer radicalement les activités mesurées. D'autre part, la troisième fraction lessivable n'apporte pas un gain explicatif significatif. Les courbes ajustées avec les modèles f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$ sont pratiquement confondues, sauf peut-être au niveau de deux pics de lessivage en 1964 et 1966. De plus, la troisième cinétique correspond à une demi-vie d'environ 11 000 ans, beaucoup plus grande que la durée d'observation. D'un point de vue physique, il n'est pas pertinent de retenir cette option de modélisation.

3.2. Ajustements pour la Darse des Docks (1967-2008)

Les paramètres de lessivage ajustés sont donnés, pour chaque option de modélisation, dans le Tableau 14. Comme pour les ajustements de Bouafles, les paramètres ajustés suggèrent qu'une très faible part du dépôt est disponible au lessivage, inférieur au pourcent pour l'ensemble des fractions. De même, les cinétiques ajustées sont très contrastées, mais la troisième cinétique est très lente, et même physiquement beaucoup trop lente (demi-vie de l'ordre de 9000 ans), pour être décelable sur une chronique de 41 ans. Une analyse statistique plus poussée, que nous n'avons pu conduire ici, devrait certainement conduire à conclure que ce paramètre n'est pas significatif.

Tableau 14 : Paramètres de lessivage ajustés sur le site de la Darse des Docks (1967-2008) : fractions entraînaibles (f_i , s.d.) et cinétiques (λ_i , an^{-1}) pour les 3 options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques notées f_1 , f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$).

Paramètre	Modèle f_1	Modèle f_0+f_1	Modèle $f_0+f_1+f_2$
f_0 (s.d.)	-	0,00158	0,00153
f_1 (s.d.)	0,00271	0,00537	0,00616
f_2 (s.d.)	-	-	0,00262
λ_0 (an^{-1})	-	0,52276	0,51523
λ_1 (an^{-1})	0,2553	0,01539	0,01277
λ_2 (an^{-1})	-	-	0,00008

Comme pour les ajustements de Bouafles, une seule cinétique est très insuffisante pour bien ajuster les chroniques mesurées (Figure 202). En effet, le modèle à une cinétique (f_1) présente des activités plus faibles que celles enregistrées dans la carotte de la Darse des Docks. Ce modèle décrit imparfaitement la série temporelle des activités en ^{137}Cs fournies par les analyses des sédiments de la carotte de la Darse des Docks.

Les modèles f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$ présentent des ajustements similaires qui rendent bien compte des activités mesurées dans les sédiments de la Darse entre 1965 et 1985. Mais entre 1985 et 1986, les activités calculées et mesurées sont assez différentes, avec un pic de contamination beaucoup plus précoce (avant 1986) et plus étalé dans le temps pour les mesures.

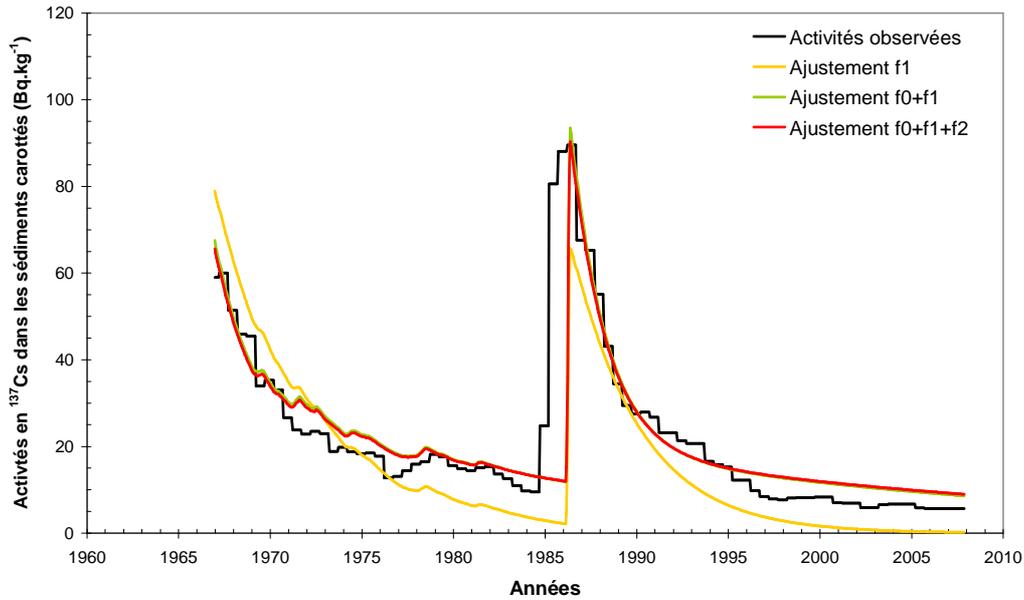


Figure 202 : Activités particulières en ^{137}Cs mesurées et ajustées à la Darse des Docks (1967-2008) pour différentes options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques de lessivage notées f_0 , f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$).

Cet écart est dû à un étalement sur environ 1 an du signal original de Tchernobyl après le dépôt dans la carotte, mais dont le mécanisme peut être la bioturbation, la perturbation du profil au moment de l'échantillonnage, ou un décalage de mesure ayant entraîné une petite erreur de datation... Aucune trace de bioturbation n'étant clairement identifiable sur la carotte, il ne peut s'agir que d'un effet d'échantillonnage. Nous avons attribué à l'échantillon comportant l'activité de ^{137}Cs la plus élevée, la date de 1986,3 (date de l'accident de Tchernobyl). La Figure 203 présente un scénario d'échantillonnage pouvant expliquer une erreur de datation des sédiments.

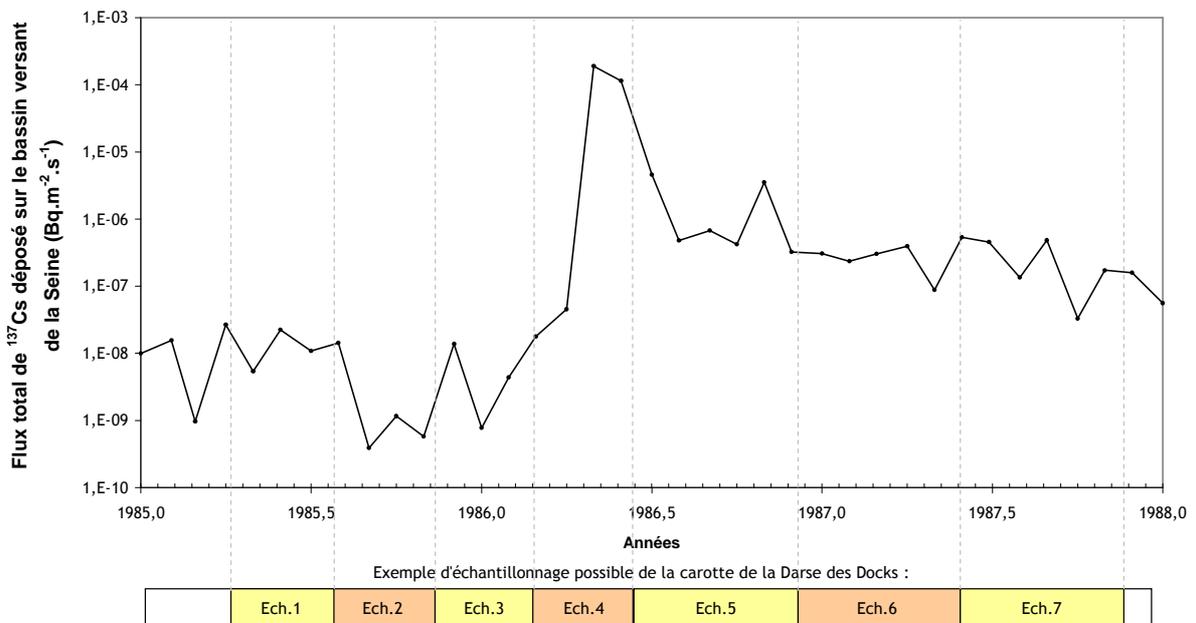


Figure 203 : Flux total de ^{137}Cs déposé sur le bassin versant de la Seine entre 1985 et 1988 avec pour la même époque une possibilité de découpage lors de l'échantillonnage de la carotte de la Darse des Docks.

Dans cet exemple, l'échantillon 4 correspond à une période durant laquelle s'est produit l'accident de Tchernobyl ; néanmoins la concentration moyenne de ^{137}Cs mesurée dans cet échantillon sera inférieure à la concentration moyenne mesurée dans l'échantillon 5, du fait des activités plus faibles précédant l'accident. Dans cet exemple, le risque est d'attribuer à l'échantillon 5 l'événement de Tchernobyl.

Ayant attribué l'échantillon comportant l'activité maximale à la date de l'accident de Tchernobyl, on peut dans le cas présent, faire une erreur de datation, ce qui expliquerait les fortes activités observées avant 1986,3 dans la carotte de la Darse des Docks. C'est une hypothèse probable.

De 1986 à 1996, les 2 modèles présentent de nouveau un bon ajustement similaire aux données mesurées (Figure 202). Enfin, de 1996 à 2005, un écart est de nouveau remarqué entre modèles et données mesurées, avec des activités surestimées par les modèles d'environ 30 %, ce qui demeure tout à fait correct.

Comme pour le site de Bouafles, le meilleur ajustement correspond au modèle à 2 cinétiques (f_0+f_1). C'est l'option la plus parcimonieuse en paramètres à ajuster, et c'est celle dont les paramètres sont physiquement décelables pour une chronique de mesures de 41 ans.

3.3. Validation croisée et comparaison des ajustements

Afin de tester la capacité prédictive des ajustements réalisés, nous avons calculé, sur chacun des sites, les activités prédites (Équation 25 et Équation 26) avec la fonction de transfert f ajustée sur l'autre site. Nous nous sommes limités ici au modèle f à 2 cinétiques (f_0+f_1) retenu au paragraphe précédent. Ces calculs permettent une analyse de validité de l'approche fonction de transfert car les prédictions peuvent alors être comparées à des données qui n'ont pas servi au calage du modèle.

Avec de ces deux types d'ajustement, on peut effectuer une prédiction sur la période 1970-2005 sur la carotte de la Darse des Docks à partir du modèle calé sur la carotte de Bouafles ; de même que l'on peut effectuer une prédiction de la période 1960-1980 sur la carotte de Bouafles à partir du modèle calé sur la carotte de la Darse des Docks.

La fonction de transfert ajustée sur Bouafles a une capacité prédictive sur la Darse des Docks qui est satisfaisante, mais avec une tendance à surestimer, particulièrement pour la phase accidentelle de 1986 (Figure 204). En effet, dans la carotte de la Darse des Docks, l'activité maximale mesurée en 1986 est de l'ordre de 80 Bq.kg^{-1} , alors que le modèle prédit une activité de l'ordre de 350 Bq.kg^{-1} . Le reste de la série calculée est relativement proche des données mesurées. On note tout de même une surestimation ($\approx 30\%$) par le modèle entre 1970 et 1985. Cette différence semble liée au fait que la fonction de transfert a été ajustée avec un terme source incomplet (1954-1960 n'est pas pris en compte) et par compensation, l'ajustement a surestimé les cinétiques et disponibilité au lessivage.

La fonction de transfert ajustée sur la Darse des Docks a une capacité prédictive limitée sur Bouafles (Figure 205). Au cours de la période 1966-1981, les activités mesurées sont correctement

prédites, tant pour la tendance décroissante (période après le pic des tirs de 1964) que pour les valeurs absolues dont le modèle s'écarte au maximum de 50 %. Ce bon accord semble donc valider l'hypothèse d'invariance du lessivage, qu'il soit issu de Tchernobyl ou des retombées des tirs.

En revanche, sur la période 1960-1966, les prédictions sous-estiment les activités particulières en ^{137}Cs dans les sédiments carottés à Bouafles, mais certainement de la non-prise en compte des dépôts antérieurs à 1960, comme discuté au paragraphe 3.1. Cet écart montre que cette période doit être prise en compte pour des prédictions pertinentes avant 1966, période où la contribution au lessivage de ces dépôts était significative.

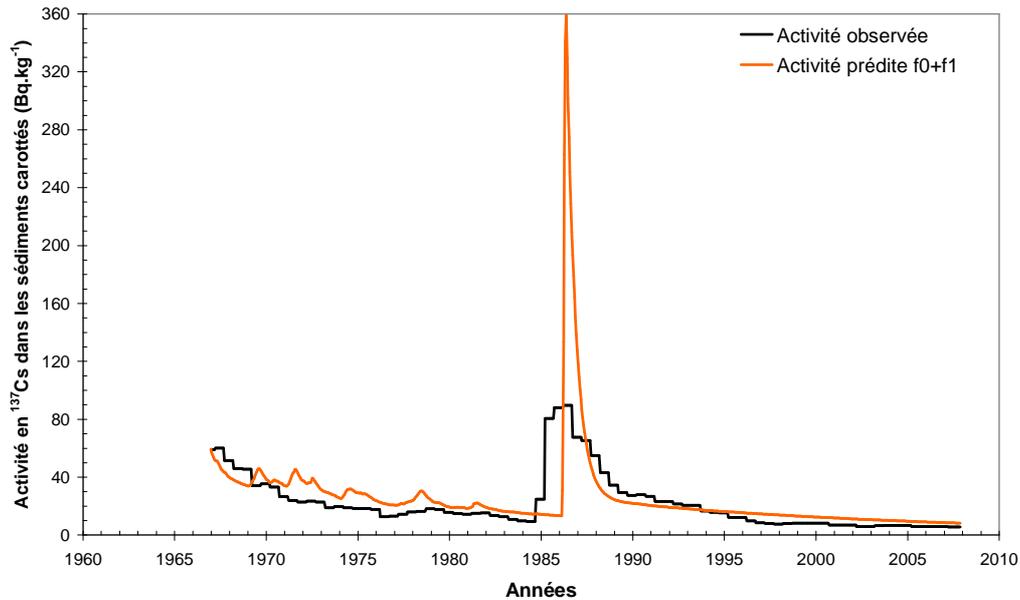


Figure 204 : Activités en ^{137}Cs particulière prédites à la Darse des Docks (1967-2008) avec la fonction de transfert à deux cinétiques (f_0+f_1) ajustée sur Bouafles (1960-1981) comparées aux activités mesurées dans les sédiments carottés de la Darse des Docks.

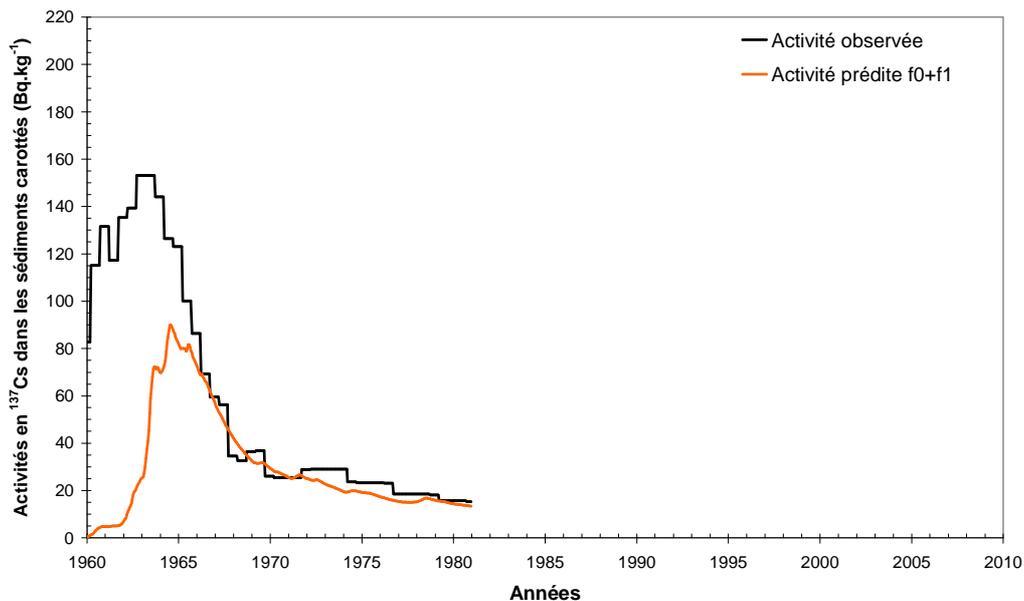


Figure 205 : Activités en ^{137}Cs particulière prédites à Bouafles (1960-1981) avec la fonction de transfert à deux cinétiques (f_0+f_1) ajustée sur la Darse des Docks (1967-2008) comparées aux activités mesurées dans les sédiments carottés de Bouafles.

En conclusion, la fonction de transfert ajustée à la Darse des Docks semble la plus réaliste, alors que celle ajustée à Bouafles tend à surestimer les flux par lessivage solide, car elle a été estimée sur un terme source incomplet.

4. Discussion

Dans ce paragraphe, nous rappelons les limites de notre approche par fonction de transfert, qui concernent à la fois les données, mais aussi les hypothèses de modélisation. Nous montrons ensuite que les paramètres du modèle à deux cinétiques ajustés sur la carotte de la Darse de Docks sont cohérents avec les données de la littérature.

4.1. Incertitudes des données

Le lessivage du ^{137}Cs déposé sur le bassin versant de la Seine vers le fleuve dépend d'un très grand nombre de paramètres qui rend complexe la réalisation de modèles de transfert.

Les modèles présentés ici sont tributaires des incertitudes liées aux données utilisées :

- Les flux de dépôt du ^{137}Cs sont calculés à partir d'une unique station de mesure (Orsay) dans l'air et dans l'eau de pluie. De même que les précipitations mesurées à Paris sont extrapolées à l'ensemble du bassin versant de la Seine. On notera également qu'une vitesse moyenne de dépôt des aérosols a été utilisée pour le calcul des flux de dépôt sec ;
- Un débit solide moyen a été utilisé pour l'ensemble des années ;
- Le pas d'échantillonnage utilisé sur les deux carottes lisse le signal et ne permet pas de mettre en évidence les pics de concentration.

Une incertitude notable est également attachée à l'hypothèse effectuée avant le calage du modèle de transfert quant à l'invariance de la réponse du bassin versant : l'occupation des sols a évolué entre 1960 et nos jours, la nature des dépôts également. Les incertitudes liées à la mise en œuvre de ces modèles ne sont pas négligeables. Ces derniers pourront être affinés dans des études ultérieures ; en attendant, ils permettent d'obtenir une image relativement fidèle du signal enregistré dans les carottes.

4.2. Limite des ajustements

Sur le premier modèle f_0+f_1 issu de l'ajustement effectué à partir de la carotte de Bouafles, nous observons des activités entre 80 et 160 Bq.kg^{-1} entre 1960 et 1964, alors que le modèle prédit des activités entre 0 et 20 Bq.kg^{-1} pour cette même période. Les raisons pouvant expliquer cet écart sont :

- La quantité de ^{137}Cs lessivé sur le bassin versant de la Seine est plus importante de 1960 à 1964, qu'après 1964 ;
- Les sédiments de la carotte de Bouafles ont été bioturbés, engendrant des activités anormalement élevées dans les sédiments déposés avant 1964 ;

- Le ^{137}Cs transitant dans la Seine n'est pas uniquement issu des retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires : il existe une autre source.

La première hypothèse est peu probable ; il paraît surprenant que le lessivage ait pu être transitoirement aussi important. La deuxième hypothèse est possible ; de plus, à l'effet de bioturbation peut s'ajouter la déformation des lits sédimentaires lors du carottage : celle-ci est particulièrement visible à ce niveau de la carotte sur l'image SCOPIX® (Figure 206). Cette déformation peut engendrer la mesure d'activités plus fortes dans les sédiments déposés avant 1964.

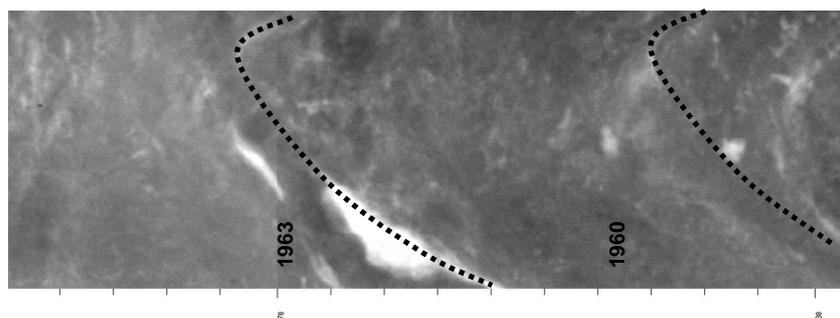


Figure 206 : Portion de l'image SCOPIX® correspondant à la période 1963-1960, avec le marquage des incurvations du litage dues au carottage. L'échantillonnage de cette carotte s'est effectué par des prélèvements de tranches de sédiments d'1 cm d'épaisseur.

L'hypothèse d'une source inconnue de ^{137}Cs est également à prendre en compte, bien qu'elle semble tout de même étonnante : la centrale nucléaire de Nogent n'existait pas à cette époque ; il s'agirait donc d'une source de ^{137}Cs non identifiée jusqu'alors. Dans l'étude de Le Cloarec et al. (2011), plusieurs carottes sédimentaires ont été prélevées dans le bassin de la Seine, dont une dans l'Oise et l'autre à Bouafles. Le signal de ^{137}Cs de la carotte prélevée dans l'Oise semble différent de celui de la carotte de Bouafles, en particulier avant 1963, où l'on observe moins de ^{137}Cs dans la carotte de l'Oise. Il est donc possible qu'il y ait une autre source de ^{137}Cs que les retombées des essais nucléaires, qui marquent les sédiments de Bouafles, mais il est également possible que la bioturbation et l'incurvation des sédiments aient davantage perturbé la carotte prélevée à Bouafles que celle prélevée dans l'Oise.

Les modèles mis en œuvre comportent de nombreuses incertitudes : une part d'entre elles peut provenir des données mesurées sur les carottes, non pas d'un point de vue de la métrologie, mais plutôt de la répartition des sédiments dans les carottes sédimentaires. Pour caler précisément de tels modèles, il serait nécessaire d'avoir un pas d'échantillonnage plus fin, ce qui est difficile à réaliser (minimum de matière nécessaire aux mesures, déformations par le carottier imprévisibles...).

4.3. Paramètres de lessivage estimés

La faible disponibilité du dépôt au lessivage (paramètres f_0 et f_1 inférieurs au %) est cohérent avec les inventaires estimés dans le bassin de la Seine. Les travaux de Sogon (1999) indiquent qu'en 1999, des mesures effectuées sur des sols d'un sous-bassin versant de la Seine donnent une activité intégrée

de l'ordre de 3100 Bq.m^{-2} . Si on multiplie cette activité par la surface S du bassin versant à l'amont de la Darse des Docks, on obtient la quantité de ^{137}Cs stocké dans les sols, soit environ $2,07 \cdot 10^{14} \text{ Bq}$.

En supposant que le lessivage solide est le mode de lessivage dominant, alors la fonction de transfert f^* du dépôt vers l'inventaire non lessivé (supposé séquestré) s'écrit sous la forme :

$$f^*(t) = (1 - f_0 - f_1) \cdot \exp[-\lambda_r \cdot t] + \sum_{i=0}^1 f_i \cdot \exp[-(\lambda_i + \lambda_r) \cdot t] \quad \text{Équation 28}$$

On peut ainsi calculer l'inventaire théorique I_{BV} séquestré dans le bassin versant avec la formule :

$$I_{BV}(t) = \int_0^t D(\tau) f^*(t - \tau) d\tau \quad \text{Équation 29}$$

qui donne en 1999 un inventaire prédit de $1,42 \cdot 10^{13} \text{ Bq}$. Ces deux calculs présentent des valeurs de même ordre de grandeur. L'incertitude sur la première valeur calculée est grande, puisque la mesure de ^{137}Cs utilisée est issue d'un petit bassin versant de la Seine, et n'est peut-être pas représentative de l'ensemble du bassin versant.

