

See discussions, stats, and author profiles for this publication at: <https://www.researchgate.net/publication/292152951>

Les PCB dans le Rhône

Chapter · January 2016

CITATIONS

0

READS

86

6 authors, including:



Marc P Babut

National Research Institute of Science and Te...

101 PUBLICATIONS 1,891 CITATIONS

SEE PROFILE



Marc Desmet

University of Tours

137 PUBLICATIONS 1,449 CITATIONS

SEE PROFILE



Brice Mourier

University of Lyon

31 PUBLICATIONS 275 CITATIONS

SEE PROFILE



Jacek Tronczyński

Institut Français de Recherche pour l'Exploit...

61 PUBLICATIONS 1,900 CITATIONS

SEE PROFILE

Some of the authors of this publication are also working on these related projects:



Fish biogeographical history in Western Europe [View project](#)



Integrative taxonomy of French freshwater fishes [View project](#)

All content following this page was uploaded by [Marc Desmet](#) on 15 April 2016.

The user has requested enhancement of the downloaded file. All in-text references [underlined in blue](#) are added to the original document and are linked to publications on ResearchGate, letting you access and read them immediately.

Les PCB dans le Rhône

*Marc Babut, Henri Persat, Marc Desmet,
Christelle Lopes, Brice Mourier, Jacek Tronczynski*

La découverte fortuite au printemps 2005, près de Lyon, de deux brèmes contaminées par les PCB à un niveau considéré à risque pour les consommateurs par l’Afssa (Agence française de sécurité sanitaire des aliments, devenue l’Anses, Agence nationale de sécurité sanitaire de l’alimentation, de l’environnement et du travail en 2010), a ravivé le souvenir d’une pollution plus ancienne, suscité des inquiétudes dans les services concernés, la population et les médias. Cette découverte a enclenché la mise en place d’un inventaire de la contamination dans les poissons et les sédiments, considérés comme source de la contamination des poissons, et vecteurs de la diffusion des PCB dans le fleuve.

En effet, déjà en 1986, une contamination significative de la chair des poissons du Haut-Rhône avait été mise en évidence par une équipe de l’INRA et de l’École vétérinaire de Lyon (Monod *et al.*, 1988, 1990). Cette première affaire a eu entre autres pour conséquences l’adoption par le ministère de l’Agriculture, en date du 27 février 1988, d’une limite supérieure admissible dans la partie comestible des poissons égale à 2 mg.kg⁻¹ poids frais de PCB « totaux ».

Tous ces éléments étaient encore bien présents à l’esprit des acteurs mobilisés en 2005. La réponse mise en place par les services de l’État a consisté à rechercher l’étendue de la contamination des poissons et à chercher à comprendre ses origines.

Par ailleurs, plusieurs études plus ou moins concomitantes avec la (re)découverte d’une problématique PCB dans le Rhône mettaient en évidence des tendances temporelles assez complexes. Hickey *et al.* (2006) ont montré pour les Grands Lacs nord-américains une baisse générale des PCB totaux entre 1977 et 1998 chez la truite de lac (*Salvelinus namaycush*). Ces auteurs observent toutefois des fluctuations dans le lac Supérieur, qu’ils attribuent à des variations du taux de lipides des truites, en lien avec des changements de régime alimentaire. Par ailleurs, dans

le lac Ontario, deux espèces de saumon (chinook *Oncorhynchus tshawytscha*, coho *Oncorhynchus kisutch*) montraient quant à eux, sur une période de 20 ans, une même baisse générale des concentrations de PCB, ainsi que des fluctuations dans la période récente, qui s'expliquent par la dynamique des populations de proies constituant la nourriture des saumons, par l'effet indirect de mesures de gestion des nutriments (phosphore notamment) ou des stocks de poissons, et de variations climatiques telles que les oscillations El Nino/El Nina (French *et al.*, 2006). Ainsi, si les mesures de restriction puis d'interdiction d'usage des PCB prises dans les pays industrialisés dans les décennies 1970-1980 ont eu un effet visible assez rapidement sur les niveaux globaux de contamination de l'environnement par les PCB, les tendances à long terme paraissent plus difficiles à déterminer, suscitant également des questions sur les tendances spécifiques dans le Rhône.

Dans ce chapitre, nous dressons un panorama synthétique des connaissances actuelles sur les PCB dans le système Rhône, en privilégiant deux compartiments environnementaux : les sédiments et le biote (poissons). L'objectif principal est d'élucider les tendances passées de la contamination par les PCB, et de discuter des possibles tendances futures. Dans cette perspective, nous aborderons également la question des flux de PCB à la mer, qui témoignent de la tendance générale.

1. ■ Description de l'écosystème

L'écosystème fluvial rhodanien (figure 13.1) est un milieu très complexe ainsi que l'on peut s'en apercevoir à travers une synthèse proposée récemment (Olivier *et al.*, 2009). Nous en retiendrons ici quelques traits utiles à la compréhension de l'impact des PCB sur cet écosystème.

La forte charge sédimentaire (fines glaciaires) du Rhône valaisan (débit moyen $183 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) se décantant entièrement dans le lac Léman, la contribution helvétique à la contamination potentielle du Rhône français *via* les matières en suspension se limite aux contributions de l'agglomération genevoise (effluents urbains, industrie horlogère et chimie pharmaceutique). En revanche, à Genève, même le Rhône reçoit une forte charge sédimentaire en provenance des glaciers du Mont-Blanc par l'intermédiaire de son principal affluent alpin l'Arve (débit moyen $75 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$). Ces sédiments sont potentiellement contaminés par la longue tradition industrielle, essentiellement de décolletage, de cette vallée. L'ensemble est partiellement décanté dans les retenues successives de Verbois, Chancy-Pougny, et surtout Génissiat, qui nécessitent des vidanges périodiques, ponctuant le régime sédimentaire du fleuve d'épisodes hors normes tous les 3 à 10 ans.

Plus en aval, le Rhône reçoit par l'intermédiaire du Fier (débit moyen $42 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) les effluents urbains de l'agglomération d'Annecy, puis, par un collecteur, ceux de Chambéry. Ensuite, les principaux rejets proviennent de la zone industrielle de Bourgoin-Jallieu drainée par la Bourbre (débit moyen $8 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), de la zone industrielle de la plaine de l'Ain incluant une usine de traitement de déchets industriels spéciaux, et de la centrale nucléaire du Bugey.

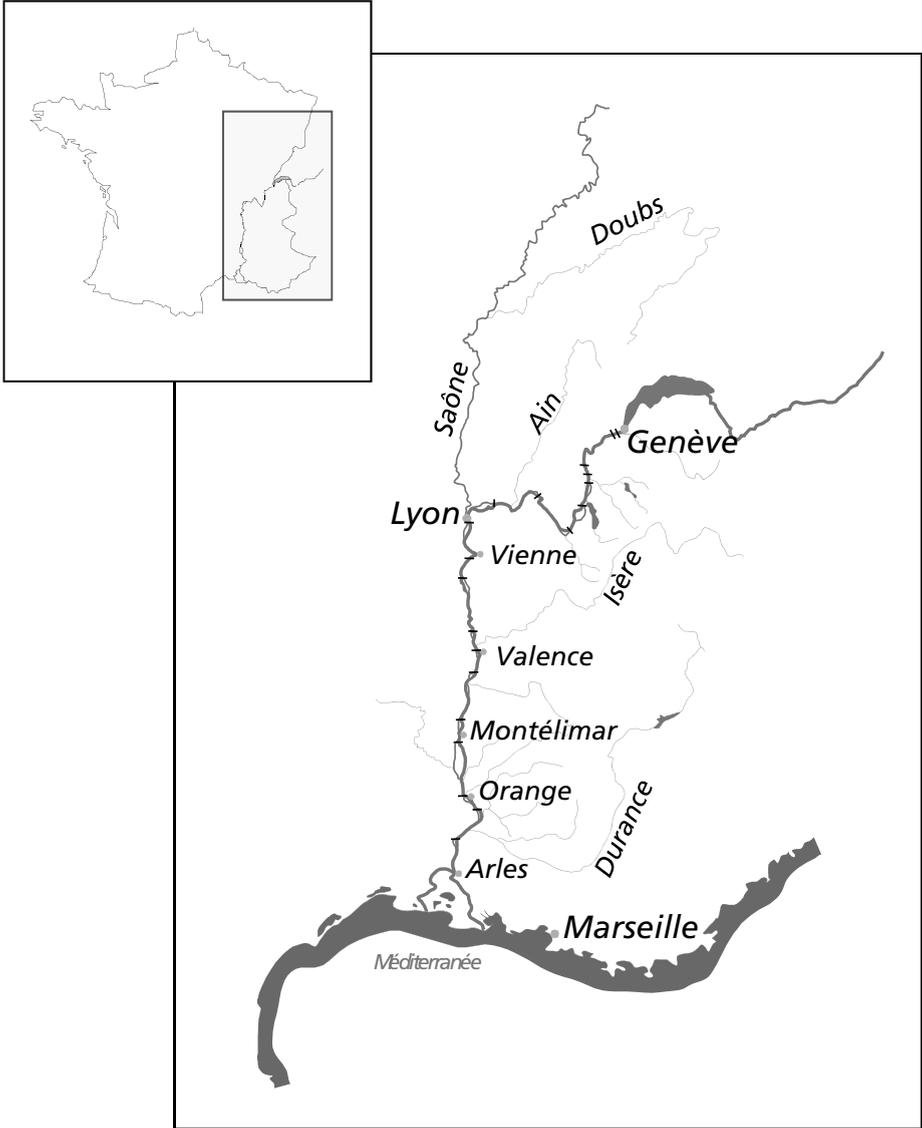


Figure 13.1. Le bassin versant du Rhône en France (d'après Olivier, com. pers.). Les traits fins en travers du Rhône signalent les barrages.