Les cinétiques ajustées λ_0 et λ_1 correspondent plutôt au lessivage lent et très lent, mais sont cohérentes avec valeurs reportées dans la littérature. En effet, les demi-vies associées sont respectivement de 1,35 an et 55,10 ans. Nous avons trouvé des cinétiques lente et très lente, comme cela a déjà été reporté pour le lessivage liquide et total du ^{137}Cs (Saxén, 1994 ; Smith et al., 2000). La cinétique lente $\lambda_0 = 0,515 \text{ a}^{-1}$ est tout à fait dans la gamme $0,15 - 1,56 \text{ a}^{-1}$ ($n=10$) du lessivage lent (Maringer, 1996 ; Maringer et al., 1997 ; Monte, 1997 ; Mundschenk, 1996). La cinétique $\lambda_1 = 0,0126 \text{ an}^{-1}$ est par contre inférieure à la gamme $0,04 - 0,3 \text{ a}^{-1}$ ($n=7$) généralement reportée (Saxén, 1994 ; Smith et al., 2000) et peut résulter d'un temps de séjour assez long dans le bassin versant de la Seine.

Les fractions disponibles au lessivage solide ne peuvent être comparées à la littérature qui ne documente que le lessivage liquide ou total du ^{137}Cs . Toutefois, les valeurs reportées de $f_0 = 0,15$ et $f_1 = 0,62 \%$ sont comparables aux fractions disponibles au lessivage liquide (Smith et al., 2000).

5. Conclusion

A partir des données issues des carottes sédimentaires, une réponse caractéristique du bassin versant pour le lessivage solide a pu être déterminée. Compte-tenu de la résolution des échantillons (6 mois), la réponse rapide n'a pu être contrainte. Les tendances observées sont cohérentes avec les études effectuées dans le passé (faible fraction disponible), ce qui souligne la pertinence des mesures acquises dans les carottes sédimentaires. Une résolution temporelle plus fine correspondant à un

échantillonnage plus resserré des carottes sédimentaires permettrait d'avoir accès aux paramètres de la phase de lessivage rapide.

Le modèle mis en place grâce à un des ajustements effectué à partir des données de la Darse des Docks a été validé sur les mesures effectuées à Bouafles. Les paramètres sont cohérents avec ceux de la littérature. Ce sont les premières valeurs documentées pour la Seine, qui caractérisent la réponse à moyen et long terme. En ayant accès aux flux de ^{137}Cs déposé sur le bassin versant avant 1960, il serait possible d'améliorer les prédictions effectuées sur le site de Bouafles à partir de l'ajustement effectué sur les données de la Darse des Docks.

Les modèles de transfert permettant de reconstituer les concentrations de ^{137}Cs dans les sédiments de la Seine ont nécessité le traitement d'un grand nombre de données. Elles ont été traitées de façon à obtenir un signal d'entrée et un signal de sortie comparables (en termes d'unités). Plusieurs modèles ont été testés avec différentes cinétiques de lessivage. Le modèle le plus simple décrivant au mieux la réalité est le modèle f_0+f_1 qui se compose d'une cinétique à très court terme ($\approx 0,5$ à 3 ans) et d'une cinétique à moyen terme (≈ 50 ans). L'ajustement réalisé à partir des données de la carotte de Bouafles semble présenter les meilleurs résultats. Plusieurs sources d'incertitudes subsistent sur les données, que ce soit sur le terme d'entrée, par manque d'informations, ou sur le terme de sortie, à cause d'un pas d'échantillonnage trop grossier des carottes sédimentaires pour mener avec précision cette étude. Malgré cela, les modèles donnent une prévision correcte des activités de ^{137}Cs dans les sédiments de la Seine. On soulignera que la proportion ^{137}Cs déposé sur le bassin versant et issue des dépôts atmosphériques transitant vers la Seine est très faible : moins d'un pourcent (0,4 à 0,5 %) par an. Des études antérieures ont montré que le lessivage solide des radionucléides vers les cours d'eau est très lent, moins de 1 % des dépôts transitant vers les cours d'eau chaque année pour des bassins versants de taille importante (100 000 à 200 000 km²). Le bassin versant de la Seine stocke donc dans ses sols les radionucléides issus des retombées atmosphériques des essais nucléaires et de l'accident de Tchernobyl. La décroissance radioactive des différents radionucléides fait partie de leurs modes d'épuration sur le bassin versant de la Seine ($\lambda_r=0,02295$). Si le lessivage n'est pas important pour l'amont du bassin versant, il est essentiel pour l'aval car, même avec des fractions entraînaibles faibles, une quantité importante de radionucléides est transférée à l'estuaire.

Conclusions générales et perspectives

Dans le but de retracer l'histoire de la contamination en métaux et en radionucléides liés aux particules sédimentaires dans l'estuaire fluvial de la Seine, trois carottes sédimentaires ont été prélevées, puis datées. Sur ces sédiments carottés, un cortège de 55 éléments stables et 18 radionucléides a été analysé. La première carotte, prélevée dans la Darse des Docks, ancien bassin portuaire situé dans l'estuaire fluvial de la Seine, révèle la contamination ayant marqué cette partie de l'estuaire au cours des dernières décennies. La deuxième, prélevée à Bouafles à 30 km en amont du barrage de Poses, témoigne de l'évolution de la contamination provenant du bassin versant de la Seine. Enfin la troisième, prélevée sur la Vasière Nord dans l'embouchure de la Seine, permet de quantifier la part d'apports de contaminants d'origine marine à l'estuaire.

Le Tableau 15 récapitule les principales caractéristiques de chaque carotte, ainsi que la contamination dont elles témoignent. Les 3 sites d'étude présentent des caractéristiques différentes (taux de sédimentation, granulométrie, régularité des dépôts...) qu'il a été nécessaire de comprendre et de caractériser pour l'interprétation des résultats des analyses géochimiques.

Historique et sources de la contamination par les éléments stables

La carotte de Bouafles présente les contaminations issues du bassin versant de la Seine. Certains éléments présentent des teneurs plus élevées que les teneurs naturelles, et ceci à tous les niveaux de la carotte ; ces teneurs sont cependant en constante diminution au cours du temps ; il s'agit des éléments suivants : Zn, As, Sn, Sb, Pb, Ag, Ba, Cu, Sr. Quelques éléments correspondent cependant à des contaminations plus limitées dans le temps en particulier vers 1960 : Cr, Cd, Bi, W. Tous ces éléments sont les produits d'activités industrielles variées (traitement de surface, accumulateur, fabrication de pigment...) et réparties sur le bassin versant : soit par des rejets directs dans le fleuve, soit par des rejets dans le réseau urbain seulement en partie traités, soit par des rejets atmosphériques.

Les sédiments des carottes prélevées dans la Darse des Docks contiennent les mêmes contaminants que ceux de la carotte de Bouafles, auxquels se sont ajoutés ceux issus du bassin versant intra-estuarien, et en particulier ceux provenant des rejets directs des sous-produits de la fabrication d'engrais (les phosphogypses) dans l'estuaire fluvial de la Seine, à Rouen. Ces rejets ont considérablement marqué les sédiments dans les années 1970. Les éléments enrichis par cette contamination sont : P, Cd, Bi, Cr, Cu, Y, U, Sr, Be, Ni, Mo, Ba, Th, Hg et les terres rares. Pour certains de ces éléments, cette contamination s'ajoute à celle en provenance de l'amont (e.g. Cd, Bi) ; pour d'autres éléments, elle est pratiquement la seule source d'enrichissement (e.g. Y, U). En 1974, l'Y et l'U sont issus à plus de 90 % des rejets de phosphogypses. La comparaison des données des carottes de Bouafles et de la Darse des Docks a permis de quantifier les apports élémentaires d'origine naturelle et ceux liés à des activités anthropiques, qu'ils soient issus du bassin versant de la Seine ou du bassin versant intra-estuarien.

On pourrait s'attendre à retrouver dans les sédiments de la Vasière Nord les grands traits de la

contamination reconnus dans l'estuaire fluvial. Il n'en est rien : cela est dû à l'importance du stock sédimentaire estuarien qui atténue considérablement les particularités de l'évolution des apports amont. De plus, la partie aval de l'estuaire est aussi concernée par d'autres rejets de phosphogypses effectués par un émissaire sous-marin depuis le Havre, ainsi que par des apports de phosphogypses amenés par barges depuis Rouen à partir de 1974. La carotte de la Vasière Nord ne témoigne donc pas de la même histoire que celles des deux autres sites amont. En ce qui concerne les éléments stables, il est difficile de mettre en parallèle les carottes du site de la Darse des Docks et celle de la Vasière Nord.

Il eût été intéressant de carotter sur un site plus éloigné des points de rejets, entre la Vasière Nord et la Darse des Docks, pour évaluer le devenir des éléments enrichis par les rejets de phosphogypses, avant que ceux-ci n'atteignent le bouchon vaseux : un tel site, donnant accès à un enregistrement sédimentaire complet, tel celui de la Darse des Docks, reste à découvrir.

Historique et sources de la contamination par les radionucléides

Les radionucléides d'origine artificielle mesurés dans les sédiments (e.g. ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am) ont plusieurs origines : (1) les retombées atmosphériques des essais d'armes nucléaires, (2) les retombées atmosphériques de l'accident de Tchernobyl, (3) des rejets contrôlés effectués ponctuellement dans la Seine en région parisienne, (4) des rejets contrôlés de l'usine de retraitement des combustibles nucléaires de la Hague (uniquement pour la partie estuarienne).

Les sédiments des carottes de la Darse des Docks et de Bouafles ont été marqués par les apports des trois premières sources citées ci-dessus. Les signaux enregistrés suite aux retombées atmosphériques diffèrent toutefois d'un site à l'autre du fait de la différence de dynamique sédimentaire. On observe sur les deux sites des activités maximales de ^{137}Cs : (1) en 1963, de façon plus marquée pour le site de Bouafles du fait de la présence de hiatus sédimentaires correspondant à cette époque sur le site de la Darse des Docks, (2) en 1986, de façon plus marquée sur le site de la Darse des Docks du fait du fonctionnement particulier du site de Bouafles : sédimentation épisodique à caractère saisonnier typique de plaines d'inondation. Durant la période des essais nucléaires, ces deux sites ont également été marqués par des apports en radionucléides émetteurs alpha : ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am . Une anomalie en ^{238}Pu a été repérée sur les deux carottes, due à un rejet contrôlé en radionucléides émetteurs alpha durant l'année 1975 par une installation nucléaire de la région parisienne.

Les événements de contamination ayant marqué les carottes de Bouafles et de la Darse des Docks n'ont pas été préservés dans les sédiments de la carotte de la Vasière Nord. Sur ce site, le ^{137}Cs et les ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ présentent des activités maximales moins élevées que sur les sites amont, mais les pics enregistrés sont plus étalés dans le temps : les activités fluctuent moins vite qu'à l'amont, tout comme les concentrations des éléments stables. Sur ce site d'embouchure de la Seine, le rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ est caractéristique des essais nucléaires jusqu'à la fin des années 1970 ; il augmente ensuite, en même

temps que les activités de l' ^{241}Am . Ces changements signent l'arrivée progressive d'apports marins marqués par des radionucléides issus des rejets liquides de l'usine de retraitement de déchets nucléaires de la Hague. Ces apports ne semblent pas significatifs sur le site de la Darse des Docks.

Les radionucléides d'origine naturelle présentent des activités constantes sur le site de Bouafles, les radionucléides d'une même famille étant à l'équilibre. Sur le site de la Darse des Docks toutefois, ils sont enrichis par les rejets de phosphogypses : leurs séries temporelles d'activités présentent une allure similaire à celles des concentrations des éléments stables touchés par cette contamination. Les radionucléides d'origine naturelle dans les sédiments de la Vasière Nord sont également enrichis par les rejets de phosphogypses, de façon moins importante que sur le site de la Darse des Docks, mais s'étalant davantage dans le temps.

Pour préciser la répartition des radionucléides sur le bassin versant de la Seine, d'autres carottages pourraient être envisagés, notamment dans les grands affluents de la Seine. Certains sites ont déjà été étudiés par les équipes du PIREN-Seine ; en prélevant de nouvelles carottes, il serait possible d'analyser les radionucléides émetteurs alpha sur des sites uniquement touchés par les retombées atmosphériques des essais nucléaires et donc obtenir un historique des apports atmosphériques en ces radionucléides sur le bassin versant de la Seine.

Les flux de contaminants dans l'estuaire de la Seine

Après avoir démontré que les concentrations des éléments stables et des radionucléides étaient similaires dans les carottes prélevées et dans les MES ayant transité au moment du dépôt des sédiments, nous avons calculé les flux de tous les éléments mesurés dans les carottes à partir de l'historique des débits solides de la Seine. Les flux calculés, étant fortement modulés par les débits solides de la Seine, ne présentent pas des valeurs maximales aux mêmes périodes que les concentrations mesurées dans les carottes. Les flux des éléments ne présentant pas d'enrichissement, sont complètement gouvernés par les fluctuations du débit solide. Les flux des éléments présentant des enrichissements irréguliers sont contrôlés par les deux paramètres : débits solides et concentrations dans les sédiments. Les carottes prélevées ont permis de reconstituer un historique d'une quarantaine d'années des flux particuliers des 55 éléments stables et des 18 radionucléides mesurés dans la Seine fluviale et dans l'estuaire fluvial de la Seine. Nombre de ces éléments n'ont jamais été dosés sur une aussi longue période de temps dans les sédiments de la Seine, faute de moyens techniques à l'époque des dépôts : pour ces éléments, les séries temporelles présentées dans ce manuscrit sont donc les premières enregistrées sur le bas cours de ce fleuve.

D'autres contaminants ayant été mesurés dans les carottes de la Darse des Docks (les contaminants organiques), il serait possible d'appliquer le même protocole pour obtenir l'historique de leurs flux annuels, à condition que les sédiments déposés donnent une image conforme des concentrations en contaminants organiques ayant transité dans l'estuaire.

Rémanence des sédiments dans l'estuaire fluvial de la Seine

En comparant les données de rejets de phosphogypses fournis par l'exploitant et la série temporelle de l'Y du site de la Darse des Docks, il a été possible d'évaluer un temps de résidence moyen des particules dans l'estuaire fluvial de la Seine. Le temps de résidence est estimé à $0,6 \pm 0,1$ année, ce qui signifie que la moitié des particules intra-estuariennes est renouvelée tous les 7 mois environ. Ce temps de résidence reste une estimation, d'autant qu'il est soumis à des variations interannuelles importantes liées notamment aux débits de la Seine. Le temps de rémanence est calculé à partir d'une courte série de données (≈ 10 ans) ; il serait nécessaire de l'évaluer sur une plus longue période. Cela reste assez délicat à mettre en place, puisqu'il est nécessaire d'obtenir un historique de rejets spécifiques à l'estuaire sur une période de temps relativement importante.

Importance du pompage tidal dans l'estuaire fluvial de la Seine

Le pompage tidal, phénomène conduisant à la remontée de matériel marin dans les estuaires macrotidaux, avait déjà été étudié dans l'estuaire de la Seine et sa présence avait été démontrée dans l'estuaire fluvial. La présente étude a permis d'étudier ce phénomène et d'évaluer ses fluctuations durant une période de 20 ans, grâce à l'étude du rapport d'activités $^{239,240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ sur les carottes sédimentaires des trois sites, le site de Bouafles représentatif des apports continentaux, et la Vasière Nord des apports marins. L'apport de matériel marin à l'estuaire fluvial de la Seine n'est pas permanent : il est compris entre 0 et 4 %.

Le pompage tidal résultant de la forte asymétrie de marée, il est favorisé par les fortes marées et par de faibles débits prolongés du fleuve Seine. La combinaison idéale de ces deux paramètres est néanmoins difficile à mettre en évidence, le phénomène de pompage tidal étant possible lors de conditions hydrologiques particulières. Ainsi, il apparaît nécessaire que les plus fortes marées interviennent en même temps que les bas débits fluviaux, sans qu'une crue importante et prolongée ne vidange l'estuaire des particules fines. Ces conditions doivent être réunies pendant une dizaine d'années, temps nécessaire au transport des particules depuis l'estuaire marin jusqu'à l'estuaire fluvial.

Des calculs statistiques sur l'importance des paramètres hydrologiques entrant en jeu dans l'intensité du pompage tidal au niveau de l'estuaire fluvial seraient nécessaires et les conditions hydrologiques optimales au fonctionnement de ce phénomène pourraient alors être déterminées plus précisément.

Dynamique du transfert de ^{137}Cs du bassin versant de la Seine à la rivière

Le devenir du ^{137}Cs d'origine atmosphérique déposé sur le bassin versant de la Seine a été déterminé via la caractérisation d'une fonction de transfert. Dans un premier temps, la chronique du flux de dépôt de ^{137}Cs sur le bassin versant a été reconstituée (signal d'entrée). Ensuite, ce signal

d'entrée a été comparé aux données extraites des carottes sédimentaires (signal de sortie). La fonction de transfert permettant de passer du signal d'entrée au signal de sortie a été établie à partir de deux cinétiques de transfert du ^{137}Cs dans le bassin versant : une rapide et une lente, chacune associée à un processus spécifique (Garcia-Sanchez, 2008). Ce modèle montre que, chaque année, moins de 1 % du ^{137}Cs apporté au bassin versant est transféré au fleuve : le lessivage ne permet de transporter qu'une faible proportion de ^{137}Cs , ce qui est cohérent avec de précédentes études.

La précision du signal d'entrée (flux de dépôt du ^{137}Cs sur le bassin versant de la Seine) pourrait être améliorée en tenant compte (1) des vitesses de dépôt sec en fonction de la surface réceptrice (occupation des sols) ; (2) de la pluviométrie issue de plusieurs stations réparties sur l'ensemble du bassin versant de la Seine.

L'étude des carottes sédimentaires prélevées dans la Seine a permis de retracer l'histoire de la contamination particulaire en trois sites représentatifs du bas cours du fleuve, en particulier dans l'estuaire fluvial. Ce travail a permis de décrire l'intégration de contaminations par les sédiments de la Seine, notamment : contamination atmosphérique (^{137}Cs , métaux) ; contamination par des rejets directs dans la Seine (métaux et radionucléides naturels liés aux phosphogypses). Les estuaires anthropisées sont des lieux de rejets et de transfert de nombreux contaminants stables et radioactifs. La reconstitution de l'évolution historique de leurs concentrations est un élément clé de la compréhension des processus par lesquels ils sont transportés vers l'océan ouvert. Au delà de l'historique de la contamination qu'elle a conduit à reconstituer, cette étude fournit des informations génériques et opérationnelles sur la capacité de résilience des anthroposystèmes.

Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats obtenus sur chaque site de carottage.

	Bouaffles	Darse des Docks	Vasière Nord
Localisation	Partie fluviale de la Seine (PK 170)	Estuaire fluvial de la Seine (PK 252)	Estuaire marin de la Seine (PK 351)
Nature du site	Ancien bras mort de la Seine, plaine d'inondation	Ancien bassin portuaire	Vasière intertidale
Nature des sédiments	Silt	Silt	Silt à sable fin
Longueur des carottes prélevées	1,3 mètre	Environ 6 mètres	7 mètres
Taux de sédimentation	≈ 1,7 cm.an ⁻¹	≈ 18 cm.an ⁻¹ avant 1986 ≈ 9,2 cm.an ⁻¹ après 1986	≈ 63 cm.an ⁻¹ de 1965 à 1975 ≈ 4,3 cm.an ⁻¹ après 1975
Période de temps couverte par le carottage	≈ 1920-2004	1965-2008 + quelques années enregistrées avant 1965 de façon discontinue	1968-2001
Méthode de datation	Utilisation de marqueurs temporels (radionucléides) + Comparatif des hauteurs de l'histoire de la hauteur d'eau de la Seine et la topographie du site	Utilisation de marqueurs temporels (radionucléides) + Utilisation de cartes bathymétriques anciennes + Analyses du signal + Comparatif du rapport ²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu avec la carotte de Bouaffles	Utilisation de relevés bathymétriques effectués entre 1960 et 2001
Éléments majeurs	Teneurs en Al : 2,9 à 5,0 % Si : Teneurs constantes (≈16 %) Ca : Teneurs stables et élevées (≈15 %) P : Teneurs variant entre 0,08 et 0,2 % Fe, Mn, Mg, Na, K, Ti, Li : Teneurs relativement stables, légères variations fonction des teneurs en Al.	Teneurs en Al : 2,7 à 4,4 % Si : Teneurs en constante augmentation à partir de 1980 Ca : Teneurs stables et élevées (≈15 %) P : Teneurs très élevées 1970-1980 (max : 0,55%), teneurs légèrement élevées 1990-200 (max : 0,25 %) Fe, Mg, K, Ti, Li : Concentrations variables à partir de 1990. Profils identiques pour ces 6 éléments Mn, Na : Concentrations stables au cours du temps.	Teneurs en Al : 1,5 à 3,8 % Si : Teneurs variables (20 à 32 %) Ca : Teneurs stables et élevées (≈11 %) P : Teneurs variables (0,03 à 0,1 %) Fe, Mn, Mg, Na, K, Ti, Li : Teneurs très variables fonction de la granulométrie des sédiments.
Éléments traces	V, Co, Ga, Ge, Rb, Zr, Nb, Cs, Hf, Ta, Mo, Be, Ni, Y, U, terres rares : Teneurs stables au cours du temps Zn, As, Sn, Sb, Pb, Ag, Ba, Cu, Sr : Teneurs en constante décroissance au cours du temps Cr, Cd, Bi, W : Enrichissement dans les années 1960	Cd, Bi, Cr, Cu, Y, U, Sr, Be, Ni, Mo, Ba, Th, Hg, terres rares : Teneurs influencées par les rejets de phosphogypses 1965-1985 V, Co, Ga, Ge, Rb, Zr, Nb, Cs, Hf, Ta : Teneurs stables au cours du temps Zn, As, Sn, Sb, Pb, W, Ag : Teneurs en constante décroissance au cours du temps	Cd, Bi, Cr, Cu, Y, U, Sr, Th, terres rares : Teneurs influencées par les rejets de phosphogypses 1965-1985 V, Co, Ga, Ge, Rb, Nb, Cs, Ta, Be, Ni, Mo, Ba : Teneurs stables au cours du temps Zr, Hf, Zn, As, Sn, Sb, Pb, W, Ag : Enrichissement par rapport aux sites amont
Radionucléides	Radionucléides d'origine naturelle : Activités stables au cours du temps ¹³⁷ Cs : Enregistrement partiel de l'accident de Tchernobyl (max : 27 Bq.kg ⁻¹) + enregistrement des essais nucléaires dans les années 1960 (max : 52 Bq.kg ⁻¹) ²³⁸ Pu : Faible proportion issue des retombées atmosphériques des essais nucléaires dans les années 1960 + pic d'activité enregistré vers 1975 suite à des rejets contrôlés d'une installation nucléaire (max : 770 mBq.kg ⁻¹) ^{239,240} Pu : Activités élevées dans les années 1960 suite aux retombées atmosphériques des essais nucléaires + sources inconnues dans les années 1960 ? (max : 6560 mBq.kg ⁻¹) ²⁴¹ Am : Activités élevées dans les années 1960 suite aux retombées atmosphériques des essais nucléaires (max : 770 mBq.kg ⁻¹)	Radionucléides d'origine naturelle : Activités enrichies par les rejets de phosphogypses (max ²²⁶ Ra : 1590 Bq.kg ⁻¹) ¹³⁷ Cs : Enregistrement de l'accident de Tchernobyl (max : 56 Bq.kg ⁻¹) + enregistrement d'une partie des essais nucléaires dans les années 1960 (hiatus sédimentaire) ²³⁸ Pu : Faible proportion issue des retombées atmosphériques des essais nucléaires dans les années 1960 + pic d'activité enregistré en 1975 suite à des rejets contrôlés d'une installation nucléaire (max : 1440 mBq.kg ⁻¹) ^{239,240} Pu : Activités élevées dans les années 1960 suite aux retombées atmosphériques des essais nucléaires + sources inconnues dans les années 1960 ? (max : 5100 mBq.kg ⁻¹) ²⁴¹ Am : Activités élevées dans les années 1960 suite aux retombées atmosphériques des essais nucléaires (max : 450 mBq.kg ⁻¹)	Radionucléides d'origine naturelle : Activités stables sauf pour le ²¹⁰ Pb (max : 145 Bq.kg ⁻¹ en ≈ 1990) ¹³⁷ Cs : Activités élevées entre 1970 et 1995 (max : 23 Bq.kg ⁻¹) ²³⁸ Pu : Activités élevées entre 1975 et 2000 (max : 758 mBq.kg ⁻¹) ^{239,240} Pu : Activités élevées entre 1975 et 2000 (max : 2970 mBq.kg ⁻¹) ²⁴¹ Am : Activités élevées entre 1980 et 2000 (max : 3290 mBq.kg ⁻¹)

Bibliographie

Allen, G. P., Salomon, J. C., Bassoullet, P., Du Penhoat, Y., De Grandpré, C., 1980. Effects of tides on mixing and suspended sediment transport in macrotidal estuaries. *Sedimentary Geology* 26, 1–3, 69-90.

Aloupi, M., Angelidis, M. O., 2001. Normalization to lithium for the assessment of metal contamination in coastal sediment cores from the Aegean Sea, Greece. *Marine Environmental Research* 52, 1, 1-12.

Aminot, A., Le Guellec, A. M., Mauvais, J. L., 1986. Le fluorure en Baie de Seine. La Baie de Seine (GRECO-MANCHE), Actes de Colloques n°4, 283-288.

Andrieux, P., Astesan, A., Bivert, B., Colombel, J. H., Dron, R., Gestin, F., Kibkalo, B., Mangin, S., Puiatti, D., Quibel, A., Raverdy, M., Sauterey, R., Schaeffner, M., Vautrain, J., Vigea, G., 1978. Le Phosphogypse - Utilisation d'un sous-produit industriel en technique routière. *Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées*. Numéro spécial VII, 150.

Audry, S., Blanc, G., Schäfer, J., 2004. Cadmium transport in the Lot–Garonne River system (France) – temporal variability and a model for flux estimation. *Science of The Total Environment* 319, 1–3, 197-213.

Audry, S., Blanc, G., Schäfer, J., Guérin, F., Masson, M., Robert, S., 2007. Budgets of Mn, Cd and Cu in the macrotidal Gironde estuary (SW France). *Marine Chemistry* 107, 4, 433-448.

Avoine, J., 1981. L'estuaire de la Seine : sédiments et dynamique sédimentaire. Thèse de doctorat de 3^{ème} cycle en géologie, Université de Caen, 221 p.

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

Avoine, J., 1986. Sediment exchanges between the Seine estuary and its adjacent shelf. *Journal of the Geological Society, London* 144, 135-148.

Avoine, J., Boust, D., Guillaud, J. F., 1986. Flux et comportement des contaminants dissous et particuliers dans l'estuaire de la Seine. *Rapports et procès-verbaux des réunions - Conseil international pour l'exploration de la mer* 186, 392-411.

Avoine, J., Dubrulle, L., Larsonneur, C., 1986. La dynamique sédimentaire dans les estuaires de la Baie de Seine - Conséquences sur l'environnement. *Ifremer. Actes de Colloques* 4, 183-192.

Baize, D., Sterckeman, T., Piquet, A., Ciesielski, H., Béraud, J., Bispo, A., 2005. Dérogations relatives à la réglementation sur l'épandage des boues de stations d'épuration. Comment formuler une demande pour les sols à teneurs naturelles élevées en éléments traces métalliques ? Guide technique. ADEME et APCA. 145 p.

Beaugelin-Seiller, K., Fraysse, B., Roussel-Debet, S., Fortin, C., Boust, D., Germain, P., Colle, C., 2004. Plutonium et environnement. Fiche Radionucléide de l'IRSN. 31 p.

Berry, A., Plater, A. J., 1997. Rates of tidal sedimentation from records of industrial pollution and environmental magnetism : the Tees Estuary, North-East England. *Water, Air, and Soil Pollution* 106, 463-479.

Billen, G., Silvestre, M., Barles, S., Mouchel, J. M., Garnier, J., Curie, F., Boët, P., 2009. Le bassin de la Seine : Découvrir les fonctions et les services rendus par le système Seine. Collection du programme PIREN-Seine, Agence de l'Eau, 51 p.

- Borzilov, V., Konoplev, A., Revina, S., Bobovnikova, T. I., Lyutik, P., Shveikin, Y. V., Shcherbak, A., 1988. Experimental investigation of washout of radionuclides deposited on soil as a result of the Chernobyl nuclear power plant accident. *Soviet Meteorology and Hydrology* 11, 43-53.
- Boust, D., 1981. Les métaux-traces dans l'estuaire de la Seine et ses abords. Thèse de doctorat de 3^{ème} cycle en Géologie, Université de Caen, 207 p.
- Boust, D., Jouanneau, J. M., Latouche, C., 1981. Méthodologie d'interprétation des teneurs totales en métaux contenues dans les sédiments estuariens et littoraux. *Bulletin de l'Institut de Géologie du Bassin d'Aquitaine* 30, 71-86.
- Boust, D., Colin, C., Leclerc, G., Baron, Y., 1997. Distribution and transit times of plutonium-bearing particles throughout the Channel. *Radioprotection* 32, Special issue " Radionuclides in the Ocean's", 123-128.
- Boust, D., 1998. Contribution de l'analyse des radionucléides naturels et artificiels à la compréhension des processus hydrosédimentaires dans l'estuaire de la Seine. Programme scientifique Seine-Aval, Thème hydrodynamique et transport sédimentaire. Rapport SERE 98/020(P), p.
- Boust, D., 1999. Distribution and inventories of some artificial and naturally occurring radionuclides in medium to coarse-grained sediments of the channel. *Continental Shelf Research* 19, 15-16, 1959-1975.
- Boust, D., Fischer, J. C., Ouddane, B., Petit, F., Wartel, M., Abarnou, A., Ficht, A., Gandon, R., Hebert, D., Hocdé, R., Poulin, M., Rozet, M., Voyer, J. J., 1999. Fer et manganèse : réactivités et recyclages. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°9, Ifremer (éd.), 39 p.
- Boust, D., Rozet, M., Solier, L., Dupont, J. P., Lafite, R., Ficht, A., 1999. Contribution de l'analyse des radionucléides naturels et artificiels à la compréhension des processus hydrosédimentaires dans l'estuaire amont de la Seine. Programme scientifique Seine-Aval, Thème hydrodynamique et transport sédimentaire. Rapport DPRE/SERNAT/99-12, 118 p.
- 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., Poupiner, 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. IRSN et M2C, UMR CNRS 6143, 125 p.
- Boust, D., Brunaud, C., Lesueur, P., Tessier, B., Sorrel, P., Dugué, O., Poupiner, N., Thouroude, C., Lafite, R., Laignel, B., Durand, A., Raux, J., Deloffre, J., Simon, M., Rozet, M., Solier, L., 2008. Synthèse Projet MEDIUM 2007 - Etude du mélange de la dispersion des sédiments par l'utilisation de marqueurs particuliers dans l'estuaire de la Seine. Rapport Seine-Aval, contrat I-2007-001. IRSN et M2C, UMR CNRS 6143, 74 p.
- Brenon, I., Le Hir, P., 1999. Modelling the Turbidity Maximum in the Seine Estuary (France): Identification of Formation Processes. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 49, 4, 525-544.
- Bulgakov, A., Konoplev, A., Popov, V., Scherbak, A., 1991. Removal of long-lived radionuclides from the soil by surface runoff near the Chernobyl nuclear power station. *Soviet Soil Science* 23, 124-131.

Cambray, R. S., Playford, K., Lewis, G. N. J., Carpenter, R. C., 1989. Radioactive fallout in air and rain: results to the end of 1987. Report A.E.R.E.-R 13226 DOE/RW/89/059, Environmental and Medical Sciences Division, Harwell Laboratory, Harwell, UK 20 p.

Capo, S., Brenon, I., Sottolichio, A., Castaing, P., Le Goulven, P., 2009. Tidal sediment transport versus freshwater flood events in the Konkouré Estuary, Republic of Guinea. *Journal of African Earth Sciences* 55, 1-2, 52-57.

Castaing, P., 1981. Le transfert à l'Océan des suspensions estuariennes. Cas de la Gironde. Thèse de Doctorat ès Sciences, Université de Bordeaux I, 530 p.

Cavelier, C., Pomerol, C., 1979. Chronologie et interprétation des événements tectoniques cénozoïques dans le Bassin de Paris. *Bulletin de la Société géologique de France* 7, 1, 33-48.

Chaïb, J., Thorez, J. P., 2001. Vallée de Seine, entre naissance et renaissance. Publication de l'Agence Régionale de l'Environnement de Haute-Normandie (AREHN), Région Haute-Normandie, 32 p.

Chamley, H., 2004. Base de sédimentologie. Dunod, 187 p.

Chiffolleau, J. F., Claisse, D., Cossa, D., Ficht, A., Gonzalez, J. L., Guyoy, T., Michel, P., Miramand, P., Oger, C., Petit, F., 2001. La contamination métallique. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°8, Ifremer (éd.), 39 p.

Chow, V., Maidment, D., Mays, L. A., 1988. *Applied Hydrology*. MacGraw-Hill, p.

Ciutat, A., Weber, O., Gérino, M., Boudou, A., 2006. Stratigraphic effects of tubificids in freshwater sediments: a kinetic study based on X-ray images and grain-size analysis. *Acta Oecologica* 30, 2, 228-237.

Claval, D., Antonelli, C., Masson, M., Gontier, G., Theureau, L., 2009. Suivi radioécologique de l'environnement terrestre, aquatique, continental et marin des centres nucléaires de production d'électricité français - Année 2008. Rapport IRSN/DEI/SESURE/09-21. IRSN/DEI/SESURE, 678 p.

Colin, C., 1990. Géochimie de quelques marqueurs stables et émetteurs gamma dans les sédiments du Nord-Cotentin - Contribution à la mise au point d'un protocole de métrologie gamma appliqué aux sédiments marins. Rapport IPSN/DPEI/SERE/LRM. IPSN - Laboratoire de Radioécologie Marine - Centre de la Hague, 80 p.

CSLHN, 1999. Etude sur la restauration et la création de vasières intertidales. Convention Etude Port Autonome du Havre 98, 172p.

Cundy, A. B., Hopkinson, L., Lafite, R., Spencer, K., Taylor, J. A., Ouddane, B., Heppell, C. M., Carey, P. J., Charman, R., Shell, D., Ulliyott, S., 2005. Heavy metal distribution and accumulation in two *Spartina* sp.-dominated macrotidal salt marshes from the Seine estuary (France) and the Medway estuary (UK). *Applied Geochemistry* 20, 6, 1195-1208.

Cuvilliez, A., 2008. Dynamique morphologique et sédimentaire d'une slikke et d'un schorre dans un estuaire macrotidal anthropisé (Seine-France). Thèse de doctorat en géologie, Université de Rouen, 266 p.

Cuvilliez, A., Deloffre, J., Lafite, R., Bessineton, C., 2009. Morphological responses of an estuarine intertidal mudflat to constructions since 1978 to 2005: The Seine estuary (France). *Geomorphology* 104, 3-4, 165-174.

Dalrymple, R. W., 1992. Tidal depositional systems. 195- 218. In : Facies models. Response to sea level change. Geological Association of Canada. Walker, R.G. & James, N.P. eds., 409 p.

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 p.

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.

Deloffre, J., Lafite, R., Lesueur, P., Verney, R., Lesourd, S., Cuvilliez, A., Taylor, J., 2006. Controlling factors of rhythmic sedimentation processes on an intertidal estuarine mudflat -- Role of the turbidity maximum in the macrotidal Seine estuary, France. *Marine Geology* 235, 1-4, 151-164.

Deloffre, J., Verney, R., Lafite, R., Lesueur, P., Lesourd, S., Cundy, A. B., 2007. Sedimentation on intertidal mudflats in the lower part of macrotidal estuaries: Sedimentation rhythms and their preservation. *Marine Geology* 241, 1-4, 19-32.

Delsinne, N., 2002. Evolution pluri-millénaire à pluri-annuelle du prisme sédimentaire d'embouchure de la Seine. Facteurs de contrôle naturels et d'origine anthropique. Thèse de doctorat en terre solide et enveloppe superficielle, Université de Caen, 179 p.

Dessevre-Delepoulle, A., 1978. Les eaux de la région rouennaise - Contaminations et inter-relations des pluies, nappes et rivières d'après leurs caractéristiques chimiques et isotopiques. Thèse de doctorat en géologie dynamique, sciences de l'eau, Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 152 p.

Díaz-Asencio, M., Alonso-Hernández, C. M., Bolanos-Álvarez, Y., Gómez-Batista, M., Pinto, V., Morabito, R., Hernández-Albernas, J. I., Eriksson, M., Sanchez-Cabeza, J. A., 2009. One century sedimentary record of Hg and Pb pollution in the Sagua estuary (Cuba) derived from ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs chronology. *Marine Pollution Bulletin* 59, 4-7, 108-115.

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 p.

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 p.

Dupont, J. P., Lesueur, P., Guezennec, L., Mouchel, J. M., 1997. Hydrodynamique et transport sédimentaire. Rapport Seine-Aval, 14 p p.

Dupont, J. P., Guézennec, L., Lafite, R., Le Hir, P., Lesueur, P., Brenon, I., Silva Jacinto, R., Ficht, A., Lesourd, S., Mouchel, J. M., Petit, F., Zimmerlin, I., 2001. Matériaux fins : le cheminement des particules en suspension. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°4, Ifremer (éd.), 39 p.

Dyer, K. R., 1995. Chapter 14 Sediment Transport Processes in Estuaries. In: G. M. E. Perillo. *Developments in Sedimentology*. 423-449.

Dyer, K. R., 1997. *Estuaries: A physical introduction*. Wiley, London editions, 140 p.

Erlenkeuser, H., Balzer, W., 1988. Rapid appearance of Chernobyl radiocesium in the deep Norwegian Sea sediments. *Oceanologica acta* 11, 1, 101-105.

Erlinger, C., Lettner, H., Hubmer, A., Hofmann, W., Steinhäusler, F., 2008. Determining the Chernobyl impact on sediments of a pre-Alpine lake with a very comprehensive set of data. *Journal of Environmental Radioactivity* 99, 8, 1294-1301.

Fairbridge, R. W., 1980. The estuary: its definition and chemical role. *In: Chemistry and biochemistry of estuaries*. Edition E.O.I. Cato (John Willey and Sons, Chichester). 1-35.

Fischer, A. G., Bottjer, D. J., 1991. Orbital forcing and sedimentary sequences. *Journal of sedimentary petrology* 61, 7, 1063-1069.

Foussard, V., Cuvilliez, A., Fajon, P., Fisson, C., Lesueur, P., Macur, O., 2010. Evolution morphologique d'un estuaire anthropisé de 1800 à nos jours. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°2.3, 44 p.

Garcia-Sanchez, L., 2008. Watershed wash-off of atmospherically deposited radionuclides: review of the fluxes and their evolution with time. *Journal of Environmental Radioactivity* 99, 4, 563-573.

Garcia, K., 1997. 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 p.

Gounou, C., 2008. Mobilité des éléments traces métalliques dans les sédiments : couplage et comparaison des approches chimique et microbiologique. Thèse de doctorat en sciences de l'univers et de l'environnement, Université Paris 12, 314 p.

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 p.

Guézennec, L., Romana, L. A., Goujon, R., Meyer, R., 1999. Seine-Aval : un estuaire et ses problèmes. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°1, Ifremer (éd.), 29 p.

Henner, P., Garcia-Sanchez, L., Colle, C., 2002. Thorium 232 et environnement. Fiche Radionucléide de l'IRSN. IRSN, 13 p.

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.

Hoyez, B., Cuvilliez, A., 2002. La Grande Vasière de l'estuaire de la Seine : Typologie et Cartographie. *Bulletin trimestriel de la Société Géologique Normandie et Amis du Muséum du Havre* 88, 1, 36 p.

Ikeuchi, Y., 2003. Temporal variations of ^{90}Sr and ^{137}Cs concentrations in Japanese coastal surface seawater and sediments from 1974 to 1998. *Deep Sea Research Part II: Topical Studies in Oceanography* 50, 17-21, 2713-2726.

Ilus, E., Saxén, R., 2005. Accumulation of Chernobyl-derived ^{137}Cs in bottom sediments of some Finnish lakes. *Journal of Environmental Radioactivity* 82, 2, 199-221.

IREP. Direction Générale de la Prévention des Risques du Ministère de l'écologie, du Développement Durable, et de l'énergie. Registre français des émissions polluantes Web page: <http://www.pollutionsindustrielles.ecologie.gouv.fr/IREP/index.php>, consulté le 4 juillet 2012.

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

Jacobi, W., 1971. Transfer of fission products from atmospheric fallout into river water. International Symposium on "Radioecology applied to the protection of man and his environment", Commission of the European Communities, CEC, Roma, 7-10 septembre 1971.

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

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

Jouanneau, J.-M., Castaing, P., Grousset, F., Buat-Ménard, P., Pedemay, P., 1999. Enregistrement sédimentaire et chronologie (^{137}Cs) d'une contamination en cadmium dans l'estuaire de la Gironde (France). Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIA - Earth and Planetary Science 329, 4, 265-270.

Jury, W., Roth, K., 1990. Transfer functions and solute movement through soil. Birkhäuser Verlag, 226 p.

Kelly, M., Emptage, M., Mudge, S., Bradshaw, K., Hamilton-Taylor, J., 1991. The relationship between sediment and plutonium budgets in a small macrotidal estuary: Esk estuary, Cumbria, UK. Journal of Environmental Radioactivity 13, 1, 55-74.

Khanbilvardi, R., Shestopalov, V., Onishchenko, I., Bublyas, V., Gudzenko, V., 1999. Role of erosion processes in transfer of radionuclides: results of field experiments Journal of the American Water Resources Association 35, 887-898.

Klein Tank, A. M. G., Wijngaard, J. B., Können, G. P., Böhm, R., Demarée, G., Gocheva, A., Mileta, M., Pashiardis, S., Hejkrlik, L., Kern-Hansen, C., Heino, R., Bessemoulin, P., Müller-Westermeier, G., Tzanakou, M., Szalai, S., Pálsdóttir, T., Fitzgerald, D., Rubin, S., Capaldo, M., Maugeri, M., Leitass, A., Bukantis, A., Aberfeld, R., Van Engelen, A. F. V., Forland, E., Miletus, M., Coelho, F., Mares, C., Razuvaev, V., Nieplova, E., Cegnar, T., Antonio López, J., Dahlström, B., Moberg, A., Kirchhofer, W., Ceylan, A., Pachaliuk, O., Alexander, L. V., Petrovic, P., 2002. Daily dataset of 20th-century surface air temperature and precipitation series for the European Climate Assessment. International Journal of Climatology 22, 12, 1441-1453.

Lafite, R., Guezennec, C., Dupont, J. P., Meyer, R., Wang, H. K., Huault, M. F., 1998. Transfert hydrosédimentaire dans le domaine fluvial soumis à la marée dynamique. Rapport du GIP Seine-Aval. 63-73 p.

Laguionie, P., 2006. Mesures in situ et modélisation du transport des sédiments en rivière, Application au bassin versant de la Vilaine. Thèse de doctorat en sciences de la terre, Université de Rennes 1, 331 p.

Le Cloarec, M. F., Bonté, P., Lefèvre, I., Mouchel, J. M., Colbert, S., 2007. Distribution of ^7Be , ^{210}Pb and ^{137}Cs in watersheds of different scales in the Seine River basin: Inventories and residence times. Science of The Total Environment 375, 1-3, 125-139.

Le Cloarec, M. F., Bonte, P. H., Lestel, L., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2011. Sedimentary record of metal contamination in the Seine River during the last century. Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C 36, 12, 515-529.

Le Hir, P., Silva Jacinto, R., Thouvenin, B., Guézennec, L., Bassoullet, P., Cugier, P., Le Boulenger, F., Hocdé, R., Lesueur, P., Romana, L. A., 2001. Courants, vagues et marées : les mouvements de l'eau. Fascicule de synthèse du programme scientifique Seine-Aval, n°2, Ifremer (éd.), 32 p.

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 p.

Lesourd, S., Lesueur, P., Brun-Cottan, J. C., Garnaud, S., Poupinet, N., 2003. Seasonal variations in the characteristics of superficial sediments in a macrotidal estuary (the Seine inlet, France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 58, 1, 3-16.

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 p.

Li, J., Zhang, C., 1998. Sediment resuspension and implications for turbidity maximum in the Changjiang Estuary. *Marine Geology* 148, 3-4, 117-124.

Li, Y. H., 2000. Compositions of average shale, and its related materials. Princeton University Press 475 p.

Lima, A. L., Hubeny, J. B., Reddy, C. M., King, J. W., Hughen, K. A., Eglinton, T. I., 2005. High-resolution historical records from Pettaquamscutt River basin sediments: 1. ^{210}Pb and varve chronologies validate record of ^{137}Cs released by the Chernobyl accident. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 69, 7, 1803-1812.

Maringer, F. J., 1996. The partitioning of natural radionuclides in a large alpine river. *Environment International* 22, Supplement 1, 0, 323-331.

Maringer, F. J., Tschurlovits, M., Rank, D., 1997. Recent radioecological investigations in the Austrian part of the Danube river. *In: R. J. B. R. N. J. C. J. A. F. J. H. G. Desmet and A. d. Bettencourt. Studies in Environmental Science.* 249-254.

Marion, C., 2010. Dynamique et bilans des transferts particuliers de radioéléments d'origine anthropique et naturelle dans le Golfe du Lion : cas particulier des apports rhodaniens. Thèse de doctorat en sciences de l'environnement marin, Université de Perpignan, 436 p.

Martin, J. M., Meybeck, M., 1979. Elemental mass-balance of material carried by major world rivers *Marine Chemistry* 7, 173-206.

Massei, N., Laignel, B., Deloffre, J., Mesquita, J., Motelay, A., Lafite, R., Durand, A., 2010. 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.

Menzel, R., 1960. Transport of Strontium-90 in runoff. *Science* 131, 499-500.

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., De Marsily, G., Fustec, E., 1998. La Seine en son bassin - Fonctionnement écologique d'un système fluvial anthropisé. Elsevier, 749 p.

Meybeck, M., Horowitz, A. J., Grosbois, C., 2004. The geochemistry of Seine River Basin particulate matter: distribution of an integrated metal pollution index. *Science of The Total Environment* 328, 1–3, 219-236.

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.

Michel, P., Chiffoleau, J. F., Averty, B., Auger, D., Chartier, E., 1999. High resolution profiles for arsenic in the Seine Estuary. Seasonal variations and net fluxes to the English Channel. *Continental Shelf Research* 19, 15-16, 2041-2061.

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

Monte, L., 1995. Evaluation of radionuclide transfer functions from drainage basins of fresh water systems. *Journal of Environmental Radioactivity* 26, 1, 71-82.

Monte, L., 1997. A collective model for predicting the long term behaviour of radionuclides in rivers. *science of The Total Environment* 201, 17-29.

Motelay-Massei, A., 2003. Contribution du compartiment atmosphérique au transfert des HAP dans le bassin versant aval de la Seine : Bilan à l'échelle de deux bassins versants expérimentaux. Thèse de doctorat en géosciences et ressources naturelles, Université Paris VI, Pierre et Marie Curie, 359 p.

Mundschenk, H., 1996. Occurrence and behaviour of radionuclides in the Moselle River—Part I: Entry of natural and artificial radionuclides. *Journal of Environmental Radioactivity* 30, 3, 199-213.

Nelder, J. A., Mead, R., 1965. A simplex method for function minimization. *Computer Journal* 7, 308-313.

Pally, M., Lambrechts, A., 1997. Bilan radioécologique décennal du Centre Nucléaire de Production d'Electricité de Nogent-sur-Seine. Rapport SERE 98/022. IRSN, 193 p.

Parache, V., 2008. Bilan radioécologique décennal de l'environnement proche du C.N.P.E. de Nogent-sur-Seine. Rapport IRSN/DEI/SESURE/2011-12. 172 p.

Priadi, C., Ayrault, S., Pacini, S., Bonte, P., 2010. Variabilité spatiale et temporelle de la spéciation des métaux particuliers en Seine : approche par l'extraction séquentielle. Programme PIREN-Seine : Spéciation des métaux par l'extraction séquentielle. 14 p.

R-Core-Team, 2012. R : A Language and Environment for Statistical Computing. R Foundation for Statistical Computing, 409 p.