Juste en aval de ce secteur, le Rhône reçoit l'Ain (débit moyen $123 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) qui lui procure une forte charge de fond (graviers), mais peu de matières en suspension, qui sont essentiellement des argiles en provenance du Jura lors des crues. À Lyon, il retrouve la Saône (débit moyen $475 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) qui modifie largement son régime hydrologique : le débit moyen du Rhône dépasse alors les $1\,000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$, et la Saône lui apporte aussi de la matière organique en suspension ou des argiles de lessivage des terres agricoles, associées aux polluants d'origine domestique,

agricole ou industrielle de son vaste bassin versant. À Lyon, le Rhône reçoit également tous les effluents de l'agglomération lyonnaise et du « couloir de la chimie » qui lui succède, avant ceux de la vieille vallée industrielle du Gier puis du complexe chimique de Péage de Roussillon auxquels se rajoutent une seconde usine d'incinération de déchets industriels et la centrale nucléaire de Saint-Alban.

À Valence, le régime hydrologique du Rhône est une nouvelle fois sensiblement modifié par l'arrivée de son principal affluent alpin, l'Isère (débit moyen $337 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), grande pourvoyeuse de matières en suspension d'origine glaciaire, sensiblement contaminées par la vieille tradition industrielle métallurgique et chimique des grandes vallées alpines (Tarentaise, Maurienne, Romanche et Drac).

Entre Valence et Avignon, l'industrialisation de la vallée tourne autour des centrales nucléaires de Cruas et Tricastin, et des usines associées de Pierrelatte.

Depuis l'édification du barrage de Serre-Ponçon, les apports sédimentaires considérables en provenance de la Durance, dont l'essentiel du débit moyen de $180 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ est détourné vers l'étang de Berre et les canaux de Provence, se sont réduits à quelques contributions ponctuelles, principalement en matières en suspension, lors de crues devenues sporadiques, sans adjonction de grosses sources de pollution.

D'une façon générale, les eaux du Rhône sont très peu chargées en matières organiques : le plus souvent moins de $2 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ de DBO5, et les nitrates ne dépassent guère $6 \text{ mg} \cdot \text{L}^{-1}$ entre Lyon et la mer, grâce notamment au fort taux de dilution procuré par ses débits élevés. En revanche, on note une présence récurrente d'éléments traces d'origine anthropique (industrie, zones urbaines et agriculture) tels que arsenic, mercure, zinc, nickel et cuivre, pesticides, hydrocarbures aromatiques polycycliques et autres composés organiques de synthèse.

Du point de vue piscicole, l'aménagement hydroélectrique généralisé du fleuve a conduit à abaisser son niveau typologique (Verneaux, 1977) de plusieurs degrés. Ainsi, si le Rhône devait présenter en amont de Lyon des caractéristiques thermiques et hydrauliques permettant de le classer dans la zone B3-B5 à ombre (*Thymallus thymallus*) ou barbeau (*Barbus barbus*), ce statut n'est plus guère conservé que dans les sections court-circuitées de ce tronçon, tandis que celles de l'aval émarginent plutôt aux niveaux B5-B7 : barbeau, gardon (*Rutilus rutilus*), ablette (*Alburnus alburnus*). Les aménagements se rapprocheraient nettement de la zone B8-B9, brème (*Abramis brama*), si les crues ne venaient régulièrement perturber l'établissement d'une communauté typique de cette zone. En conséquence, les espèces les plus communes à l'ensemble du linéaire rhodanien sont le gardon, la perche (*Perca fluviatilis*) et le chevaine (*Squalius cephalus*), et accessoirement la brème bordelière (*Blicca bjoerkna*) et l'ablette, auxquelles s'adjoignent dans les sections court-circuitées, le barbeau, le hotu (*Chondrostoma nasus*) et à un moindre degré le goujon (*Gobio gobio*). Il convient par ailleurs de noter que, si les barrages de basse chute de type Compagnie nationale du Rhône (CNR) n'empêchent pas la dispersion des espèces vers l'aval, ils gênent considérablement les échanges inverses. C'est ainsi que les espèces amphibiotiques,

l'alose (*Alosa fallax rhodanensis*), l'anguille (*Anguilla anguilla*) et la lamproie marine (*Petromyzon marinus*), ne se rencontrent guère au-delà des premiers obstacles rencontrés (Persat *et al.*, 1995 ; ARALEP, 2003).

2. ■ Les PCB dans les sédiments

2.1. Aspects méthodologiques

Les sédiments constituent l'un des compartiments privilégiés pour l'accumulation des PCB qui, en raison de leur caractère hydrophobe, s'adsorbent sur les particules fines chargées de matière organique (Wong *et al.*, 2001 ; voir chapitre 8). Il existe de nombreuses données sur la contamination des sédiments du Rhône par divers contaminants, dont les PCB, grâce au réseau de surveillance opéré de longue date par l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse (SIE). Ce réseau repose sur l'échantillonnage annuel de sédiments superficiels, si possible déposés depuis moins d'un an sans datation du dépôt. L'incertitude sur la représentativité des échantillons collectés de cette manière, les limites de quantification parfois élevées pour les PCB, et le manque de données sur des paramètres comme le carbone organique et la granulométrie, empêchent en pratique d'exploiter la base de données ainsi constituée en termes de tendances spatiales et temporelles.

L'étude des archives sédimentaires est une bien meilleure approche pour reconstituer les tendances historiques de la contamination par les composés hydrophobes comme les PCB (Eisenreich *et al.*, 1989 ; Alcock *et al.*, 1993 ; Van Metre *et al.*, 1997 ; Van Metre et Mahler, 2005), à condition toutefois que les dépôts se soient constitués en continu. Cette condition explique pourquoi la plupart des études sur des carottes publiées jusqu'à présent ont porté sur des lacs (Zennegg *et al.*, 2007), des retenues (Van Metre *et al.*, 1997 ; Van Metre et Mahler, 2005), et moins souvent sur des rivières elles-mêmes, où les zones de dépôt non perturbé se situent dans les deltas (Mai *et al.*, 2005), ou les bras morts de cours d'eau (Bábek *et al.*, 2008, 2011).

Une fois la carotte prélevée, l'étude des séquences sédimentaires provenant de rivières implique une combinaison de méthodes sédimentologiques, texturales et géochimiques : datation à l'aide de marqueurs radioactifs (^7Be , excès de ^{210}Pb , ^{137}Cs notamment), distribution granulométrique (proportion de sables, silts, argiles, classement et asymétrie de la distribution), analyse du carbone organique total (COT) et des contaminants. Ces analyses se pratiquent tout au long de la carotte, sur des sous-échantillons pris à différentes profondeurs, en cherchant le meilleur compromis entre la résolution (nombre et épaisseur des sous-échantillons élevés) et la précision des analyses, qui suppose une quantité de matériau suffisante.

2.2. Aperçu de quelques résultats récents

Dans le cadre d'une étude sur les relations entre contamination des sédiments et des poissons financée par le « Plan Rhône » (voir paragraphe 3.3 ci-après),

quatre carottes ont été recueillies en 2008 et 2009 entre la lône de la Morte (MTE ; $45^{\circ} 42' 5.67''$ N, $5^{\circ} 33' 14.58''$ E) à Brégner-Cordon et la lône de l'île du Beurre (BRE ; $45^{\circ} 28' 35.00''$ N, $4^{\circ} 46' 55.46''$ E ; figure 13.2), de façon à élucider les tendances spatiales et temporelles de la contamination des sédiments par les PCB dans la zone la plus amont où sont intervenues des interdictions de consommation après 2005. Le point amont (MTE) représente une référence relative ; les sites de Cépieux (CPX ; $45^{\circ} 48' 9.82''$ N, $4^{\circ} 55' 3.18''$ E) et du Grand Large (GDL ; $45^{\circ} 46' 56.61''$ N, $4^{\circ} 58' 30.31''$ E) sont situés sur les deux bras du Rhône à l'amont de Lyon (canal de Miribel et canal de Jonage respectivement). CPX se présente comme une « darse » creusée au début de la décennie 1980-1990 en bordure du vieux Rhône de Miribel. GDL est situé sur un plan d'eau artificiel, en annexe du canal de Jonage, dont il est séparé par un rideau de palplanches ; le plan d'eau est en équilibre avec le canal, qui l'alimente par l'aval.