Rees, J. G., Ridgway, J., Knox, R. W. O. B., Wiggans, G., Breward, N., 1999. Sediment-borne Contaminants in Rivers Discharging into the Humber Estuary, UK. *Marine Pollution Bulletin* 37, 3-7, 316-329.

Reineck, H. S., Singh, I. B., 1973. *Depositional Sedimentary Environments*. Springer - Verlag Berlin - Heidelberg - New-York, 439 p.

Renaud, P., Pourcelot, L., Métivier, J.-M., Morello, M., 2003. Mapping of ¹³⁷Cs deposition over eastern France 16 years after the Chernobyl accident. *Science of The Total Environment* 309, 1-3, 257-264.

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

Ritchie, J. C., Mchenry, J. R., 1990. Application of radioactive fallout cesium-137 for measuring soil erosion and sediment accumulation rates and patterns: a review. *Journal of Environmental Quality* 19, 215-233.

Roupsard, P., Maro, D., Coppalle, A., Ruban, V., Percot, S., Connan, O., Laguionie, P., Solier, L., Rozet, M., Hébert, D., Talbaut, M., 2012. Experimental study of the submicron aerosol dry deposition in the urban canopy: original methodology and first results. 19ème European Aerosol Conference, Poster, Granada, Spain, 2-7 septembre 2012.

Roussel-Debel, S., Renaud, P., Métivier, J.-M., 2007. ^{137}Cs in French soils: Deposition patterns and 15-year evolution. *Science of The Total Environment* 374, 2–3, 388-398.

Rutherford, P. M., Dudas, M. J., Samek, R. A., 1994. Environmental impacts of phosphogypsum. *Science of The Total Environment* 149, 1–2, 1-38.

Saari, H.-K., 2008. Dynamique saisonnière des transferts particuliers dans les systèmes fluviaux-estuariens : application des radioisotopes à courtes périodes : ^{234}Th , ^7Be et ^{210}Pb . Thèse de doctorat en géochimie et écotoxicologie, Université de Bordeaux 1, 185 p.

Saito-Kokubu, Y., Yasuda, K., Magara, M., Miyamoto, Y., Sakurai, S., Usuda, S., Yamazaki, H., Yoshikawa, S., Nagaoka, S., Mitamura, M., Inoue, J., Murakami, A., 2008. Depositional records of plutonium and ^{137}Cs released from Nagasaki atomic bomb in sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki. *Journal of Environmental Radioactivity* 99, 1, 211-217.

Salbu, B., Bjornstad, H., Brittain, J., 1992. Fractionation of cesium isotopes and ^{90}Sr in snowmelt run-off and lake waters from a contaminated norwegian mountain catchment *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 156, 7-20.

Salo, A., Saxén, R., Puhakainen, M., 1984. Transport of airborne ^{90}Sr and ^{137}Cs deposited in the basins of the five largest rivers in Finland. *Aqua Fennica* 14, 21-31.

Salomon, J. C., Allen, G. P., 1983. Rôle sédimentologique de la marée dans les estuaires à fort marnage. *Compagnie Française des Pétroles. Notes et mémoires n° 18*, 35-44.

San Miguel, E. G., Bolivar, J. P., Garcia-Tenorio, R., 2004. Vertical distribution of Th-isotope ratios, ^{210}Pb , ^{226}Ra and ^{137}Cs in sediment cores from an estuary affected by anthropogenic releases. *Science of The Total Environment* 318, 1–3, 143-157.

Saxén, R., 1994. Transport of ^{137}Cs in large Finnish drainage basins. *In: E. H. Dahlgaard. The transfer of Radionuclides through Nordic Ecosystems to Man. Elsevier, Amsterdam.* 63-78.

Sayles, F. L., Livingston, H. D., Panteleyev, G. P., 1997. The history and source of particulate ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ deposition in sediments of the Ob River Delta, Siberia. *Science of The Total Environment* 202, 1–3, 25-41.

Schott, C., Mignolet, C., Benoît, M., 2009. Agriculture du bassin de la Seine. Découvrir l'agriculture du bassin de la Seine pour comprendre les enjeux de la gestion de l'eau. Collection du programme PIREN-Seine, Agence de l'eau, 78 p.

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.

Seine-Aval, G., 2008. Contextes climatiques, morphologiques et hydro-sédimentaire : Dynamique des matériaux fins dans l'estuaire de la Seine. Fiche thématique du GIP Seine-Aval, 6 p.

Simon, S., 1990. Commission chargée de contrôler l'évolution de la pollution en estuaire et en baie de Seine. Secrétariat d'Etat à l'Environnement, Ministère Délégué Chargé de la Mer, Agence de Bassin Seine-Normandie, SPPPI/Conseil Général de la seine-Maritime. IFREMER, 36p p.

Smith, J. T., Clarke, R. T., Saxén, R., 2000. Time-dependent behaviour of radiocaesium: A new method to compare the mobility of weapons test and Chernobyl derived fallout. *Journal of Environmental Radioactivity* 49, 1, 65-83.

Snyder, D. C., Delmore, J. E., Tranter, T., Mann, N. R., Abbott, M. L., Olson, J. E., 2012. Radioactive cesium isotope ratios as a tool for determining dispersal and re-dispersal mechanisms downwind from the Nevada Nuclear Security Site. *Journal of Environmental Radioactivity* 110, 0, 46-52.

Sognon, S., 1999. Erosion des sols cultivés et transport des matières en suspension dans un bassin versant de Brie : applications des traceurs radioactifs naturels et magnétiques. Thèse de doctorat en géosciences, Université Paris I, 304 p.

Spezzano, P., Bortoluzzi, S., Giacomelli, R., Massironi, L., 1994. Seasonal variations of ^{137}Cs activities in the Dora Baltea river (northwest Italy) after the Chernobyl accident *Journal of Environmental Radioactivity* 22, 77-88.

Strahler, A. N., 1957. Quantitative analysis of watershed geomorphology. *American Geophysical Union* 38, 913-920.

Thévenot, D. R., Meybeck, M., Lestel, L., 2002. Métaux lourds : des bilans en mutation. Rapport de synthèse PIREN-Seine 1998–2001. 76 p.

Thévenot, D. R., Moilleron, R., Lestel, L., Gromaire, M.-C., Rocher, V., Cambier, P., Bonté, P., Colin, J.-L., De Pontevès, C., Meybeck, M., 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, 180-203.

Thévenot, D. R., Lestel, L., Tusseau-Vuillemin, M. H., Gonzalez, J. L., Meybeck, M., 2009. Les métaux dans le bassin de la Seine. Collection du programme PIREN-Seine, Agence de l'eau, 58 p.

Thomas, A. J., 1988. Géochimie des radioéléments naturels et artificiels : application à l'étude de l'interface continent-océan. Thèse de doctorat d'état en sciences, Université Pierre Marie Curie, 409 p.

Thomson, J., Dyer, F. M., Croudace, I. W., 2002. Records of radionuclide deposition in two salt marshes in the United Kingdom with contrasting redox and accumulation conditions. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 66, 6, 1011-1023.

Thorne, L. T., Nickless, G., 1981. The relation between heavy metals and particle size fractions within the severn estuary (U.K.) inter-tidal sediments. *Science of The Total Environment* 19, 3, 207-213.

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.

Uncles, R. J., Elliott, R. C. A., Weston, S. A., 1985. Observed fluxes of water, salt and suspended sediment in a partly mixed estuary. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 20, 2, 147-167.

Uncles, R. J., Stephens, J. A., 1993. Nature of the Turbidity Maximum in the Tamar Estuary, U.K. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 36, 5, 413-431.

Van Leussen, W., 1991. Fine sediment transport under tidal action. *Geo-Marine Letters* 11, 3, 119-126.

Voitsekhovitch, O., Nasvit, O., Los'y, I., Berkovsky, V., 1997. Present thoughts on the aquatic countermeasures applied to regions of the Dnieper river catchment contaminated by the 1986

Chernobyl accident. In: *Freshwater and Estuarine Radioecology*. Eds. G. Desmet et al., *Studies in Environmental Sciences*, Elsevier 68, 75-87.

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 p.

Wolanski, E., Williams, D., Hanert, E., 2006. The sediment trapping efficiency of the macro-tidal Daly Estuary, tropical Australia. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 69, 1-2, 291-298.

Zonta, R., Collavini, F., Zaggia, L., Zuliani, A., 2005. The effect of floods on the transport of suspended sediments and contaminants: A case study from the estuary of the Dese River (Venice Lagoon, Italy). *Environment International* 31, 7, 948-958.

Liste des figures et tableaux

Liste des figures

Figure 1 : Sources et transferts des contaminants vers l'estuaire de la Seine. Les flèches représentent les transferts particuliers. 14

Figure 2 : Le bassin versant de la Seine ; en bleu, son réseau hydrographique ; du marron au vert, son relief (source : GIP Seine-Aval). 18

Figure 3 : Coupe schématique des formations sédimentaires dans le bassin de Paris (Cavelier and Pomerol, 1979). 18

Figure 4 : Occupation des sols sur le bassin versant de la Seine (Source : AESN-DIREN, d'après Corine Land Cover et BD RHF). La zone représentée ici concerne la zone gérée par l'Agence de l'Eau Seine-Normandie ; cette zone est légèrement plus vaste que le bassin versant de la Seine puisqu'elle comprend en plus de nombreux petits bassins versants côtiers. 19

Figure 5 : Débits de la Seine au barrage de Poses (PK 202) entre 1941 et 1990 (Guézennec, 1999). — : débits mensuels moyens ; : débit annuel moyen ; courbes des débits minima et maxima. 20

Figure 6 : Découpage de l'estuaire de la Seine en 3 zones : estuaire fluvial, estuaire moyen, estuaire marin ; d'après Guézennec (1999) et Deloffre et al. (2005). 22

Figure 7 : Le bassin versant intra-estuarien de la Seine aval et le bassin versant global de la Seine avec son réseau hydrographique (Guézennec, 1999). 23

Figure 8 : Courbes de marée à Petit Couronne (PK 252) par différents coefficients. Heures et hauteurs référencées par rapport à la basse mer au Havre et au 0 des cartes marines du Havre (données GPMR, annuaire des marées 2010). 24

Figure 9 : Vitesses de courant dans le chenal de la Seine à Rouen (PK 245) par différents coefficients (données GPMR, annuaire des marées 2010). 25

Figure 10 : Comparaison des évolutions annuelles des flux de matériel particulaire dans la partie fluviale (amont de Poses), en bleu, et dans l'estuaire amont de la Seine, en rouge (Dupont et al., 2001). 26

Figure 11 : Bilan quantitatif des échanges annuels entre estuaire amont et estuaire (Dupont et al., 2001). 27

Figure 12 : Le cycle des micropolluants est intimement lié à celui de l'eau (Motelay-Massei, 2003). 28

Figure 13 : Comparaison des flux particuliers et dissous (Jambon and Thomas, 2009). 30

Figure 14 : Concentration des éléments-traces dans la croûte terrestre et dans les fleuves (MES et fraction dissoute). Les concentrations des métaux nobles (Au, Pt, etc. non illustrées) dans la croûte sont inférieures à 0,1 ppm. Données de McLennan, 2001 (croûte), Vier et al., 2009 (MES, b) et Gaillard et, 2003 (dissous). Les MES (a) sont une estimation pour les grands fleuves présumés non pollués (Jambon and Thomas, 2009). 31

Figure 15 : Distribution des éléments-traces dans les fleuves entre les MES et la solution (K_D) ; $T_p/T_T = \text{transport particulaire} / \text{transport total particulaire + dissous}$, calculé avec les moyennes mondiales ($Q_s/Q_l = 350 \text{ mg.L}^{-1}$, soit $3,5 \cdot 10^{-4}$) ; (Jambon and Thomas, 2009). 32

Figure 16 : Cycle biogéochimique des contaminants atmosphériques dans l'environnement (Motelay-Massei, 2003). 33

Figure 17 : Localisation des 3 sites de carottages sélectionnés pour la présente étude : la Darse des Docks, Bouafles et la Vasière Nord ; d'après Guézennec (1999) et Deloffre et al. (2005). 38

Figure 18 : Localisation de la Darse des Docks dans l'estuaire de la Seine (Source de la photographie : Géoportail, <http://www.geoportail.fr>). 44

Figure 19 : Carte d'un tronçon de la Seine en 1921 au niveau de Petit-Couronne avant la construction de la Darse des Docks (Source : GPMR).....	45
Figure 20 : Carte d'une portion de la Seine en 1929 au niveau de Petit-Couronne pendant la construction de la Darse des Docks (Source : Port Autonome de Rouen).	45
Figure 21 : Photo non datée de la Darse des Docks ; Présence des 4 docks au fond de la darse (Source : Ville de Petit-Couronne).....	46
Figure 22 : Schéma récapitulatif des dragages d'entretien effectués dans la Darse des Docks entre 1949 et 1985 (Source de la photographie : Géoportail, http://www.geoportail.fr ; informations historiques : GPMR).....	46
Figure 23 : Photo du carottier à percussion embarqué à bord de la barge Lamatrans II (carottage de juin 2010, Darse des Docks ; Crédit photo : Carole Dubrulle-Brunaud).....	47
Figure 24 : Localisation des sites de prélèvement de 2008 (Site 1 et 2) et 2010 (Site 3) ; (Source de la photographie : Géoportail, http://www.geoportail.fr).....	48
Figure 25 : Description lithologique, photographie et radiographie SCOPIX® de la carotte 2VC2 effectuées lors de son ouverture.	49
Figure 26 : Photographie d'un extrait du tronçon B de la carotte 2VC2.	50
Figure 27 : Répartition des sédiments des carottes de vases consolidées du site 2 pour les différentes études.	50
Figure 28 : Teneur en eau des sédiments des carottes 2VM1, 2VC1 et 3VC2, après corrections de la profondeur sur la carotte 2VC1 et 3VC2 (Paragraphe 9.1).	52
Figure 29 : Granulométrie des sédiments des carottes 2VM1 et 2VC1 ; médiane et proportion en sable, silt et argile sur l'ensemble de ces deux carottes. La profondeur de la carotte 2VC1 a été corrigée des pertes de sédiment et du tassement dus au carottage (Paragraphe 9.1.1).	53
Figure 30 : Granulométrie des sédiments de la carotte 3VC2 ; médiane et proportion en sable, silt et argile sur l'ensemble de la carotte. La profondeur de la carotte 3VC2 a été corrigée des pertes de sédiment dus au carottage (Paragraphe 9.1.2).	54
Figure 31 : Diagrammes ternaires des textures pour deux types d'échantillonnages (Vrel, 2009).	54
Figure 32 : Evolution de la composition du cortège argileux en fonction de la profondeur dans la carotte 2VC2.	56
Figure 33 : Eléments mesurés dans les sédiments par ICP-OES et ICP-MS.	57
Figure 34 : Gammes des concentrations mesurées en pourcentage de chaque élément majeur dans les sédiments de la Darse des Docks en marron. Valeur de la référence shales en vert.....	58
Figure 35 : Gammes des concentrations mesurées en mg.kg ⁻¹ de sédiment sec de chaque élément-trace dans les sédiments de la Darse des Docks (Ln représente l'ensemble des lanthanides). Valeur de la référence shales en vert.	59
Figure 36 : Gammes des activités mesurées de chaque radionucléide dans les sédiments de la Darse des Docks. A gauche, les radionucléides émetteurs γ artificiels (¹³⁷ Cs) et naturels (famille du ²³² Th, ²³⁵ U, ²³⁸ U) ; à droite, les radionucléides émetteurs α	60
Figure 37 : Mise en parallèle des différentes carottes prélevées.....	62
Figure 38 : Schéma d'une possibilité de correspondance entre 2VM1 et 2VC1.....	64
Figure 39 : Flux de ¹³⁷ Cs déposé sur le bassin versant de la Seine par voie humide et sèche de 1960 à 2007 ; d'après données fournies par le Laboratoire de Mesures de la Radioactivité dans l'Environnement de l'IRSN.....	68

Figure 40 : Schéma illustrant les ruptures (hiatus) dans la sédimentation sur le site de la Darse des Docks.	69
Figure 41 : Activité du ^{137}Cs sur le profil de la Darse des Docks ; (Reconstitution issue de 4 carottes prélevées sur le même site).....	69
Figure 42 : Evolution de la sédimentation au cours du temps sur le site de la Darse des Docks.	70
Figure 43 : Partie d'une image SCOPIX® de la carotte 2VC2 (positif : teintes claires = vides gazeux). a) image avec délimitations des lamines et durées correspondantes de dépôt ; b) image seule.	72
Figure 44 : Analyse en ondelettes sur les niveaux de gris de la carotte 2VC2 après traitement des données par un filtre de Savitzky-Golay.....	73
Figure 45 : Séries temporelles des concentrations en éléments majeurs (%) et en lithium (ppm) des sédiments de la Darse des Docks.	75
Figure 46 : Evolution des FE des éléments-traces influencés par les rejets de phosphogypses des sédiments de la Darse des Docks au cours du temps.....	77
Figure 47 : Evolution des FE des éléments-traces des sédiments de la Darse des Docks présentant peu de variations au cours du temps.	78
Figure 48 : Evolution des FE des éléments-traces des sédiments de la Darse des Docks en diminution constante au cours du temps.	79
Figure 49 : Evolution des FE des terres rares dans les sédiments de la Darse des Docks au cours du temps.	80
Figure 50 : Spectre des teneurs en terres rares normées aux shales pour deux échantillons prélevés dans les carottes de la Darse des Docks (1) à 12 cm de profondeur, période récente, (2) à 392 cm de profondeur, période de rejet des phosphogypses.	81
Figure 51 : Série temporelle de l'anomalie en Eu calculé par l'expression $\text{Eu}/\text{Eu}^* = 3\text{Eu}_N / (2\text{Sm}_N + \text{Tb}_N)$ avec Eu la teneur mesurée dans les sédiments, Eu^* la teneur hypothétique en Eu, et Eu_N , Sm_N , et Tb_N les teneurs normées aux shales en Eu, Sm et Tb.....	81
Figure 52 : Série temporelle de l'anomalie en Ce calculé par l'expression $\text{Ce}/\text{Ce}^* = 3\text{Ce} / (2\text{La}_N + \text{Nd}_N)$ avec Ce la teneur mesurée dans les sédiments, Ce^* la teneur hypothétique en Ce, et La_N et Nd_N , les teneurs normées aux shales en Eu, Sm et Tb.....	81
Figure 53 : Série temporelle de l'activité massique du ^{40}K dans les sédiments de la Darse des Docks, calculée à partir des mesures ICPMS.....	82
Figure 54 : Evolution temporelle des activités en ^{137}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 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{sec} \pm 2\sigma$	82
Figure 55 : Evolution temporelle des activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Darse des Docks ; valeurs rapportées à la date de 2010 exprimées en $\text{mBq}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{sec} \pm 2\sigma$. Les activités du ^{238}Pu sont corrigées de la décroissance depuis le dépôt (notées $^{238}\text{Pu}^*$).	83
Figure 56 : 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}Pu depuis le dépôt, notées *. La barre horizontale représente la valeur de 0,04, caractéristique des retombées des essais nucléaires atmosphériques.	84
Figure 57 : Evolution temporelle des activités en ^{241}Am et ^{244}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}Cm , exprimées en $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{sec} \pm 2\sigma$	85

Figure 58 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{232}Th : ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; les activités en ^{232}Th ont été calculées à partir des mesures effectuées par ICP-MS ; les activités en ^{208}Tl ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les activités en ^{212}Bi , très voisines de celles en ^{212}Pb , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$	86
Figure 59 : Evolution temporelle des activités en ^{235}U et ^{227}Th ; valeurs en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$	86
Figure 60 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne de ^{238}U : ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb ; les activités en ^{238}U ont été calculées à partir des mesures effectuées par ICP-MS ; les activités en ^{214}Bi , très voisines de celles en ^{214}Pb , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$	87
Figure 61 : Localisation du site d'étude (Source de la photographie : Géoportail, http://www.geoportail.fr).....	92
Figure 62 : Carte de 1898 représentant une portion de la Seine à Bouafles. L'astérisque rouge indique le site de carottage (Source: Service de navigation de la Seine ; communiquée par P. Bonté).....	93
Figure 63 : Vue aérienne actuelle du site de carottage à Bouafles avec indications historiques (Source de la photographie : Google Maps, http://maps.google.fr/maps).....	93
Figure 64 : Photographies aériennes de la partie sud du village de Bouafles en 1947 et en 2009 (Photographies IGN).....	94
Figure 65 : Localisation du point de carottage (Source de la photographie : Géoportail, http://www.geoportail.fr).....	95
Figure 66 : Carottier à percussion déployé sur le site de Bouafles (Crédit photo : P. Lesueur).....	95
Figure 67 : Schéma en coupe illustrant la méthode de mesure du tassement du sédiment engendré par le carottage.....	96
Figure 68 : Dessin de la carotte BOUA-01-2010, photographies et image SCOPIX® de la carotte BOUA-02-2010.....	97
Figure 69 : Granulométrie des échantillons issus de la carotte BOUA-01-2010 : médiane et proportion en sable, silt et argile, en % de la masse totale.....	99
Figure 70 : Evolution de la composition du cortège argileux en fonction de la profondeur dans la carotte BOUA-02-2010.....	100
Figure 71 : Gammes des concentrations mesurées en % de sédiment sec de chaque élément majeur dans les sédiments de Bouafles en vert. Valeur de la référence shales en rouge (Li, 2000).....	101
Figure 72 : Gammes des concentrations mesurées en mg.kg^{-1} de sédiment sec de chaque élément-trace dans les sédiments de Bouafles en vert (Ln représente l'ensemble des lanthanides) ; valeur de la référence shales en rouge (Li, 2000).....	102
Figure 73 : Gammes des activités mesurées de chaque radionucléide dans les sédiments de Bouafles ; à gauche, les radionucléides émetteurs γ ; à droite, les radionucléides émetteurs α	103
Figure 74 : Relation entre débits à Poses et hauteurs d'eau à Gaillon de la Seine entre 1991 et 2005.....	106
Figure 75 : Photo aérienne du site de carottage avec localisation du point de carottage et de la coupe schématique dessinée à droite (Source de la photographie : Géoportail, http://www.geoportail.fr).....	108
Figure 76 : Hauteur d'eau de la Seine entre 2004 et 2011 (valeurs calculées) et détermination de l'altitude de la levée artificielle en vert.....	108
Figure 77: Coupe topographique dans le bras mort de Bouafles ; le point à 12 m d'altitude représente la levée artificielle ; le point de carottage est actuellement situé à 11 m d'altitude (Source : http://www.cartes-topographiques.fr/France.html)... ..	109
Figure 78 : Reconstitution de l'historique des hauteurs d'eau de la Seine entre 1954 et 2004 (bleu) et altitude du seuil d'inondation du site de Bouafles (vert).....	110
Figure 79 : Nombre de jours d'inondation sur le site de carottage à Bouafles pour chaque année entre 1954 et 2004.....	111