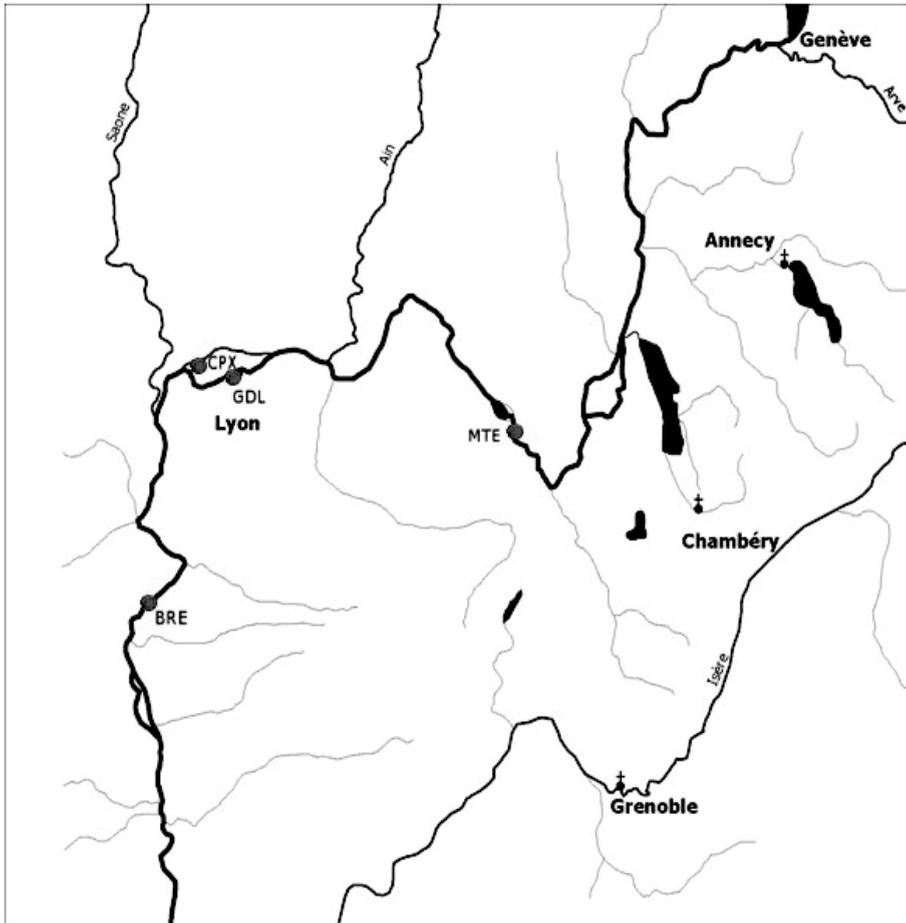


Figure 13.2. Sites de carottage de sédiment et de prélèvement de poissons de l'étude sur les relations entre contamination des sédiments et des poissons.

Les données relatives aux carottes MTE, CPX et BRE et leur interprétation ont été publiées par Desmet *et al.* (2012). Le taux de dépôt (MAR, *mass accumulation rate*) à MTE passe d'une valeur estimée à $1,1 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ entre 1964 et 1986 à une valeur de $0,48 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ entre 1986 et 2008. Le dépôt à CPX est caractérisé par trois périodes, avec un MAR de $2,3 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ à partir de l'ouverture de la darse, $5,0 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ au moment de la série de crues des années 1990, et $1,8 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ ensuite, en particulier après 2001-2002, dernière grande crue enregistrée dans ce tronçon. Sur la carotte GDL, les taux de dépôts vont de $2,0 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ pendant la période 1986-2005 à $2,2 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ entre 2005 et 2010. Enfin, au site aval (BRE), les MAR atteignent des valeurs très élevées, $7,1 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ en 1984-1986 et $3,1 \text{ g.cm}^{-2}.\text{an}^{-1}$ entre 1986 et 2008.

Les profils de concentrations en PCB indicateurs (somme des concentrations ΣPCBi) sont assez différents selon les sites (figure 13.3) : à l'amont (MTE), le maximum est atteint dans les années 1970, correspondant au maximum d'émission (Breivik *et al.*, 2002 ; Zennegg *et al.*, 2007). À l'aval, les maxima sont plus tardifs, autour de 1990 à CPX et 1997 à GDL. À l'île du Beurre, les concentrations sont variables sur toute la période et marquent une augmentation dans les couches les plus récentes. Il convient toutefois de préciser que les séquences prélevées n'ont pas couvert les mêmes périodes, de sorte que des teneurs élevées en PCB pourraient exister à certains sites à des périodes antérieures à la base des séquences carottées.

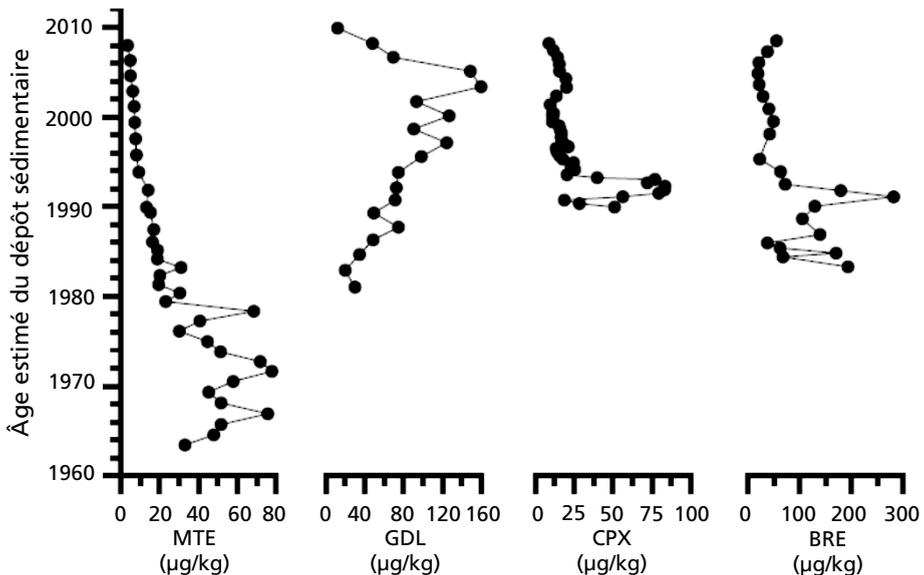


Figure 13.3. Concentrations de la somme des PCB indicateurs en fonction de l'âge estimé des sédiments à MTE (gauche), GDL (milieu gauche), CPX (milieu droite) et BRE (droite).

L'échelle de contamination par les PCB (ΣPCBi) figure sur l'axe des abscisses, pour chaque site.

De nouvelles carottes ont été prélevées par la suite, sur les sites des Étournels (ETL), une vingtaine de km à l'aval de l'extrémité du lac Léman, de la Table Ronde (TBR), à une dizaine de km à l'aval de la confluence Saône-Rhône et à l'amont de BRE, d'Arras (ARS), au nord de Valence, et la Grange écrasée (GEC) à l'aval du confluent du Rhône et de l'Isère (Mourier *et al.*, 2014). Ces carottes ont été analysées de la même façon que les trois premières. Les patrons temporels sont assez variables, avec des concentrations maximales dans la décennie 1970 (MTE) ou 1980 (ARS), voire 1980-1990 (CPX, BRE, GEC). Ces résultats, ainsi que les variations des concentrations à CPX, BRE ou encore GEC, suggèrent un rôle majeur de la dynamique sédimentaire, naturelle ou forcée, et particulièrement des crues, dans le transport de ces contaminants. Le débit et la hauteur d'eau en période de crue jouent donc un rôle non négligeable dans le déstockage de sédiments contaminés. Les sources de la contamination des sédiments par les PCB sont également plus nombreuses lorsqu'on progresse vers l'aval, soit à l'amont de Lyon (sites contaminés de la Bourbre, TREDI à Saint-Vulbas) (Desmet *et al.*, 2012), soit au niveau ou à l'aval de l'agglomération lyonnaise. Enfin l'Isère apporte des flux de particules fortement chargées en PCB, comme l'attestent les concentrations élevées à GEC en comparaison des autres sites.

La figure 13.4 présente les valeurs médianes relevées dans les différentes carottes étudiées par décennie, entre 1965 et la période actuelle, en excluant le site GDL pour lequel le modèle d'âge s'est révélé moins fiable (Mourier *et al.*, 2014). Ces valeurs médianes s'ajustent à des modèles de croissance exponentielle ($R^2 = 0,92$; $R^2 = 0,96$; $R^2 = 0,94$ respectivement pour les décennies 1986-1995,

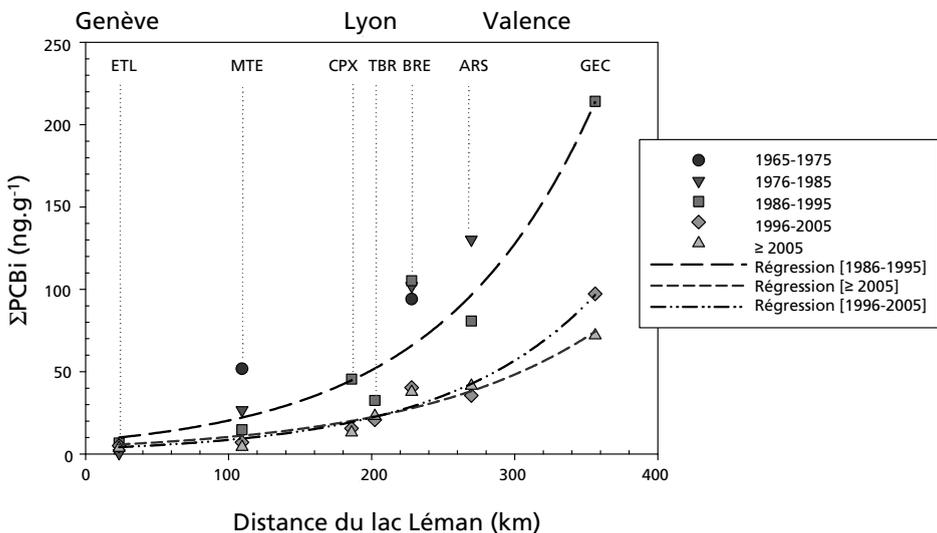


Figure 13.4. Tendances 1965-2013 de la contamination des sédiments par les PCB entre le lac Léman (ETL) et la Grange Écrasée (GEC). Concentrations en PCB_i (Mourier *et al.*, 2014).

Les lignes pointillées figurent les courbes de régression pour les trois dernières décennies.