Figure 80 : Epaisseur de sédiment déposé chaque année.	112
Figure 81: Evolution de la sédimentation au cours du temps sur le site d'étude de la plaine d'inondation de Bouafles.	114
Figure 82 : Séries temporelles des concentrations en éléments majeurs (%) et en lithium (ppm) des sédiments de Bouafles.	116
Figure 83 : Séries temporelles des FE des éléments-traces de la série 1 sur le site de Bouafles.....	118
Figure 84 : Relation entre les concentrations en Bi et Cd dans les sédiments de Bouafles.....	118
Figure 85 : Séries temporelles des FE des éléments-traces de la série 2 sur le site de Bouafles.....	119
Figure 86 : Séries temporelle des FE des éléments-traces de la série 3 sur le site de Bouafles.	120
Figure 87 : Séries temporelle des FE des terres rares sur le site de Bouafles.	121
Figure 88 : Spectre des teneurs en terres rares normées aux shales de l'échantillon BOUA-01-2010-057, prélevé à 56,5 cm de profondeur sur la carotte de Bouafles et daté à 1970,3.....	122
Figure 89 : Evolution temporelle des activités en ^{137}Cs sur le site de Bouafles. Les valeurs en jaune (^{137}Cs) représentent les données brutes telles qu'elles étaient à la date du prélèvement de la carotte. Les valeurs en orange ($^{137}\text{Cs}^*$) représentent les données corrigées de la décroissance radioactive depuis le dépôt. Les 5 premiers points de la série correspondent à des valeurs inférieures à la limite de détection ($2,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$).	123
Figure 90 : Séries temporelles des activités en ^{238}Pu et $^{239,240}\text{Pu}$ sur le site de Bouafles.	124
Figure 91 : Evolution du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de Bouafles ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance du ^{238}Pu depuis le dépôt, notées * ; la ligne orange représente les valeurs caractéristiques des retombées des essais nucléaires atmosphériques.	125
Figure 92 : Evolution temporelle des concentrations en ^{241}Am et ^{244}Cm dans les sédiments de Bouafles ; valeurs rapportées à la date référence de 2010 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées * pour le ^{244}Cm	125
Figure 93 : Evolution temporelle des concentrations des radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{232}Th : ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; les activités en ^{232}Th ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en ^{208}Tl ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les concentrations en ^{212}Bi , très voisines de celles en ^{212}Pb , ne sont pas représentées ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$	126
Figure 94 : Evolution temporelle des concentrations en ^{235}U ; valeurs en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$	127
Figure 95 : Evolution temporelle des activités des radionucléides émetteurs γ de la chaîne de l' ^{238}U : ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb ; les activités en ^{238}U ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en ^{214}Bi , très voisines de celles en ^{214}Pb , ont été omises ; activités exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$	127
Figure 96 : Localisation de la Vasière Nord et du point de carottage (Source de la photographie : Géoportail, http://www.geoportail.fr).....	134
Figure 97 : Cartes récentes de la bathymétrie dans l'estuaire aval ; situations en 1970 et 1990, simplifiées et redessinées d'après les sondages du Port de Rouen. Les axes des chenaux nord et sud sont matérialisés par des tirets, de part et d'autre du chenal de navigation limité par des digues submersibles à marée haute, marquées par des traits noirs pleins (Lesueur et al., 1999).	135
Figure 98 : Morphologie et nature des sédiments d'une vasière intertidale ; séquence de comblement (Dalrymple, 1992)..	136
Figure 99 : Diagramme schématique de migration d'un chenal sur une vasière (Reineck and Singh, 1973).	136

Figure 100 : Evolution morphologique de l'estuaire aval de la Seine en 40 ans (Lesueur et al., 1999) ; les points rouges indiquent le site de carottage.	137
Figure 101 : Description lithologique de la carotte VKVN01 (P. Lesueur et N. Delsinne).	138
Figure 102 : Extrait de tronçon de la carotte VKVN01.	139
Figure 103 : Images SCOPIX® après analyses de la carotte VKVN01 : les profondeurs sont exprimées en cm.	139
Figure 104 : Extrait de l'image SCOPIX® de la carotte VKVN01 entre 195 et 205 cm de profondeur ; les niveaux les plus clairs sont les plus argileux, les niveaux les plus foncés les plus sableux.	140
Figure 105 : Granulométrie des échantillons issus de la carotte VKVN01 : médiane et proportions en sable, silt et argile ; la médiane de l'échantillon le moins profond dépasse 100 µm (non visible sur le graphique).	141
Figure 106 : Evolution de la composition du cortège argileux en fonction de la profondeur dans la carotte VKVN01.	142
Figure 107 : Gammes des concentrations mesurées en % de sédiment sec de chaque élément majeur dans les sédiments de la Vasière Nord en bleu ; valeur de la référence shales en marron (Li, 2000).	143
Figure 108 : Gammes des concentrations mesurées en µg.g ⁻¹ de sédiment sec de chaque élément-trace dans les sédiments de la Vasière Nord en bleu (Ln représente l'ensemble des lanthanides) ; valeur de la référence shales en marron (Li, 2000).	144
Figure 109 : Gamme des activités mesurées de chaque radionucléide dans les sédiments de la Vasière Nord ; à gauche, les radionucléides émetteurs γ ; à droite, les radionucléides émetteurs α.	146
Figure 110 : Cartes bathymétriques de la Vasière Nord datées de 1960 à 2001 ; le point de carottage est indiqué en rouge (données brutes : GPMR et GPMH ; références données par rapport au zéro des cartes marines du Havre ; cartes établies par N. Delsinne).	147
Figure 111 : Profil d'évolution de la topographie de la Vasière Nord au point de carottage ; deux carottes sont représentées : la carotte VKVN01 est à droite (Com. Pers. N. Delsinne).	148
Figure 112 : Comblement de la vasière au point de carottage au cours du temps ; les taux de sédimentation moyens sont indiqués pour chaque période entre les repères de datation.	148
Figure 113 : Séries temporelles des concentrations en éléments majeurs (%) et en lithium (ppm) des sédiments de la Vasière Nord.	150
Figure 114 : Evolution des FE des éléments-traces de la série 1 sur le site de la Vasière Nord.	152
Figure 115 : Evolution des FE des éléments-traces de la série 2 sur le site de la Vasière Nord.	153
Figure 116 : Evolution des FE des éléments-traces de la série 3 sur le site de la Vasière Nord.	154
Figure 117 : Evolution des FE des terres rares sur le site de la Vasière Nord.	155
Figure 118 : Evolution temporelle des activités en ¹³⁷ Cs sur le site de la Vasière Nord ; les valeurs en jaune représentent les données brutes rapportées à la date du prélèvement de la carotte ; les valeurs en orange représentent les données corrigées de la décroissance depuis le dépôt.	156
Figure 119 : Evolution temporelle des activités des rejets liquides de ¹³⁷ Cs de l'usine de retraitement de combustibles nucléaires de La Hague (Données AREVA).	157
Figure 120 : Evolution temporelle des activités en ²³⁸ Pu et ^{239,240} Pu sur la Vasière Nord.	158
Figure 121 : Evolution temporelle des rejets liquides en ²³⁸ Pu et ^{239,240} Pu de l'usine de retraitement de La Hague.	159

Figure 122 : Evolution du rapport isotopique du $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ dans les sédiments de la Vasière Nord ; valeurs rapportées à la date de référence de 2002 et corrigées de la décroissance du ^{238}Pu depuis le dépôt, notées * ; rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ des retombées atmosphériques des essais nucléaires (orange) ; rapport $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ issu des rejets cumulés de l'usine de retraitement de La Hague (vert). 159

Figure 123 : Evolution temporelle des activités en ^{241}Am et ^{244}Cm dans les sédiments de la Vasière Nord ; valeurs rapportées à la date référence de 2002 et corrigées de la décroissance depuis le dépôt, notées * pour le ^{244}Cm , exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec} \pm 2\sigma$ 160

Figure 124 : Evolution temporelle des activités en ^{40}K dans les sédiments de la Vasière Nord (activités déduites des mesures du K stable, effectuées par ICPMS). 161

Figure 125 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{232}Th : ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{208}Tl ; les activités en ^{232}Th ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICP-MS ; les concentrations en ^{208}Tl ont été corrigées du rapport d'embranchement (0,36) pour faciliter la comparaison avec les autres radionucléides ; les concentrations en ^{212}Bi , très voisines de celles en ^{212}Pb , ont été omises ; les valeurs en noir représentent des niveaux très sableux ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$ 161

Figure 126 : Evolution temporelle des activités en radionucléides émetteurs γ de la chaîne du ^{238}U : ^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{210}Pb ; les activités en ^{238}U ont été calculées à partir des concentrations mesurées par ICPMS ; les concentrations en ^{214}Bi , très voisines de celles en ^{214}Pb , ont été omises ; valeurs exprimées en $\text{Bq.kg}^{-1}\text{sec}$ 162

Figure 127 : Localisation des 3 sites de prélèvements de MES par la Cellule Anti-pollution de la Seine..... 167

Figure 128 : Evolution des teneurs en Al dans les MES prélevées respectivement en amont de Poses, à la Bouille, et à Honfleur, et dans les sédiments des carottes datées prélevées respectivement à Bouafles, dans la Darse des Docks et sur la Vasière Nord. Les données des MES sont représentées en couleurs plus claires par des points ; les données sur les sédiments carottés sont représentées en traits continus. 169

Figure 129 : Teneurs en Ag normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite).171

Figure 130 : Teneurs en Cd normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas)..... 171

Figure 131 : Teneurs en Cr normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) ; et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas)..... 172

Figure 132 : Teneurs en Co normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas)..... 173

Figure 133 : Teneurs en Cu normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas)..... 173

Figure 134 : Teneurs en Fe normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas)..... 174

Figure 135 : Teneurs en Mn normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).....	175
Figure 136 : Teneurs en Ni normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).....	175
Figure 137 : Teneurs en Pb normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).....	176
Figure 138 : Teneurs en Ti normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) ; et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).....	177
Figure 139 : Teneurs en V normalisés à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).....	177
Figure 140 : Teneurs en Zn normalisées à l'Al au cours du temps dans les MES prélevées en amont de Poses (gauche), à la Bouille (droite), à Honfleur (bas) et dans les sédiments des carottes datées prélevées à Bouafles (gauche), dans la Darse des Docks (droite), sur la Vasière Nord (bas).....	178
Figure 141 : Comparaison entre les activités en radionucléides mesurées dans les MES de la Seine entre 1979 et 2000 (d'après Thomas (1988) ; Garcia (1997) ; Jeandel et al. (1980) ; IRSN, données non publiées) et les activités déduites aux mêmes dates de l'enregistrement sédimentaire daté de la Darse des Docks ; valeurs exprimées en $Bq.kg^{-1}.sec \pm 2\sigma$	180
Figure 142 : Flux annuels de 3 éléments (haut : Y ; milieu : Rb ; bas : Pb) au cours du temps au niveau de la Darse des Docks. Le flux naturel correspond à ce que serait le flux sans contamination, c'est-à-dire au flux de l'élément pour un sédiment de type shales contenant 4 % d'Al.....	183
Figure 143 : Flux moyens annuels des différents éléments majeurs au niveau de Bouafles pour 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.....	184
Figure 144 : Flux moyens annuels des différents éléments majeurs au niveau de la Darse des Docks pour 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.....	184
Figure 145 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs ont été influencées par les rejets de phosphogypses au niveau de la Darse des Docks. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.....	186
Figure 146 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs ont été influencées par les rejets de phosphogypses au niveau de la Darse des Docks. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.....	186

Figure 147 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs sont peu variables au cours du temps. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair..... 188

Figure 148 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs ont été peu variables au cours du temps. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange..... 188

Figure 149 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs sont en décroissance continue de 1960 à 2000. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair..... 189

Figure 150 : Flux moyens annuels de différents éléments-traces au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. Ces éléments sont ceux dont les teneurs sont en décroissance continue de 1960 à 2000. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange..... 189

Figure 151 : Flux moyens annuels des différentes terres rares au niveau de Bouafles pendant 3 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair. 190

Figure 152 : Flux moyens annuels des différentes terres rares au niveau de la Darse des Docks pendant 3 périodes différentes : 1960-1964, 1965-1975, 1995-2002. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange..... 190

Figure 153 : Flux moyens annuels de ^{40}K et de ^{137}Cs au niveau de Bouafles pendant 4 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002 ; exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. Le ^{137}Cs prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair..... 191

Figure 154 : Flux moyens annuels du ^{40}K et du ^{137}Cs au niveau de la Darse des Docks pendant 4 périodes : 1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002 ; exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. Le ^{137}Cs prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange..... 192

Figure 155 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{232}Th au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair..... 193

Figure 156 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{232}Th au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange..... 193

Figure 157 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{235}U au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair..... 194

Figure 158 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{235}U au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange..... 194

Figure 159 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{238}U au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair..... 195

Figure 160 : Flux moyens annuels des radionucléides de la chaîne du ^{238}U au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.....	195
Figure 161 : Flux moyens annuels des radionucléides émetteurs α au niveau de Bouafles durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. Le ^{238}Pu prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments. La valeur du flux moyen est représentée en vert foncé, les valeurs extrêmes sont représentées en vert clair.....	196
Figure 162 : Flux moyens annuels des radionucléides émetteurs α au niveau de la Darse des Docks durant 4 périodes (1960-1964, 1965-1975, 1980-1990, 1995-2002), exprimés en $\text{MBq}\cdot\text{an}^{-1}$. Le ^{238}Pu prend en compte la décroissance depuis le dépôt des sédiments. La valeur du flux moyen est représentée en marron, les valeurs extrêmes sont représentées en orange.....	196
Figure 163 : Séries temporelles des teneurs en éléments majeurs recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al, pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron).....	203
Figure 164 : Séries temporelles des teneurs en éléments-traces concernés par les rejets de phosphogypses dans la région rouennaise. Sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron). Les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.....	205
Figure 165 : Séries temporelles des teneurs des éléments-traces présentant des teneurs non enrichies ou peu enrichies par rapport aux shales. Sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron). Les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.....	206
Figure 166 : Séries temporelles des teneurs des éléments-traces présentant des teneurs en décroissance constante pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron). Les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al. .	207
Figure 167 : Séries temporelles de l'activité du ^{137}Cs pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron) ; les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al ; le ^{137}Cs a été corrigé de la décroissance depuis le dépôt.	208
Figure 168 : Séries temporelles de l'activité de 3 radionucléides naturels ^{232}Th , ^{235}U et ^{226}Ra sur les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron) ; les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al.....	209
Figure 169 : Séries temporelles de l'activité de 3 radionucléides artificiels émetteurs α , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{238}Pu et ^{241}Am pour les sites de Bouafles (vert) et de la Darse des Docks (marron) ; le $^{239,240}\text{Pu}$ est représenté à deux échelles différentes ; les données sont recalculées pour une teneur de 3,8 % d'Al ; le ^{238}Pu a été corrigé de la décroissance depuis le dépôt.....	210
Figure 170 : Evolution de la dose totale de phosphate apportée sur blé tendre entre 1994 et 2001 sur le bassin de la Seine (Schott et al., 2009).....	211
Figure 171 : Historique de l'activité de l'usine Grande Paroisse (Dillies, 2010).....	216
Figure 172 : Historique de l'activité de l'usine Potasse et Engrais Chimiques (Dillies, 2010).....	217
Figure 173. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés directement dans l'estuaire de la Seine (la surverse n'est pas représentée sur ce graphique) (Dillies, 2010).....	218
Figure 174. Evolution annuelle des tonnages de phosphogypses rejetés en baie de la Seine (Dillies, 2010).....	218
Figure 175 : Origine des éléments-traces mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 1965.....	220
Figure 176 : Origine des éléments-traces mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 1974.....	220
Figure 177 : Origine des éléments-traces mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 2000.....	221
Figure 178 : Origine de radionucléides mesurés dans les sédiments de la Darse des Docks en 1965, 1974 et 2000.....	222

Figure 179. Rejets de phosphogypses dans l'estuaire fluvial de la Seine (rejets directs + estimation de la surverse) et teneurs normalisées à l'Al du P dans les sédiments de la Darse des Docks.....	224
Figure 180 : Série temporelle de l'Y en mg.kg ⁻¹ ; (1) Concentrations mesurées dans les sédiments de la Darse des Docks (2) Concentrations calculées à partir de l'historique des rejets de phosphogypses pour un temps de résidence nul des sédiments dans l'estuaire fluvial (3) Concentrations calculées à partir de l'historique des rejets de phosphogypses pour un temps de résidence T des sédiments dans l'estuaire fluvial.....	226
Figure 181 : Rapport d'activité ^{239,240} Pu/ ²⁴¹ Am dans les carottes prélevées dans la rade de Cherbourg (violet), sur la Vasière Nord (bleu), et dans la Darse des Docks (marron).....	232
Figure 182 : Activités en ^{239,240} Pu et ²⁴¹ Am dans les carottes prélevées dans la rade de Cherbourg (violet), sur la Vasière Nord (bleu), et dans la Darse des Docks (marron) ; exprimées en mBq.kg ⁻¹	233
Figure 183 : Modèle de mélange construit à partir du rapport d'activité ^{239,240} Pu/ ²⁴¹ Am pour la quantification de la proportion de sédiments marqués par des radionucléides issus du bassin versant ; le rapport d'activité ^{239,240} Pu/ ²⁴¹ Am de la rade de Cherbourg est porté sur l'axe à 0 %, celui de la Darse des Docks est porté sur l'axe à 100 % ; exemple de l'année 1995. Le graphique de droite est un zoom de la partie 90-100 % de l'axe des abscisses du graphique de gauche.....	234
Figure 184 : Modifications de l'onde de marée dans les zones côtières (D'après Salomon and Allen, 1983 ; in Guézennec, 1999).....	235
Figure 185 : Evolution schématique des principaux paramètres physiques dans les estuaires macrotidaux de la Baie de Seine. Conditions de vives-eaux et d'étéage (F : flot ; J : Jusant) (Avoine et al., 1986).....	235
Figure 186 : Evolution de la hauteur d'eau dans l'estuaire de la Seine durant un cycle semi-diurne de marée (Brenon and Le Hir, 1999).....	236
Figure 187 : Sources et trajets schématiques des radionucléides apportés à l'estuaire de la Seine.....	238
Figure 188 : Rapport d'activités ^{239,240} Pu/ ²⁴¹ Am sur les 3 sites d'étude en fonction du temps.....	239
Figure 189 : Modèle de mélange effectué à partir du rapport d'activités ^{239,240} Pu/ ²⁴¹ Am pour la quantification de la proportion de sédiments marqués par des radionucléides issus du bassin versant ; le rapport ^{239,240} Pu/ ²⁴¹ Am de la Vasière Nord est porté sur l'axe à 0 %, celui de Bouafles est porté sur l'axe à 100 %, les valeurs sont extrapolées entre ces deux points. Exemple de l'année 1995. Le graphique de droite représente un zoom de la partie 90-100 % de l'axe des abscisses du graphique de gauche.....	240
Figure 190 : Variation de l'intensité du pompage tidal en fonction du temps dans l'estuaire fluvial de la Seine.....	241
Figure 191 : Comparaison entre le pourcentage de radionucléides en provenance de l'aval (en noir) et la quantité estimée de sédiments en provenance de l'aval (en rose).....	242
Figure 192 : Evolution des populations granulométriques au cours d'un cycle de marée ; type A : sablons, type B : silts grossiers, type C : silts fins et argiles (Lafite et al., 1998).....	243
Figure 193 : Nombre de jours par an où le débit de la Seine >200, >300, >500 m ³ .s ⁻¹ . Comparaison à l'intensité du pompage tidal.....	243
Figure 194 : Moyenne sur les 10 dernières années, du nombre de jours par an où le débit de la Seine >200, >300, >500 m ³ .s ⁻¹ et comparaison à l'intensité du pompage tidal.....	244
Figure 195 : Influence du débit au cours des 10 dernières années : Indice du nombre de jours par an où le débit de la Seine >200, >300, >500 m ³ .s ⁻¹ ; un coefficient permet d'attribuer 4 fois plus d'importance à l'année en cours. Comparaison à l'intensité du pompage tidal.....	244

Figure 196 : Moyenne sur les 10 dernières années du nombre de jours par an où, pour un débit inférieur à 300 m ³ .s ⁻¹ , le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; comparaison à l'intensité du pompage tidal.....	245
Figure 197 : Moyenne sur les 10 dernières années du nombre de jours par an où, pour un débit inférieur à 200 m ³ .s ⁻¹ , le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; comparaison à l'intensité du pompage tidal.....	246
Figure 198 : Influence des coefficients de marée relevés pour un débit inférieur à 200 m ³ .s ⁻¹ sur les 10 dernières années. Indice du nombre de jours par an où le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; un coefficient permet d'attribuer 3,5 fois plus d'importance à l'année en cours.	247
Figure 199 : Influence des coefficients de marée relevés pour un débit inférieur à 200 m ³ .s ⁻¹ sur les 10 dernières années. Indice du nombre de jours par an où le coefficient de marée est supérieur à 70, 80 ou 90 ; un coefficient permet d'attribuer 7,5 fois plus d'importance à l'année en cours.	247
Figure 200 : Densité de flux de ¹³⁷ Cs de dépôt sec, humide et total au cours du temps ; ces flux ont été calculés à partir de prélèvements effectués à Orsay, d'une vitesse moyenne de dépôt (1,5.10 ⁻³ m.s ⁻¹) et d'un historique des précipitations à Paris.	255
Figure 201 : Activités particulières en ¹³⁷ Cs mesurées et ajustées à Bouafles (1960-1981) pour différentes options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques de lessivage notées f ₀ , f ₀ +f ₁ et f ₀ +f ₁ +f ₂).	258
Figure 202 : Activités particulières en ¹³⁷ Cs mesurées et ajustées à la Darse des Docks (1967-2008) pour différentes options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques de lessivage notées f ₀ , f ₀ +f ₁ et f ₀ +f ₁ +f ₂).	260
Figure 203 : Flux total de ¹³⁷ Cs déposé sur le bassin versant de la Seine entre 1985 et 1988 avec pour la même époque une possibilité de découpage lors de l'échantillonnage de la carotte de la Darse des Docks.	260
Figure 204 : Activités en ¹³⁷ Cs particulaire prédites à la Darse des Docks (1967-2008) avec la fonction de transfert à deux cinétiques (f ₀ +f ₁) ajustée sur Bouafles (1960-1981) comparées aux activités mesurées dans les sédiments carottés de la Darse des Docks.	262
Figure 205 : Activités en ¹³⁷ Cs particulaire prédites à Bouafles (1960-1981) avec la fonction de transfert à deux cinétiques (f ₀ +f ₁) ajustée sur la Darse des Docks (1967-2008) comparées aux activités mesurées dans les sédiments carottés de Bouafles.	262
Figure 206 : Portion de l'image SCOPIX® correspondant à la période 1963-1960, avec le marquage des incurvations du litage dues au carottage. L'échantillonnage de cette carotte s'est effectué par des prélèvements de tranches de sédiments d'1 cm d'épaisseur.....	264

Liste des tableaux

Tableau 1 : Teneurs en éléments stables des différentes références mentionnées dans le texte.....	35
Tableau 2: Données bathymétriques relevées sur les cartes au point de carottage, et taux de sédimentation associés.	65
Tableau 3 : Repères chronologiques connus sur le profil reconstitué de la Darse des Docks.....	66
Tableau 4 : Datation de la partie inférieure du profil en comparaison avec les données de Pu obtenues sur la carotte prélevée à Bouafles (n.d. = non détecté ; 0,5 <L.D. ^{238}Pu <33 mBq.kg ⁻¹ ; 0,9 <L.D. $^{239,240}\text{Pu}$ <240 mBq.kg ⁻¹).	68
Tableau 5 : Repères chronologiques obtenus sur la carotte BOUA-01-2010	105
Tableau 6: Profondeurs corrigées des repères chronologiques (corrections faites pour s'affranchir du tassement dû au carottage).....	109
Tableau 7: Longueur de carotte pour chaque jour de crue à chaque période.....	112
Tableau 8 : Datation de chaque tranche d'échantillon entre 0 et 86,5cm de profondeur	113
Tableau 9 : Datation de chaque échantillon entre 86,5 et 133,5cm de profondeur	114
Tableau 10 : Données existantes sur les MES prélevées sur les 3 sites au cours des quatre dernières décennies.....	168
Tableau 11 : Flux de Cd dans l'estuaire de la Seine au cours de la période 1974-1987 ; flux transitant dans la Seine en T.an ⁻¹ (colonnes 2 et 3) ; différentiels des flux de Cd entre la Seine fluviale et l'estuaire fluvial ; flux intra-estuariens en kg (colonne 4) ; quantités de Cd rejetées par les phosphogypses en kg (colonne 5).	187
Tableau 12 : Comparaison entre l'activité en ^{137}Cs entrant sur le bassin versant et celle sortant (flux de la Seine).....	192
Tableau 13 : Paramètres de lessivage ajustés sur le site de Bouafles (1960-1981) : fractions entraînaibles (f_i , s.d.) et cinétiques (λ_i , an ⁻¹) pour les 3 options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques notées f_1 , f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$).....	258
Tableau 14 : Paramètres de lessivage ajustés sur le site de la Darse des Docks (1967-2008) : fractions entraînaibles (f_i , s.d.) et cinétiques (λ_i , an ⁻¹) pour les 3 options de modélisation (1, 2 ou 3 cinétiques notées f_1 , f_0+f_1 et $f_0+f_1+f_2$).....	259
Tableau 15 : Récapitulatif des principaux résultats obtenus sur chaque site de carottage	274

Annexes

Annexe A : Document historique relatif à la Darse des Docks



Darse des Docks

Historique

- 1929-30 : création de la darse avec 4 docks flottants (cote de souille a priori à - 6.50 mCMH)
- 1958 : allongement de la souille du Dock 4
- Fin 1967 : Fin de l'exploitation du Dock 3
- 1975 : Installation de l'entreprise LOZAI (réparation navale pour des navires plus modestes)
- Fin 1975 : Fin de l'exploitation du Dock 4
- Début 1988 : Déplacement du Dock 1 à St Gervais
- Début 1989 : Déplacement et échouage du Dock 2 sur la cale des Chantiers de Normandie pour ferrailage

Dragage

- La darse des docks a toujours été faiblement entretenue
- Puis l'entretien s'est fait a minima sur les souilles et accès aux Docks en service
- Le tableau ci joint retrace les différents dragages retrouvés dans les archives du PAR
- Depuis la fin d'exploitation des docks en 1988, on ne retrouve pas dans les archives du PAR trace de dragage effectué.