1966-2005 et post-2005). Cette figure met ainsi bien en évidence un gradient amont-aval de contamination, sur toute la période considérée ; Mourier *et al.* (2014) mettent bien en évidence la progression parallèle de la population cumulée du bassin amont de ces sites. Les sites TBR et BRE ont tendance à s'écarter des modèles exponentiels, pour des raisons opposées : apport de sédiments moins contaminés en provenance de la Saône pour le premier, apport des sédiments du Gier, plus chargés en PCB, pour le second. La figure 13.4 montre également une baisse généralisée de la contamination, moins rapide dans les périodes les plus récentes ; cette baisse relative s'explique notamment par les mesures réglementaires prises dans les années 1980 et 1990, le ralentissement étant plus à mettre en rapport avec les différences de solubilité, de volatilité ou de dégradabilité des congénères.

2.3. Perspectives

L'approche consistant à collecter des carottes sédimentaires dans des annexes fluviales où le dépôt s'est effectué en continu sur une longue période de temps s'avère donc pertinente et prometteuse pour caractériser les gradients amont-aval et les tendances temporelles de la contamination d'un système fluvial, en tout cas par des contaminants hydrophobes. Elle ouvre aussi la possibilité de déterminer la durée nécessaire à une réduction de 50 % de la contamination (Desmet *et al.*, 2012) ou d'estimer une date probable de conformité à un seuil de concentration (Mourier *et al.*, 2014).

3. ■ Les PCB dans le biote

3.1. Situation entre 1986 et 2000

Dans l'étude citée plus haut (Monod *et al.*, 1988), la somme des PCB mesurés dans le biote (chair de hotu) passait de 0,5 mg.kg⁻¹ (PF) à Pont d'Ain (rivière d'Ain) et 0,9 mg.kg⁻¹ (PF) à Pont de Lucey (Rhône), à 4,5 mg.kg⁻¹ (PF) dans le « canal de Miribel ». Des concentrations similaires étaient relevées dans la même étude respectivement chez le gardon et l'ombre (Monod *et al.*, 1988). Par la suite, les études ont montré qu'un apport important de PCB provenait d'un site spécialisé dans la destruction des PCB situé dans la plaine de l'Ain, et rejetant ses eaux pluviales et traitées dans le Rhône à Saint-Vulbas.

Un programme de suivi a alors été mis en œuvre (Monod *et al.*, 1990), notamment avec le concours du Service de la navigation Rhône-Saône (SNRS), qui l'a prolongé jusqu'en 1999, en privilégiant les hotus dans le canal de Miribel. À la demande de la DRIRE (Direction régionale de l'industrie, la recherche et l'environnement), l'industriel identifié dans la plaine de l'Ain a également mis en place un suivi de la contamination des poissons en amont et aval de son rejet au Rhône. La synthèse réalisée en 2000 par le laboratoire CARSO sur l'ensemble de

ces données a conclu que les poissons échantillonnés étaient devenus conformes à la valeur limite de 2 mg.kg^{-1} PF (CARSO, 2000), et le SNRS a donc arrêté sa surveillance des poissons.

3.2. 2005-2007 : nouvelles investigations et questions

La mise en évidence de concentrations élevées de PCB, de PCDD et de PCDF dans le biote, chair de deux brèmes pêchées dans le Grand Large (voir figure 13.2) au printemps 2005, résulte d'un concours de circonstances. Pendant l'hiver, un épisode de botulisme aviaire, probablement consécutif à la remise en suspension de sédiments lors d'un dragage du plan d'eau du Grand Large, conduisait à une interdiction temporaire de commercialiser le poisson capturé dans le plan d'eau. Au printemps, après la levée de cette interdiction, le concessionnaire du lot de pêche demandait des analyses à la Direction des services vétérinaires (DSV) pour montrer la qualité retrouvée de ses produits, sans cibler particulièrement les PCB. Ceux-ci auraient été inclus dans l'analyse à l'initiative de la DSV (Meunier, 2008). Au vu des résultats, un avis était demandé à l'Afssa qui concluait à un risque potentiel pour le consommateur et recommandait de délimiter l'extension du problème en ciblant plus particulièrement brèmes, carpes (*Cyprinus carpio*), silures (*Silurus glanis*) et brochets (Afssa, 2005). Ce premier choix visait donc soit des espèces benthiques et plus ou moins grasses (brèmes, carpes, silures), soit une espèce piscivore (brochet, *Esox lucius*), en raison du caractère hydrophobe des PCB et de leur bioamplification.