*Tableaux récapitulatifs des dragages effectués dans la Darse des Docks
entre 1949 et 1985*

Date	Souille 1	Souille 2	Souille 3	Souille 4	Darse et Accès
1949	X	X	X	X	?
1953 Juin/Juillet	X	X	X		
1955 Sept/Oct					X
1957 Mai/Juillet					X
1958 Juillet				(b)	X
1961 Sept/Oct					X
1962 Janvier					X
1965 Mai					X
1966 Mars	X				X
1967 Janvier			(a)	X	X
1968 Septembre		X			X
1973 Septembre					X
1977 Sept/Oct				(c)	X (1)
1979 Février/Mai					X (1)
1979 Sept/Oct	X				
1979 Oct/Nov		X			

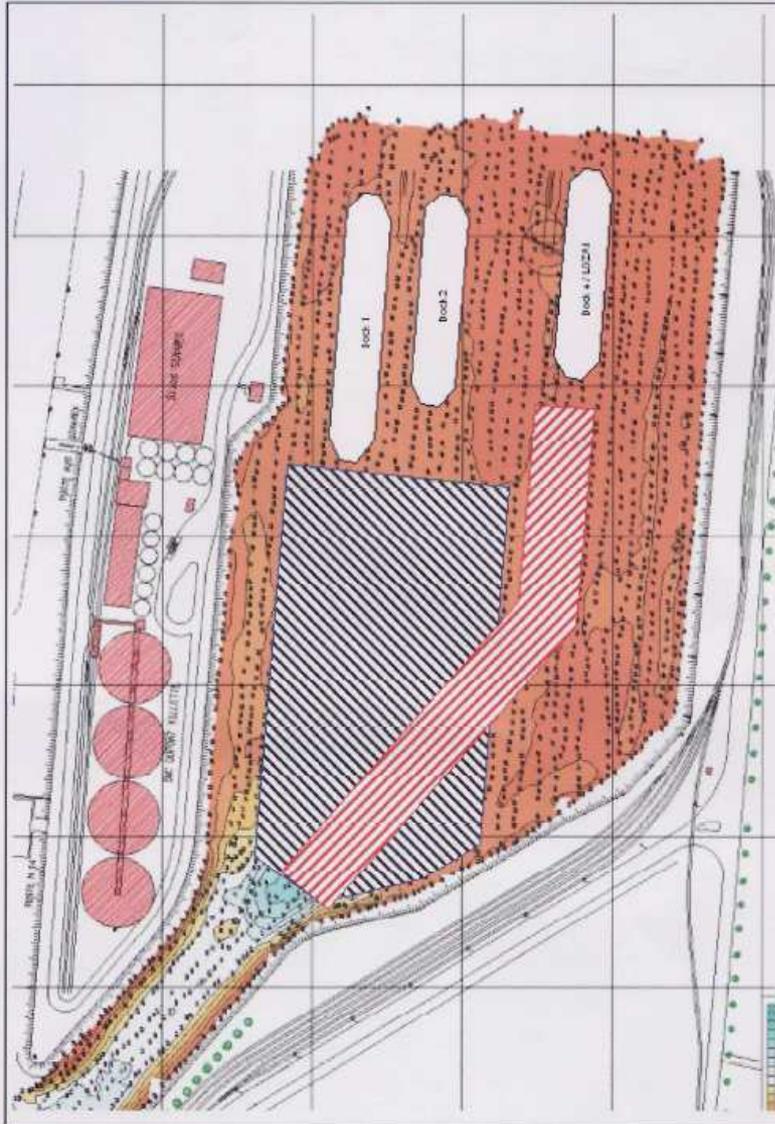
(a) Depuis fin 1967, le dock 3 n'est plus exploité

(b) Les dragages d'allongement de la souille du dock 4 ne sont pas pris en compte (1958 : 19 800 m³)

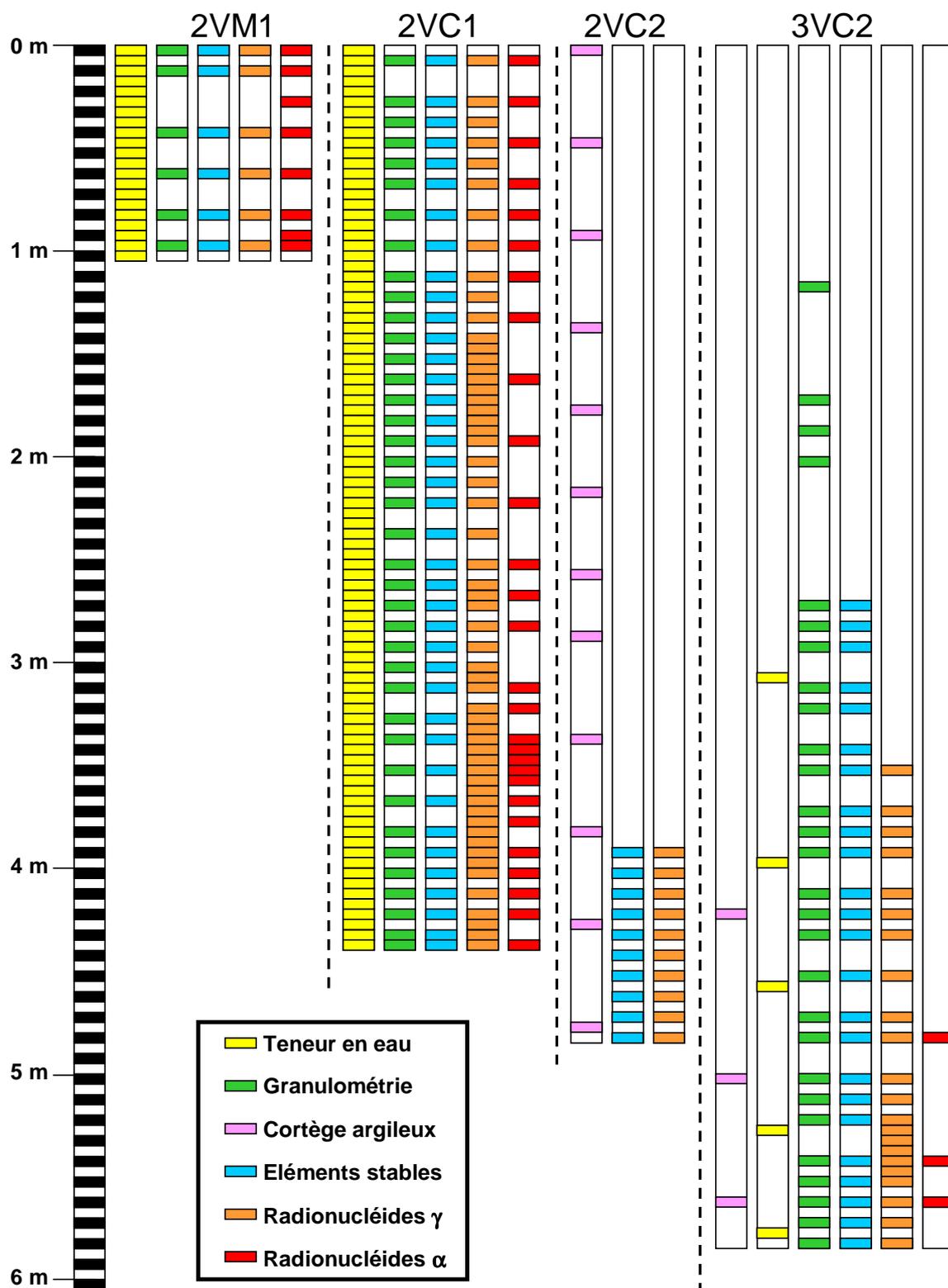
(c) Depuis fin 1975, le dock 4 n'est plus exploité

(1) Seul le dragage de la partie de la darse située face aux docks 1 et 2 est réalisé

Schéma de principe des dragages des accès aux diverses souilles



Annexe B : Bilan des analyses effectuées sur les différentes carottes de la Darse des Docks



Annexe C : Protocoles des analyses sédimentaires

Afin d'obtenir des informations sur la dynamique sédimentaire du site, des analyses sédimentaires sont effectuées sur les échantillons des carottes.

1. Teneur en eau

Les échantillons préalablement homogénéisés ont été pesés puis séchés à 60°C pendant 96 heures. A la sortie de l'étuve, les échantillons à masse constante (secs) ont été de nouveaux pesés et leur teneur en eau a été déterminée par calcul.

2. Calcimétrie

La teneur en carbonate de calcium a été mesurée par la méthode du Calcimètre de Bernard. L'échantillon est attaqué par de l'acide chlorhydrique, le CO₂ dégagé est conduit dans un tube manométrique rempli d'eau sursaturée en NaCl. Le volume de CO₂ est déterminé par simple lecture sur le tube (Dubrulle-Brunaud, 2007). Le pourcentage de CaCO₃ est ensuite corrigé par la formule suivante :

$$CaCO_3(\%) = (V_2 - V_1) \times \frac{K}{P}$$

V₁ = Volume de départ ;

V₂ = Volume après la réaction ;

P = Masse de sédiment ;

K = Coefficient fonction de la température et de la pression atmosphérique

3. Granulométrie

3.1. Principe de la mesure

La granulométrie est l'étude de la répartition des éléments d'une roche et d'un sédiment selon leurs taille. Suite à la mesure, les grains constituant la matière sont classés en différentes classes définies par un diamètre minimal et un diamètre maximal.

Différentes techniques de mesures pour la granulométrie sont possibles. Au laboratoire M2C, on utilise un granulomètre laser de type Coulter LS 230. Cette technique d'analyse permet de mesurer la taille des particules entre 0.04 et 2000 µm. La méthode consiste à déterminer la répartition granulométrique par la technique de diffraction d'un faisceau laser après mise en suspension de l'échantillon dans un dispersant. La distribution granulométrique est déduite de l'interaction entre l'ensemble de particules et le rayonnement incident.

- Le classement ou le tri (S_o) indique la dispersion des tailles par rapport à la moyenne de l'échantillon. Il est calculé par la formule de Folk et Ward :

$$S_o = \frac{Q_{84} - Q_{16}}{4} + \frac{Q_{95} - Q_5}{6,6}$$

$0 < S_o < 0,35$: très bien classé

$0,35 < S_o < 0,50$: bien classé

$0,50 < S_o < 0,71$: assez bien classé

$0,71 < S_o < 1,00$: moyennement classé

$1,00 < S_o < 2,00$: médiocrement classé

$2,00 < S_o < 4,00$: très mal classé

- L'asymétrie (S_k) indique la prépondérance, ou non, de particules fines ou grossières par rapport à la moyenne de l'échantillon. Elle est calculée par la formule de Folk et Ward :

$$S_k = \frac{Q_{16} + Q_{84} - 2Q_{50}}{2(Q_{84} - Q_{16})} + \frac{Q_5 + Q_{95} - 2Q_{50}}{2(Q_{95} - Q_5)}$$

$1,0 > S_k > 0,3$: forte asymétrie vers les petites tailles

$0,3 > S_k > 0,1$: asymétrie vers les petites tailles

$0,1 > S_k > -0,1$: symétrie granulométrique de l'échantillon

$-0,1 > S_k > -0,3$: asymétrie vers les grandes tailles

$-0,3 > S_k > -1,0$: forte asymétrie vers les grandes tailles

4. Identification et quantification des cortèges argileux

Pour cette analyse, il est nécessaire de préparer des lames minces orientées. Pour cela, l'échantillon subit des traitements visant à éliminer la matière organique, la calcite, et à séparer les fractions fines et grossières. Une fois la fraction fine récupérée, elle est étalée en une mince couche sur une lame de verre qui va ensuite sécher à l'air ambiant, puis être analysée par diffractométrie RX (Diffractomètre de marque Philips modèle PW 3040/00 X'Pert MPD/MRD). Les composants argileux sont caractérisés par la diffraction de leurs plans réticulaires par un faisceau de rayons X (loi de Bragg). La lame subit trois passages dans le diffractomètre : un premier après simple séchage (traitement naturel), un second après traitement aux vapeurs d'éthylène glycol, un dernier après traitement par chauffage à 540°C. Trois diffractogrammes sont obtenus et leur confrontation permet l'identification des minéraux argileux. Leur quantification est établie en mesurant les aires des pics du diffractogramme "éthylène glycol" (Dubrulle-Brunaud, 2007).

Annexe D : Protocole d'analyse des concentrations des éléments stables

Les analyses des éléments stables sur les échantillons de sédiments des différentes carottes prélevées ont toutes été effectuées au Service d'Analyse des Roches et des Minéraux (SARM) du Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques (CRPG) à Nancy (Tableau en fin d'annexe).

1. Conditionnement des échantillons

Les échantillons ont été séchés à l'étuve à 30°C. Chaque échantillon a ensuite été broyé soit à l'aide d'un mortier et d'un pilon, soit dans un broyeur à billes. Environ 3 grammes de chaque échantillon ont été prélevés et placés dans des piluliers en plastiques. Ils ont ensuite été envoyés au Service d'Analyses des Roches et des Minéraux (SARM) du Centre de Recherches Pétrographiques et géochimiques de Nancy (Laboratoire CNRS) pour analyses.

2. Analyses des éléments majeurs et mineurs

L'analyse des éléments majeurs est effectuée par un Spectromètre d'Emission Optique Couplé à Plasma Inductif (ICP-OES).

La spectrométrie d'émission optique : les électrons des atomes excités (ionisés), lorsqu'ils retournent à l'état fondamental, émettent un photon dont l'énergie est caractéristique de l'élément. Dans le cas de l'ICP-OES, l'échantillon subit une nébulisation puis une ionisation dans un plasma d'argon (6000-8000°C). Les atomes de l'échantillon sont alors excités à un niveau énergétique supérieur. Le retour à l'état stable est accompagné de l'émission d'une série d'ondes électromagnétiques dans la gamme du spectre visible/UV caractéristique de chaque élément. Les différentes longueurs d'ondes sont séparées par un spectromètre. L'intensité de la radiation est proportionnelle à la concentration de l'élément, elle est comparée à celle émise par le même élément contenu dans un échantillon de concentration connue, analysé dans les mêmes conditions.

3. Analyses des éléments traces

L'analyse des éléments traces est effectuée par Spectrométrie de Masse à Plasma à Couplage Inductif (ICP-MS, Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry).

La spectrométrie de masse est une technique physique d'analyse permettant de détecter et d'identifier des molécules d'intérêt par mesure de leur masse, et de caractériser leur structure

chimique. Son principe réside dans la séparation en phase gazeuse de molécules chargées (ions) en fonction de leur rapport masse/charge (m/z).

4. Autres analyses : Li et Ag

Pour analyser le lithium, le sédiment subit une attaque acide. L'analyse s'effectue ensuite par Spectrométrie d'Absorption Atomique (AAS). L'argent a été analysé par spectrométrie d'absorption atomique flamme ou four.

La spectrométrie d'absorption atomique est basée sur l'absorption de radiations électromagnétiques par un atome non-excité (neutre) dans la flamme. La lampe émet la lumière à une longueur d'onde spécifique au lithium. Les atomes de lithium sont amenés, grâce à la flamme, à leur état fondamental. Dans cet état, ils absorbent l'énergie électromagnétique de la lampe. Les radiations électromagnétiques qui ne sont pas absorbées, atteignent le monochromateur puis le détecteur. Le détecteur observe alors une diminution de l'intensité de la lumière du faisceau de la lampe. Cette diminution est proportionnelle à la concentration en lithium.

Limites de détermination* et incertitudes**

(Janvier 2009)

Dosage des éléments traces

	>50 ppm	>10 ppm	>1 ppm	>0,1 ppm	>0,01 ppm	* Limites déterm. ppm		>50 ppm	>10 ppm	>1 ppm	>0,1 ppm	>0,01 ppm	* Limites déterm. ppm
As	<5%	<10%	**			1,50	Mo		<5%	<10%	**		0,35
Ba	<5%	<10%	**			2,00	Nb			<5%	<15%	**	0,06
Be	<5%	<10%	**			1,50	Nd			<5%	<10%	**	0,05
Bi			<5%	**		0,10	Ni	<5%	**				5,00
Cd		<5%	<15%	**		0,15	Pb		<5%	**			1,00
Ce		<5%	<10%	**		0,15	Pr			<5%	<15%	**	0,015
Co	<5%	<10%	<15%	**		0,60	Rb	<5%	<10%	<15%	**		0,40
Cr	<5%	<10%	**			7,00	Sb		<5%	<10%	**		0,20
Cs	<5%		<10%	**		0,25	Sm			<5%	<10%	**	0,01
Cu	<5%	<10%	**			6,00	Sn		<5%	<10%	**		0,50
Dy			<5%	<10%	<15%	0,007	Sr	<5%	<15%	**			1,70
Er			<5%	<10%	**	0,003	Ta		<5%		<10%	**	0,01
Eu				<5%	<10%	0,004	Tb				<5%	10%	0,005
Ga		<5%	<8%	**		0,30	Th		<5%	<10%	<15%	**	0,018
Gd				<5%	<10%	0,03	Tm			<5%	<10%	**	0,005
Ge			<5%	**		0,10	U				<8%	**	0,04
Hf		<5%	<10%	<15%	**	0,025	V	<5%	<10%	**			0,80
Ho			<5%	<15%	**	0,002	W	<5%	<10%	<15%	**		0,30
In			<5%	**		0,15	Y		<5%	**			0,90
La				<5%	**	0,10	Yb			<5%	<10%	**	0,003
Lu				<5%	<10%	0,002	Zn	<8%	**				11,00
							Zr	<8%	<15%	**			1,00

Dosage des éléments majeurs

Oxydes %	>10%	>5%	>1%	>0,5%	>0,1%	>0,05%	>0,01%	>0,005%	* Limites déterm. %
SiO ₂	<1%			<10%	**				0,15
Al ₂ O ₃	<1%			<10%		**			0,05
Fe ₂ O ₃			<2%		<5%	<15%	**		0,02
MnO			<1%		<5%		<10%	**	0,001
MgO		<2%	<5%			<10%	**		0,01
CaO		<2%		<5%	<10%	**			0,02
Na ₂ O		<2%			<15%	**			0,05
K ₂ O		<2%		<5%	<15%	**			0,05
TiO ₂				<5%		<10%		**	0,002
P ₂ O ₅			<5%		<10%	**			0,03

* La limite de détermination est calculée comme étant 6 fois l'écart type relatif sur 100 mesures de blancs de préparation.

** L'incertitude sur la mesure est calculée pour 200 mg d'échantillon préparé. Elle devient importante (>25 %) sur une plage de concentration située entre la limite de détermination et la plus faible concentration pour laquelle un pourcentage d'erreur est indiqué.

Pour certains éléments traces, cette incertitude peut être réduite de façon significative à l'aide d'une chromatographie liquide avant passage à l'ICP-MS. Ces analyses particulières doivent faire l'objet d'une entente préalable avec le Service d'Analyse.

Calculs effectués pour 5 matériaux géochimiques de référence en analyse de routine sur une période de 12 mois (n = 300 par matériau).

SARM

CRPG-CNRS : 15 rue Notre Dame des Pauvres, BP20, 54501 Vandoeuvre-lès-Nancy, France

Tél : 33 (0)3 83 59 42 41 : Fax : 33 (0)3 83 51 17 98

Annexe E : Origine des radionucléides

Les radionucléides peuvent avoir une origine naturelle ou artificielle. Parmi les radionucléides naturels, on distingue les radionucléides primitifs, des cosmonucléides. Les radionucléides artificiels ont également des origines diverses.

1. Les radionucléides d'origine naturelle

1.1. Les radionucléides primitifs (ou telluriques)

Les radionucléides primitifs sont issus de la descendance de trois noyaux lourds à très longue vie : l'uranium 235 ($T_{1/2} = 7.10^8$ années) ; l'uranium 238 ($T_{1/2} = 4.47.10^9$ années) ; le thorium 232 ($T_{1/2} = 1,4.10^{10}$ années). Ces 3 radionucléides sont le premier maillon d'une série de décroissances, formant ainsi 3 familles, respectivement : famille $4N+3$, famille $4N+2$ et famille $4N$. Parmi ces désintégrations, certaines sont émetteurs gamma donc mesurables par un détecteur GeHP. De nombreux radionucléides primitifs à très longue période n'appartiennent pas à l'une de ces 3 familles, le plus connu est le ^{40}K .

Analyses effectuées au LRC par spectrométrie gamma dans le cadre de cette étude :

- Famille $4N$: ^{228}Ac , ^{212}Pb , ^{212}Bi , ^{208}Tl
- Famille $4N+3$: ^{235}U , ^{227}Th , ^{234}Th
- Famille $4N+2$: ^{234}Pa , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{210}Pb
- Autres : ^{40}K

1.2. Les cosmonucléides

Les cosmonucléides sont formés par l'impact de particules de haute énergie provenant de la galaxie ou du Soleil sur les constituants de l'atmosphère. Parmi eux, on trouve le tritium (^3H), le béryllium 7 (^7Be) ou encore le carbone 14 (^{14}C).

2. Les radionucléides d'origine artificielle

Les radionucléides artificiels ont différents origines :

- les rejets réglementés des installations nucléaires ;
- les rejets réglementés liés aux activités de médecines nucléaires ;
- les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires, pratiqués entre 1945 et 1980 par l'ex-URSS, les Etats-Unis, le Royaume-Uni, la France et la Chine ;
- les retombées de l'accident de Tchernobyl survenu le 26 avril 1986.

Les radionucléides artificiels les plus fréquemment détectés dans l'environnement en France sont les suivants : ^3H , ^{14}C , ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{131}I , ^{137}Cs , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$.

N.B : On notera que certains radionucléides sont produits à la fois de façon naturelle et de façon artificielle, tels que ^3H et ^{14}C .

Analyses effectuées au LRC par spectrométrie gamma dans le cadre de cette étude :

$^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{241}Am , ^{57}Co , ^{58}Co , ^{60}Co , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{154}Eu , ^{54}Mn , ^{106}Rh , ^{124}Sb , ^{125}Sb

Analyses effectuées au LMRE par spectrométrie alpha dans le cadre de cette étude :

^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{244}Cm

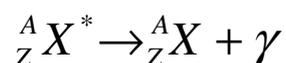
Annexe F : Analyse des radionucléides naturels et artificiels dans les sédiments par spectrométrie gamma

Les mesures des activités des différents radionucléides émetteurs γ des échantillons des différentes carottes ont été réalisées au Laboratoire de Radioécologie de Cherbourg-Octeville (LRC, Laboratoire IRSN). Ces mesures sont effectuées grâce à un détecteur à germanium hyperpur (GeHP), de type N et d'efficacité 39 %. Le logiciel utilisé pour le traitement des données est InterWinner 6.00.2055 (N° de série 2809N-F2ZZ2) chez ORTEC. Les différentes étapes allant du conditionnement de l'échantillon aux traitements des données brutes sont présentées ci-dessous.

1. Le rayonnement gamma

1.1. Production du rayonnement gamma

Les rayons gamma sont produits lorsque le noyau d'un atome passe d'un état excité à un état plus stable en libérant de l'énergie. Les émissions gamma sont généralement instantanées et suivent de très près l'émission de particules alpha ou bêta. L'équation généralisée de la désintégration gamma est la suivante :



Ici X^* représente l'atome excité et X l'atome dans un état plus stable. γ est le photon gamma libéré lors de la désintégration. Les valeurs de Z et A ne changent pas puisque le rayon γ n'a ni charge, ni masse, son émission ne modifie ni le numéro atomique ni le nombre de masse du nucléide. L'énergie libérée par l'atome, et plus précisément par son noyau, est caractéristique du noyau et donc de l'atome émetteur.

1.2. Les différentes interactions du rayonnement gamma avec la matière

Les rayons gamma interagissent avec la matière via deux mécanismes principaux : les effets photoélectriques et la diffusion Compton.

Dans l'effet photoélectrique, un photon gamma interagit avec la matière en transférant l'intégralité de son énergie à un électron d'orbitale qui est alors éjecté de l'atome auquel il était lié. L'énergie cinétique de ce photo-électron est égale à l'énergie du photon gamma moins l'énergie de liaison de l'électron. C'est l'énergie de cette interaction qui permet d'identifier et de quantifier un radionucléide lors d'une mesure par un détecteur GeHP.

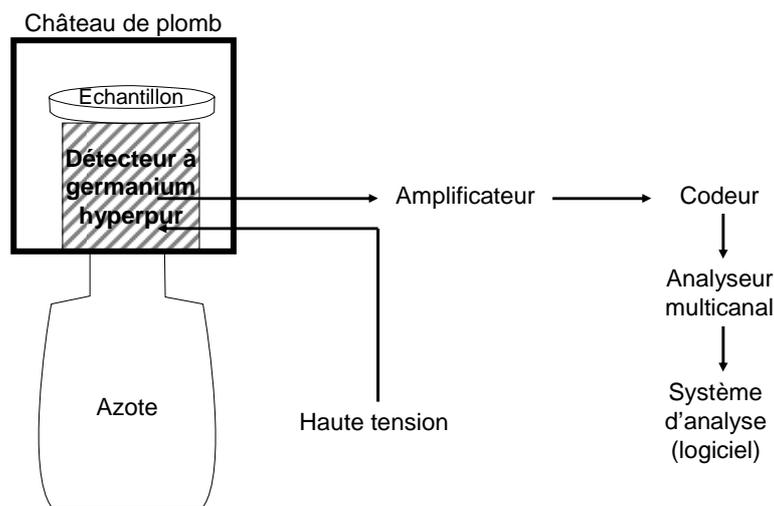
Dans le cas de la diffusion Compton, le photon gamma possède une énergie plus que suffisante pour arracher un électron d'orbitale ; l'énergie restante est réémise sous forme d'un nouveau photon gamma de moindre énergie et dont la direction d'émission est différente de la direction incidente du photon gamma d'origine. L'efficacité de la diffusion Compton diminue quand l'énergie des photons augmente.

2. Conditionnement des échantillons

Suite à l'ouverture des carottes, des échantillons sont prélevés sur celles-ci à pas constant. Ils sont soit séchés à 30°C dans une étuve, soit lyophilisés. Ils sont ensuite broyés finement dans un broyeur à billes ou à la main dans un mortier. Chaque échantillon est conditionné dans des sachets plastique dont une partie est prélevée pour confectionner des géométries de 17 g ou 60 g environ selon les quantités d'échantillons disponibles (les géométries de 60 g sont privilégiées : elles permettent un temps d'analyse plus court pour un résultat plus précis). Ces géométries consistent en des boîtes cylindriques, dans lequel le sédiment est tassé. Une fois le sédiment conditionné dans ces géométries, sa masse précise est relevée et la géométrie est fermée hermétiquement à l'aide d'une bande adhésive. Les échantillons sont enfin répertoriés dans une base de données avant analyse.

3. Spectrométrie gamma avec détecteur GeHP

Un spectromètre gamma permet, d'une part, de mesurer l'énergie des photons gamma émis et, d'autre part, d'en comptabiliser le nombre pendant une certaine durée ; on peut alors identifier les radionucléides présents et déterminer leur activité. La détection des rayonnements gamma est réalisée par un détecteur à germanium hyperpur (GeHP) qui génère une impulsion électronique dont l'intensité est proportionnelle à l'énergie du rayonnement gamma détecté.



Synoptique d'une chaîne de spectrométrie gamma

6. Traitement des données brutes

Une fois le spectre obtenu, différents traitements sont nécessaires pour obtenir une mesure en Bq/kg de sédiment sec à laquelle sera associée une incertitude.

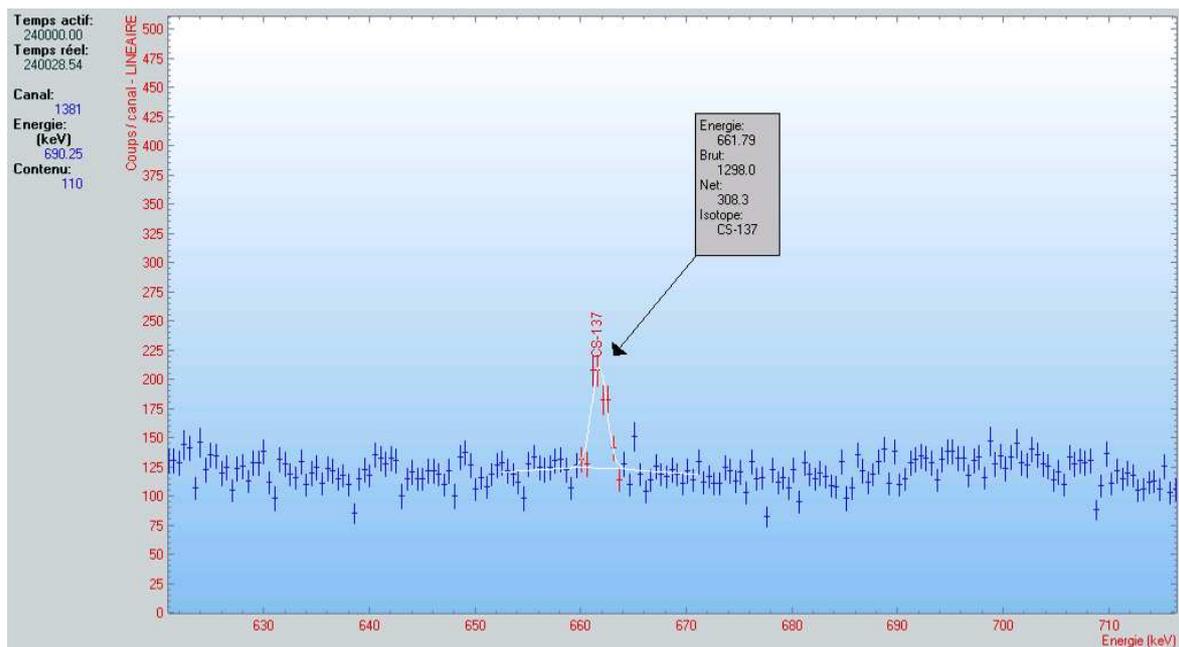
Les paragraphes 6.1 à 6.10 concernent les différentes étapes suivies.

6.1. Identification des radionucléides

Chaque radionucléide présent dans l'échantillon est à l'origine d'un ou plusieurs pics spécifiques présents sur le spectre, ce qui permet de l'identifier.

6.2. Aire du pic

Un des pics spécifiques du radionucléide est sélectionné pour quantifier celui-ci. Le calcul de l'aire du pic permet de quantifier le nombre de photons libérés et enregistrés lors de la mesure. On distingue l'aire brute de l'aire nette, toutes deux calculées par le logiciel. L'aire brute comprend une partie de l'énergie émise par diffusion Compton. L'aire nette comprend uniquement l'énergie émise par effet photoélectrique.



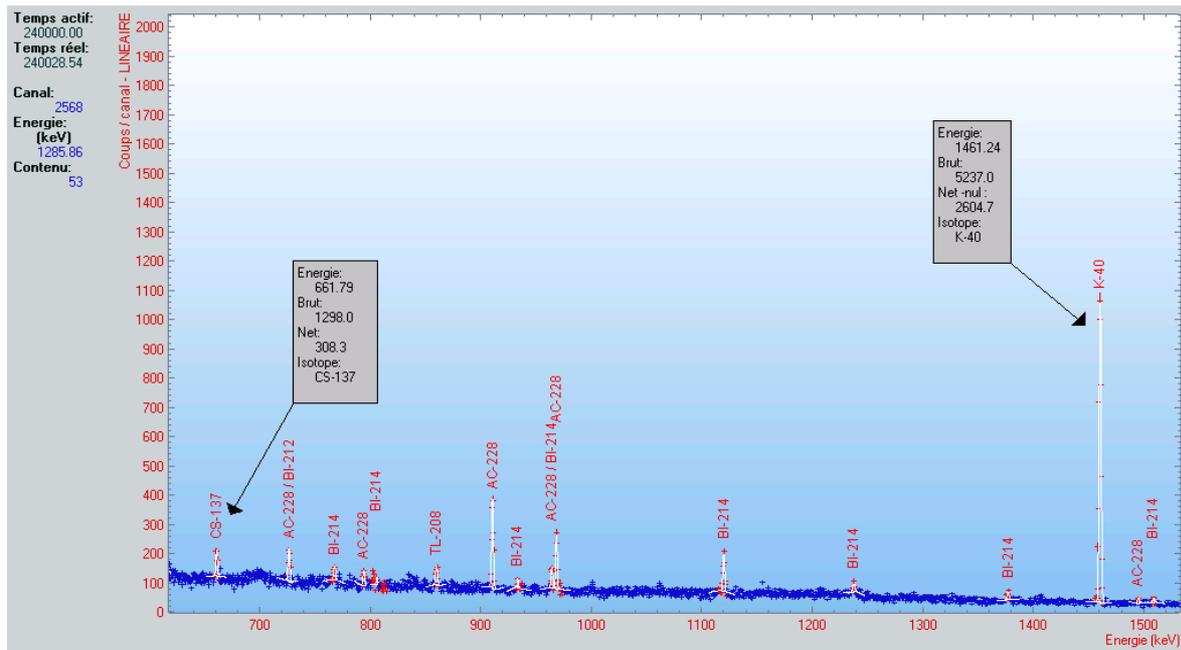
Aires du pic du ^{137}Cs sur un échantillon de la carotte de Bouafles

L'aire nette correspond à la partie délimitée en blanc ;

L'aire brute se poursuit jusqu'à la base du graphique

6.3. Déduction du blanc

De l'aire nette d'un des pics observés pour un échantillon donné, est déduite l'aire nette du pic correspondant mesuré sur le blanc, rapportée au temps de mesure de l'échantillon.



Partie du spectre brute d'un échantillon prélevé sur la carotte de Bouafles

Le ^{137}Cs n'est pas présent dans le blanc, son aire nette reste donc inchangée ; au contraire, le ^{40}K est présent dans le blanc, son aire nette diminue donc fortement.

6.4. Rendement du détecteur

Le détecteur a un rendement variable en fonction de l'énergie fournie par la désintégration des radionucléides mais également fonction de la géométrie utilisée. L'aire du pic est donc corrigée pour en tenir compte.

6.5. Pourcentage d'émission des raies gamma caractéristiques d'un radionucléide

Chaque radionucléide a un pourcentage d'émission spécifique qui rend compte de la proportion d'énergie libérée par effet photoélectrique. Il est donc nécessaire d'effectuer une correction pour ne pas sous-estimer l'énergie réellement libérée.

6.6. Conversion en Becquerel

Le Becquerel correspond à un nombre de désintégrations par seconde : le nombre de photons obtenus est rapporté au temps de mesure.

6.7. Correction de masse

La mesure doit être ramenée à la masse de l'échantillon mesuré pour obtenir une mesure en Bq/kg de sédiment sec.

6.8. Calcul de l'activité

Les étapes des paragraphes 6.4 à 6.7 sont effectuées par le calcul suivant :

$$A = \frac{N}{R \times \mu \times t \times M}$$

A : Activité de l'échantillon

N : Aire du pic

R : Rendement du détecteur pour une géométrie donnée

μ : Rapport d'embranchement ou taux d'émission photonique

t : Temps de mesure

M : Masse

6.9. Activité à la date de prélèvement

Enfin, il faut tenir compte de la décroissance radioactive entre la date de prélèvement de l'échantillon et la date de la mesure. On effectue alors le calcul suivant :

$$A_0 = \frac{A}{e^{-\lambda t}}, \quad \text{avec :} \quad \lambda = \frac{\ln 2}{T}$$

A₀ : Activité de l'échantillon à la date de prélèvement

A : Activité de l'échantillon lors de la mesure

t : Temps écoulé entre le prélèvement et la mesure

λ : Constante radioactive du radionucléide

T : Période radioactive

6.10. Calcul de l'incertitude

Le calcul des incertitudes doit prendre en compte l'incertitude liée à la mesure du blanc et celle liée à la mesure de l'échantillon.

Ces deux incertitudes comprennent les incertitudes liées :

- à l'aire du pic (N)
- au rendement du détecteur pour une géométrie donnée (R)
- au taux d'émission photonique
- au temps de mesure (t)
- à la masse de l'échantillon (M)

L'incertitude est calculée par l'équation suivante sur le blanc et l'échantillon :

$$\frac{\sigma_X}{X} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_R}{R}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_M}{M}\right)^2}$$

σ_X : incertitude sur X

L'incertitude majeure est liée à l'aire du pic. L'incertitude peut être augmentée quand le radionucléide est présent dans le blanc.

Les incertitudes liées d'une part à la mesure du blanc d'autre part à la mesure de l'échantillon sont combinées par le calcul suivant :

$$\sigma_X = \sqrt{\sigma_E^2 + \sigma_B^2}$$

σ_X : incertitude sur le résultat final

σ_E : incertitude sur la mesure de l'échantillon

σ_B : incertitude sur la mesure du blanc

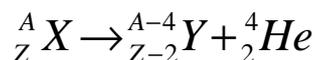
Annexe G : Analyse de radionucléides artificiels dans les sédiments par spectrométrie alpha

Les analyses des radionucléides émetteurs alpha ont été effectuées au Laboratoire de Mesure de la Radioactivité dans l'Environnement (LMRE), laboratoire de l'IRSN situé à Orsay. Ces analyses sont sous accréditation COFRAC (norme ISO 17025).

1. Le rayonnement alpha

1.1. Production du rayonnement alpha

L'émission d'une particule alpha concerne essentiellement les très gros noyaux. La désintégration alpha peut être vue comme une forme de fission nucléaire où le noyau père se scinde en deux noyaux fils dont l'un est un noyau d'hélium (ou particule α). Les "périodes" des désintégrations alpha sont souvent longues.



A : nombre de masse ; Z : numéro atomique

1.2. Interactions du rayonnement alpha avec la matière

La charge électrique des particules α et leur masse sont élevées. En conséquence, les particules α ont une trajectoire presque rectiligne et très courte. Ainsi, on peut considérer que la longueur de leur trajectoire et leur parcours sont identiques. Les particules α sont facilement arrêtées par quelques centimètres d'air ou une feuille de papier.

2. Conditionnement des échantillons

Tout comme pour les analyses des radionucléides émetteurs gamma, les échantillons prélevés sur les carottes sont soit séchés à 30° C dans une étuve, soit lyophilisés, puis finement broyés. Pour les analyses des radionucléides émetteurs alpha, les échantillons ont été conditionnés dans des sacs plastique à raison de 20 g par échantillon. Les échantillons sont ensuite envoyés au LMRE où ils subiront un traitement chimique avant comptage.

3. Traitement chimique des échantillons pour la mesure des isotopes de Pu, Am, Cm par spectrométrie alpha

Pour mesurer Pu, Am et Cm par spectrométrie alpha, il faut réaliser des sources en couche mince (électrodéposition) du fait du faible parcours des radionucléides émetteurs alpha dans la matière. La fabrication de ces sources nécessite un traitement chimique afin d'isoler les actinides des autres éléments et de les séparer les uns des autres pour éviter les interférences spectrales (ex : recouvrement en énergie ^{241}Am et ^{238}Pu à ~ 55 Mev). Les différentes étapes de ce traitement sont brièvement décrites ci-dessous.

3.1. Préparation de l'échantillon

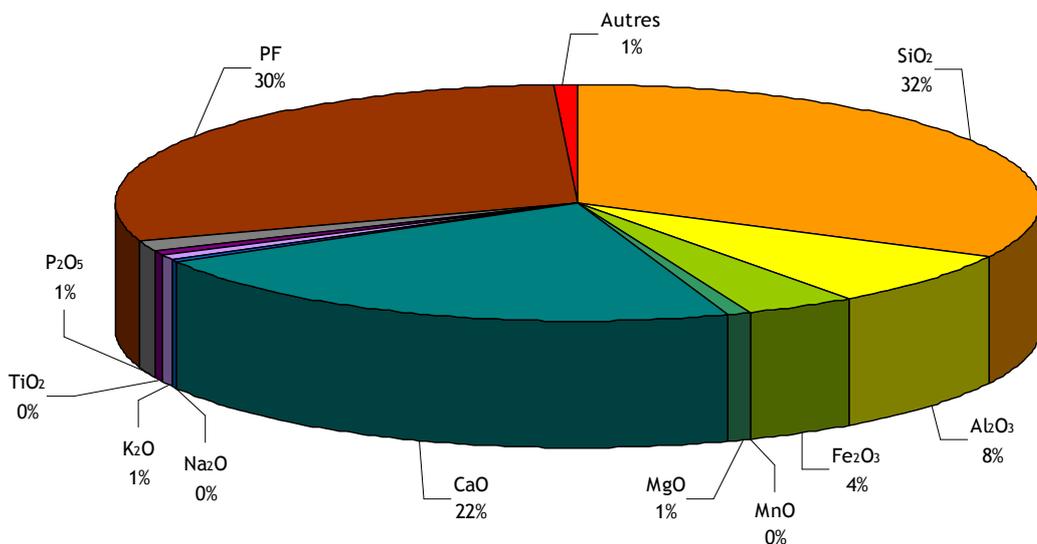
L'échantillon est pesé, mis à l'étude une nuit à 80°C , mis au dessiccateur, puis pesé de nouveau afin de s'assurer qu'il soit bien sec. Il est calciné à 520°C .

3.2. Ajout d'un traceur dans l'échantillon

Deux traceurs contenant ^{242}Pu et ^{243}Am sont ajoutés en quantité connue (Bq) à l'échantillon. Ils permettent de calculer le rendement et servent donc d'étalon pour interprétation du spectre de l'échantillon suite au comptage.

3.3. Mise en solution de l'échantillon

Comme on peut le constater sur la figure ci-dessous, un sédiment comporte une part importante de silice (SiO_2) et d'alumine (Al_2O_3) qu'il faut supprimer pour la mesure.



Composition d'un échantillon (2VC1C-008) de carotte prélevée dans la Darse des Docks
(PF : Perte au Feu)

Le traitement chimique étant réalisé en milieu liquide, il faut mettre en solution les minéraux présents sous forme d'oxydes dans le sédiment. Pour cela, une ou plusieurs attaques à l'acide (acide

nitrique, H₂O, HCl) sont effectuées sur l'échantillon. La silice constituant la majeure partie de la fraction insoluble est éliminée.

3.4. Précipitation de l'oxalate de calcium et de l'hydroxyde ferrique

Des précipitations sélectives et successives permettent d'éliminer la majeure partie des éléments métalliques.

3.5. Séparation Pu/Am : 1^{er} passage sur colonne

Pu et Am sont séparés par passage de l'échantillon sur une colonne ammoniacque Biorad AG1X8. La colonne est conditionnée en milieu acide (HNO₃). L'échantillon, également en milieu HNO₃, effectue un passage sur la colonne ; Pu et du Th (30 %) sont fixés sur la colonne tandis que Am, Fe, Ca, U et une partie du Th ne sont pas fixés et sont donc récupérés en pied de colonne dans un bécher. Le Pu est élué dans un autre bécher par une solution HCl + NH₄I. A la suite de cette étape, la fraction contenant Pu et celle contenant Am sont traités séparément.

3.6. Purification de la fraction Pu : 2nd passage sur colonne

La fraction contenant Pu comporte encore du Th et U qui doivent être éliminés. Cette purification du plutonium se fait sur une colonne AG1X8 qui est conditionnée en milieu acide (HNO₃). Le plutonium est oxydé de nouveau par ajout de HNO₃. Lors du passage de l'échantillon sur la colonne, Pu reste donc fixé alors que U et Th ne le sont pas. Le Pu est ensuite élué. La fraction contenant Pu est mise à sec et est prête pour l'étape d'électrodéposition.

3.7. Séparation AM/Fe, U, Th

La fraction contenant Am est passée sur une colonne double (AG1X8+AG50W) sur laquelle Fe sera retenu par une solution d'HCl. La fraction récupérée contient Am, Ca et d'autres métaux.

3.8. Précipitation à l'hydroxyde d'aluminium

Un hydroxyde d'aluminium est formé par une solution d'Al(NO₃). Le calcium restant en solution est éliminé. Le précipité est repris en milieu HNO₃.

3.9. Séparation Am/ Métaux Cu, Ni

La solution contenant Am est passée sur une colonne TRU conditionnée avec une solution HNO₃. Am est fixé sur la colonne, alors que le Cu, Ni et Al ne le sont pas. La fraction contenant Am est ensuite récupérée par élution.

3.10. Séparation Am/ Terres rares

La solution contenant l'américium passe sur une dernière colonne (AG1X4) pour extraire les terres rares. Après élution de Am, la solution est mise à sec (pas de dépôt visible), l'échantillon purifié

est près pour l'étape d'électrodéposition.

3.11. Electrodéposition

L'électrodéposition est une technique permettant d'obtenir un dépôt par électrolyse. Elle permet le dépôt électrochimique des radionucléides en une couche ultramince sur la coupelle. Des sels sont ajoutés à l'échantillon pour le rendre conducteur. L'échantillon est placé dans un flacon au contact de deux électrodes alimentées par un générateur d'intensité stabilisée : une anode en platine et une cathode en inox polis, distantes de 5 mm. Durant l'électrodéposition, deux réactions ont lieu :

- la réaction principale est la réduction de l'eau : $2H_2O + 2e^- \rightarrow H_2 + OH^-$, cette réaction provoque la formation d'un film basique.
- les actinides ne peuvent être réduits dans l'eau sous forme métallique, ils seront donc oxydés à la cathode selon, pour le cas du plutonium, la réaction suivante : $Pu^{4+} + 4OH^- \rightarrow Pu(OH)_4$: ce dépôt s'effectue au niveau de la cathode matérialisé par un le disque en inox polis.

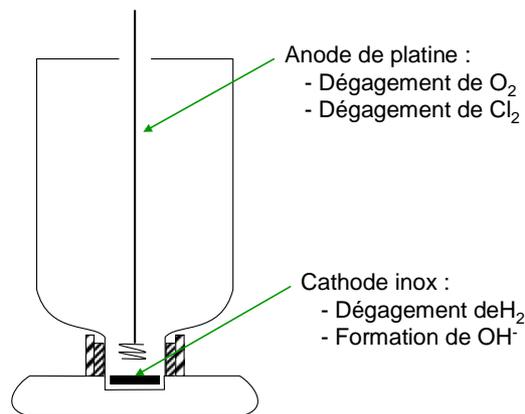


Schéma d'une cellule d'électrodépôt

Le rendement de l'électrodépôt n'est pas de 100 %, il diffère selon les actinides, ce qui confirme l'intérêt d'introduire un traceur en début de manipulation.

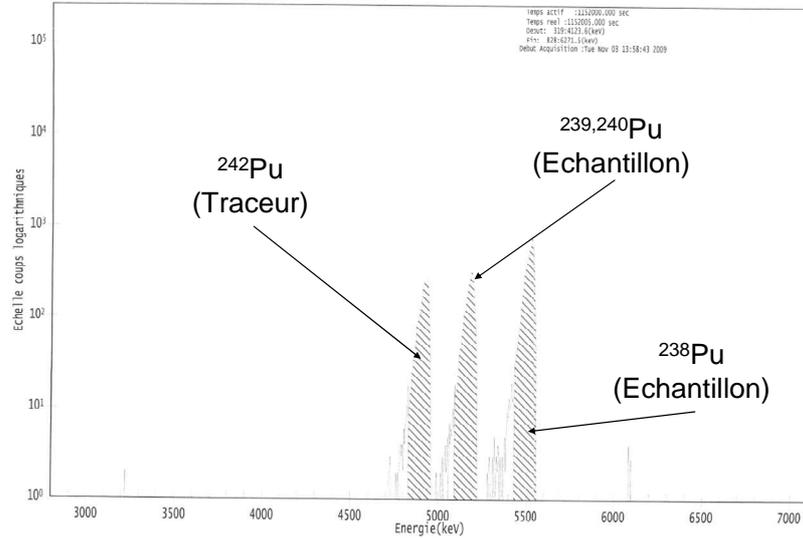
4. Comptage de la source échantillon

4.1. Mesure

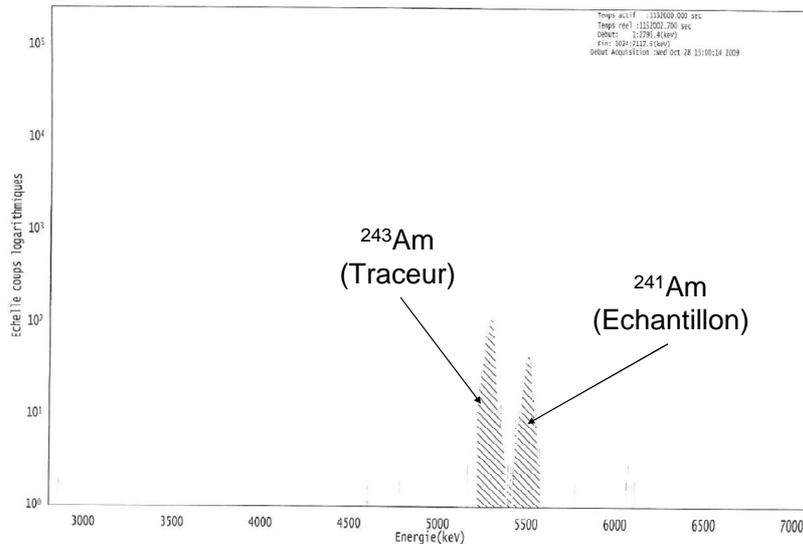
L'activité massique en Pu, Am, Cm (Bq.kg⁻¹) est calculée par comptage de la source échantillon pendant une durée appropriée grâce à un détecteur semi-conducteur. L'échantillon est placé à 1 mm du détecteur. L'efficacité du détecteur est d'environ 35 %. Les résultats sont analysés via le logiciel Canberra Alpha Analyst – Génie 2000.

4.2. Expression des résultats

Pour un échantillon donné, deux électrodépôts sont réalisés : un pour le plutonium et un pour l'américium. Chaque électrodépôt est compté et donne un spectres (Figures ci-dessous). Grâce à la présence de traceurs, les activités ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ et ^{241}Am sont ensuite calculées.



Spectre de détection du plutonium pour l'échantillon 2VC1C-008



Spectre de détection de l'américium pour l'échantillon 2VC1C-008

L'activité d'un échantillon contenant un traceur se calcule avec l'équation suivante :

$$A_{\text{éch}} = \frac{m_{\text{traceur}} \times A_{\text{traceur}} \times \text{Aire}_{\text{éch}}}{m_{\text{éch}} \times \text{Aire}_{\text{traceur}}}$$

$A_{\text{éch}}$ = Activité isotope dans l'échantillon

$m_{\text{éch}}$ = Masse de l'échantillon avant traitement chimique

$\text{Aire}_{\text{éch}}$ = Aire du pic isotope échantillon

$$A_{\text{traceur}} = \text{Activité du traceur}$$

$$m_{\text{traceur}} = \text{Masse de traceur introduit dans l'échantillon}$$

$$A_{\text{traceur}} = \text{Aire du pic du traceur}$$

Le rendement chimique se calcule avec l'équation :

$$Rdt = \frac{A_{\text{traceur}}}{m_{\text{traceur}} \times A_{\text{traceur}} \times tps \times Rdt_{\text{détecteur}}}$$

$$Rdt = \text{Rendement chimique}$$

$$A_{\text{traceur}} = \text{Aire du pic du traceur}$$

$$m_{\text{traceur}} = \text{Masse de traceur introduit dans l'échantillon}$$

$$A_{\text{traceur}} = \text{Activité du traceur}$$

$$tps = \text{Temps de comptage}$$

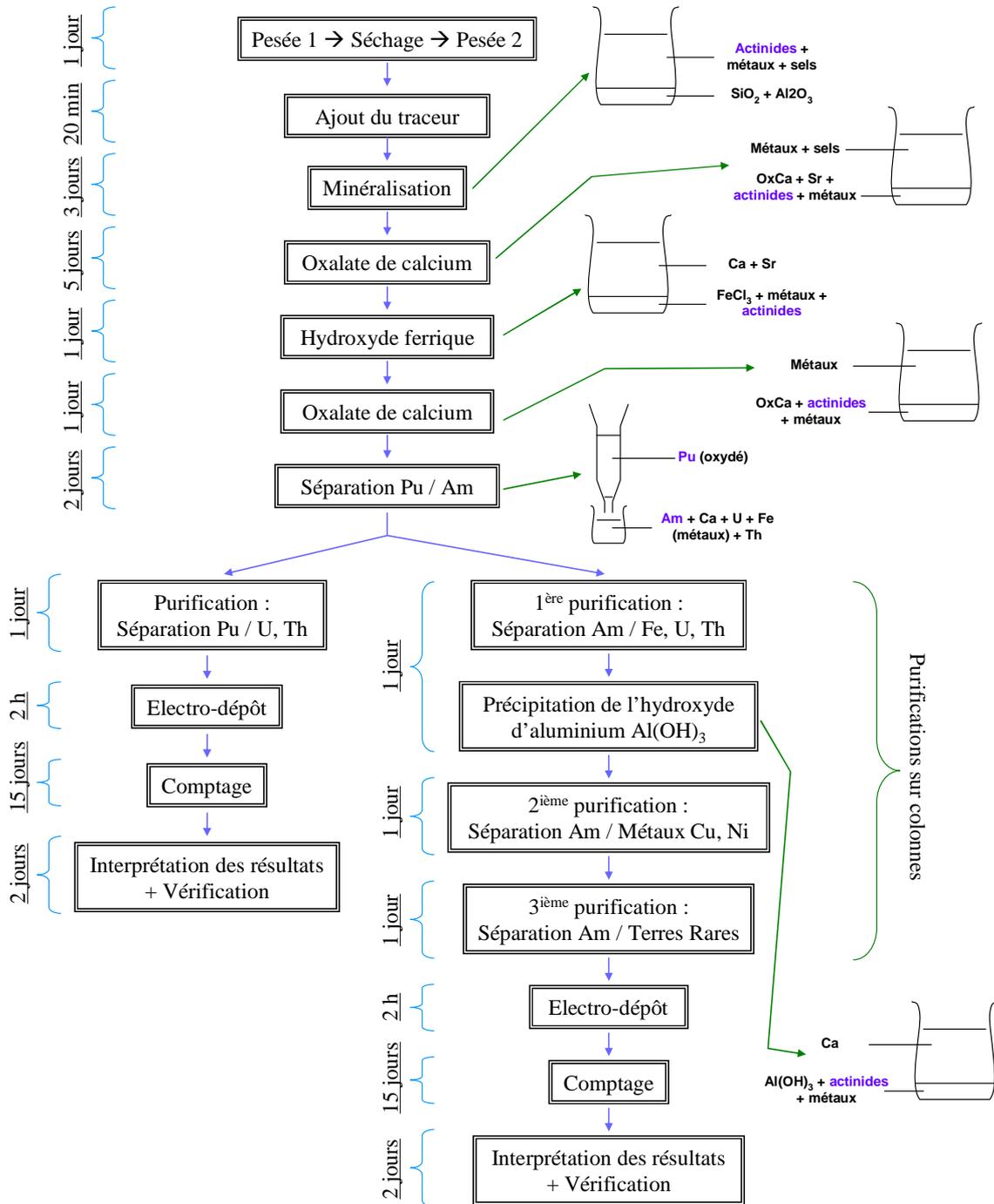
$$Rdt_{\text{détecteur}} = \text{Rendement du détecteur}$$

Les résultats sont ensuite répertoriés sur une fiche telle que le document ci-dessous. Les incertitudes associées ont été calculées.

MODULE ALPHAS (année 2008 actinides)			
N° IMRE: 91400	LOT: 313	Programme: RHAPSODIS	Date de la demande: 23/04/09
Expéditeur: Boust D			
Numéro de l'échantillon: 200822005-30		Nature: SEDIMENT	
Prélèvement	Lieu: ROUEN, BASSIN DES DOCKS	Date: 08/04/2008	
Lieu-dit :	Espèce :		
Quantité: 40,00	Unité: g	Géométrie:	Qualité: SEC
PF/PS: 1,00	PF/PC: 0,00	VI/Vf: 0,00	
commentaires: RHAPSODIS/2VC1C-008			
Analyse demandée 1 Alpha Pu: X Am: X Cm: X			
CONSTITUTION DU GROUPE			
Groupe: 909A	constitué le: 15/05/09	Couleur (JRVBOM): v	
Pris en charge le:		par Opérateur: ST	
CHOIX DU PROTOCOLE			
Sédiment (procédure P4010p9): X			
Poisson (procédure P4010p9):			
Faible PE (non validée):			
Aérosols:			
RESULTATS			
		Prise d'essai:	0,03571 kg
Pu-239+240:	408,2000	ErPu239:	22,3100 DatecptgePu:03/11/2009
Pu-238:	968,4100	ErPu238:	47,1200
Am-241:	155,6400	ErAm241:	17,2100 DatecptgeAm:28/10/2009
Cm-244:	-2,4700	ErCm244:	0,0000
Unité activité: mBq/kg sec			
Vérificateur résultats: CV		Date de vérification:	
		N° rapport d'essai:	

Résultats d'analyses de l'échantillon 2VC1C-008

Traitement chimique des échantillons pour la mesure des isotopes de Pu, Am, Cm par spectrométrie alpha



Traitement chimique des échantillons pour la mesure des isotopes de Pu, Am, Cm par spectrométrie alpha
(D'après le mode opératoire du LMRE)

Annexe H : Analyse du signal sur les niveaux de gris de l'image SCOPIX® de la carotte 2VC2

Les figures présentées dans cette annexe sont issues de Vrel (2009). Elles illustrent l'analyse du signal effectuée sur les niveaux de gris de l'image SCOPIX® de la carotte 2VC2.

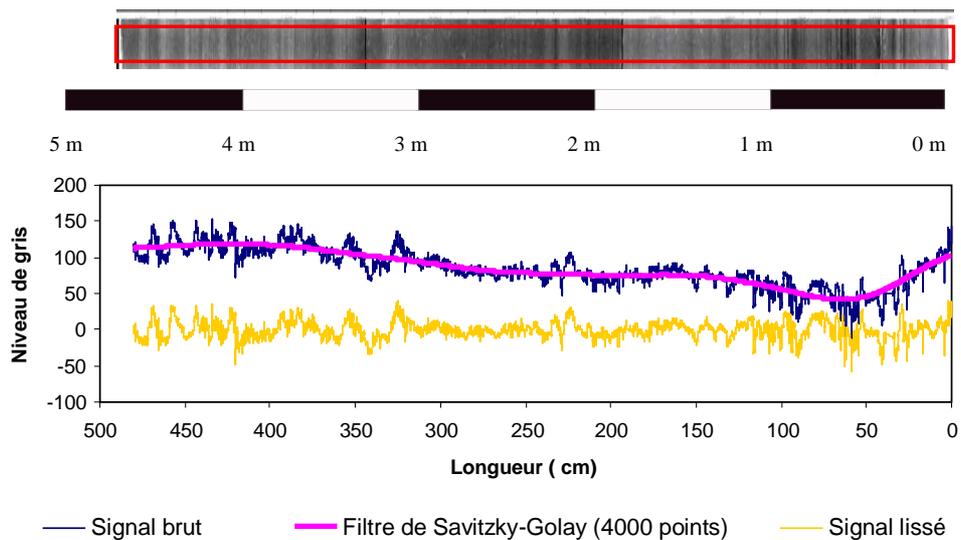
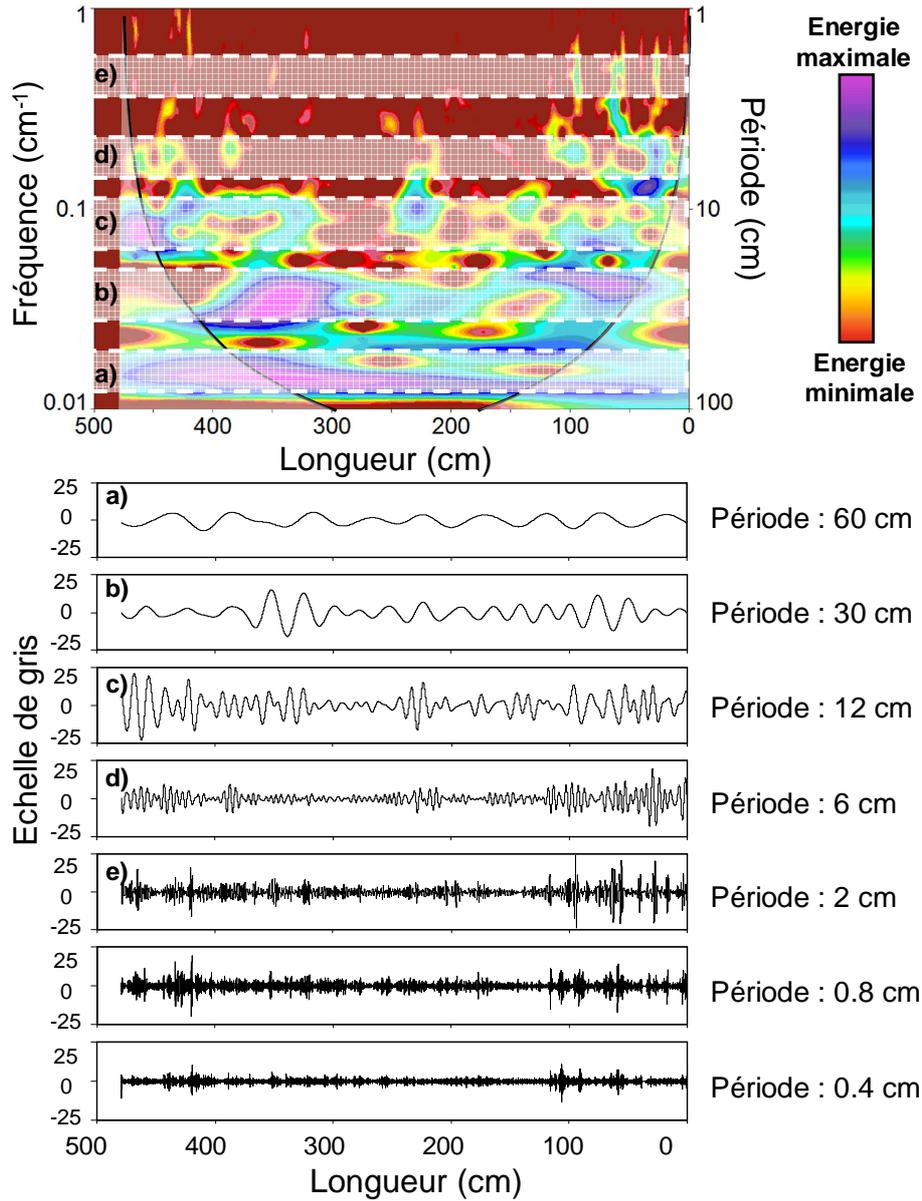


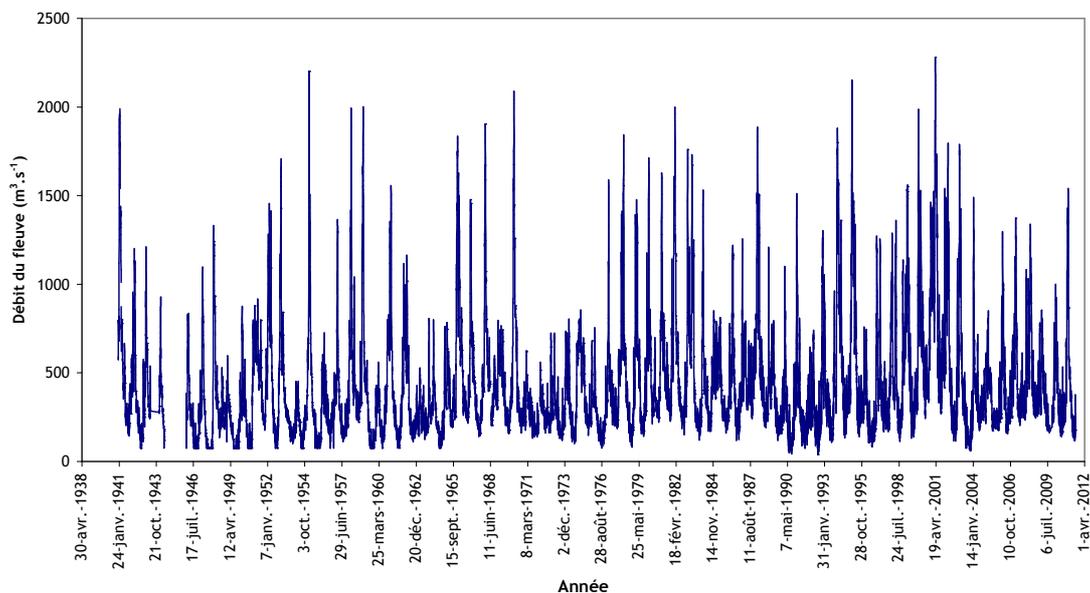
Image Scopix® de la carotte 2VC2 (en haut) et son niveau de gris (en bas) : signal brut, et traitement associé.



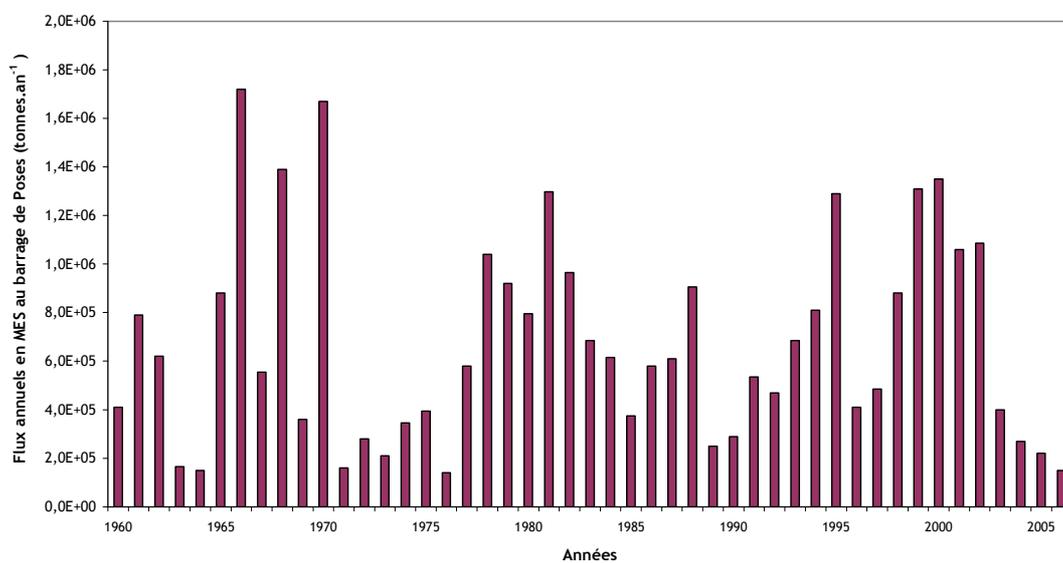
Analyse en ondelette. Spectres d'analyse des niveaux de gris de la carotte 2VC2 et reconstruction de chaque bande de forte énergie. Les hautes fréquences ne sont pas visibles sur ce document; elles ont été identifiées par des extractions intermédiaires.

Annexe I : Historique des débits liquides et solides de la Seine

Historique des débits liquides de la Seine :



Historique des débits solides de la Seine :



Sources des données pour les deux figures : GIP-seine-Aval (<http://seine-aval.crihan.fr/web/>)

Reconstitution de l'historique des apports en radionucléides et contaminants métalliques à l'estuaire fluvial de la Seine par l'étude de leur enregistrement sédimentaire

L'estuaire de la Seine est l'exutoire d'un bassin versant très anthropisé. Certaines zones marginales du fleuve ont piégé les particules fines auxquelles sont associés de nombreux contaminants ; elles donnent accès aux enregistrements sédimentaires des dernières décennies. Des carottages ont été effectués en trois sites : la Seine fluviale, l'estuaire fluvial de la Seine, et son embouchure. Après datation, ces carottes ont permis de reconstituer l'historique des apports particulaires en contaminants en chacun de ces sites. La comparaison entre les séries temporelles des concentrations de certains éléments dans les matières en suspension et dans les sédiments des carottes datées montre que ces derniers constituent un enregistrement conforme aux particules transportées aux mêmes sites. Les flux particulaires de 55 éléments stables et 18 radionucléides ont ainsi pu être calculés de 1960 à 2002. La comparaison des données acquises dans la partie fluviale de la Seine et dans l'estuaire fluvial a permis de distinguer et de quantifier les sources intra-estuariennes de contaminants, dominées par les rejets de phosphogypses effectués dans les années 70 dans la région de Rouen (estuaire fluvial). L'intensité du pompage tidal dans l'estuaire fluvial a pu être quantifiée en utilisant les rapports d'activité de certains transuraniens. Enfin, à partir de l'historique des activités atmosphériques et des données acquises sur les carottes, un modèle de transfert du ^{137}Cs de l'atmosphère vers le fleuve, fondé sur une loi de lessivage par ruissellement et érosion, est alors proposé.

Mots-clés : Seine (France ; cours d'eau) ; Estuaires ; Sédiments des estuaires ; Carottage ; Polluants ; Sédiments (géologie) – teneur en métaux ; Radioactivité ; Phosphogypse.

Reconstruction of the historical inputs of radionuclides and metal contaminants in the fluvial part of the Seine estuary through the analysis of their sedimentary records

The Seine estuary is the outlet of a highly anthropogenized catchment area. Marginal areas of the river have trapped fine-grained sediment particles which a number of contaminants are bound to; they give access to the sedimentary records of the past decades. Corings were carried out in three areas: the Seine River, the upper Seine estuary, and at the river mouth. After dating, these cores have led to reconstruct the history of the inputs particulate elements in each of these areas. The comparison of the time series of elemental concentrations between (i) suspended matter during the last decades and (ii) dated sediments along the cores shows that the latter are representative of the former. Particulate fluxes of 55 stable elements and 18 radionuclides were estimated, from 1960 to 2002. Comparison of data acquired in the Seine River and in the upper estuary led to distinguish and quantify the intra-estuarine sources of contaminants that are dominated by phosphogypsum discharges during the 1970s in the Rouen harbour area (upper estuary). The intensity of tidal pumping up to the upper estuary was quantified using transuranics activity ratios. Based on the atmospheric ^{137}Cs activities over the last decades and core derived ^{137}Cs activities, a transfer model from the watershed to the river, based on a solid wash-off transfer function by runoff and erosion, is then proposed.

Keywords: Estuaries; Estuarine sediments; Core drilling; Pollutants; Radioactivity; Phosphogypsum.

Discipline : Sciences de la terre, sédimentologie, géochimie.

Université de Caen Basse-Normandie - UFR des sciences - Campus 1 - Esplanade de la Paix - 14032 Caen

Laboratoire M2C (UMR CNRS 6143) – Université de Caen Basse-Normandie, 24 rue des Tilleuls – 14000 Caen

Laboratoire LRC (IRSN) - Rue Max Pol Fouchet – 50130 Cherbourg-Octeville