Pas à pas, les investigations recommandées par l'Afssa ont été mises en œuvre jusqu'au barrage de Vaugris à l'aval de Lyon (Babut et Miège, 2007) puis jusqu'à la Méditerranée (Afssa, 2008b), suivies par des restrictions de consommation entre le barrage de Sault-Brénaz et la mer (http://www.rhone-mediterranee.eaufrance.fr/usages-et-pressions/pollution_PCB/pcb-arretes-interdiction.php). Entretemps les règles d'interprétation des données de contamination s'étaient précisées, avec la publication début 2006 d'une directive européenne sur les teneurs maximales en dioxines et composés apparentés dans l'alimentation (CE, 2006a), puis du règlement afférent (CE, 2006b). Cette réglementation, qui ne concerne qu'une fraction des PCB, fixe à 12 pg.g^{-1} PF en équivalent dioxine (TEQ) la limite acceptable pour les anguilles, et à 8 pg TEQ.g^{-1} PF la limite pour les autres espèces. En tout état de cause, dans la plupart des cas et notamment dans le cas des poissons du Rhône, en moyenne 80 % de la TEQ est due aux PCB-DL (Babut *et al.*, 2009).

Ces investigations successives ont mis en évidence un gradient de contamination de l'amont vers l'aval (Afssa, 2008b). Dans le secteur amont (entre la frontière franco-suisse et le barrage de Sault-Brénaz), seuls quelques gros individus d'espèces comme le barbeau fluviatile ou la brème commune dépassent la limite réglementaire. Dans les trois secteurs suivants (du barrage de Sault-Brénaz à la confluence Rhône-Saône, de cette dernière à la confluence Rhône-Isère, et entre la confluence Rhône-Isère et la confluence Durance-Rhône), de nombreux poissons excèdent le seuil réglementaire, bien que certaines espèces restent généralement conformes. Les fréquences de dépassement et la taille maximum

des poissons (selon l'espèce) correspondant au seuil réglementaire se révélaient cependant plus variables dans les deux secteurs aval, entre Saône et Durance.

Les analyses de chair de poissons menées entre 2006 et 2008 ont concerné plus d'espèces que la liste recommandée initialement, pour des raisons diverses. Cette diversité « forcée », si elle complique l'interprétation, a cependant permis de montrer que le brochet et le sandre, malgré leur comportement carnassier, étaient moins contaminés que beaucoup d'autres espèces. En revanche, le barbeau fluviatile, espèce non ciblée au départ mais relativement commune, se révélait présenter fréquemment des teneurs élevées. Ces observations ont amené l'Afssa à préciser ses recommandations sur les espèces à rechercher, en distinguant deux groupes d'espèces, dits faiblement et fortement bioaccumulateurs (Afssa, 2008a) (tableau 13.1).

Tableau 13.1. Groupes d'espèces selon leur aptitude à accumuler les PCB (d'après Afssa, 2008a, 2009).

	Espèces à potentiel d'accumulation élevé	Espèces à potentiel d'accumulation modéré
Recommandées	Anguille (<i>Anguilla anguilla</i>) Barbeau fluviatile (<i>Barbus barbus</i>) Brème commune (<i>Abramis brama</i>)	Chevaine (<i>Squalius cephalus</i>) Gardon (<i>Rutilus rutilus</i>) Hotu (<i>Chondrostoma nasus</i>) Goujon (<i>Gobio gobio</i>) Carassin (<i>Carassius carassius</i>)
Complémentaires	Carpe commune (<i>Cyprinus carpio</i>) Silure (<i>Silurus glanis</i>)	Perche commune (<i>Perca fluviatilis</i>) Sandre (<i>Sander lucioperca</i>) Brochet (<i>Esox lucius</i>)
Incertaines	Blageon (<i>Telestes souffia</i>) Vairon (<i>Phoxinus phoxinus</i>) Truite de rivière (<i>Salmo trutta fario</i>)	

Comme mentionné ci-dessus, le brochet a d'abord été considéré comme une espèce à risque, à cause de sa position trophique élevée et du caractère bioamplifiable des PCB. La réalité constatée dans le Rhône est relativement différente : si quelques brochets dépassent le seuil réglementaire dans les secteurs les plus contaminés (entre Sault-Brenaz et la confluence Rhône-Isère notamment), les niveaux constatés chez cette espèce sont systématiquement inférieurs à ceux du barbeau, du silure ou de l'anguille. Ceci ne remet pas en cause le caractère bioamplifiable des PCB, mais suggère que la contamination des proies consommées par les brochets est moins importante que celle des proies des barbeaux, anguilles ou silures. D'autre part, les brochets et les sandres capturés et analysés dans le Rhône depuis 2005 sont dans l'ensemble assez jeunes (~5 ans), ce qui induit une certaine sous-estimation par rapport en particulier aux barbeaux (7-8 ans et plus), exposés plus longtemps.

L'examen des données disponibles fin 2006, plus particulièrement entre la confluence du Rhône et de l'Ain et Lyon, n'a pas permis d'établir de manière nette comment avait évolué la contamination des poissons depuis 2000 (Babut

et Miège, 2007). Plusieurs raisons expliquent cette difficulté, notamment le fait que les brèmes analysées en 2005, puis d'autres espèces collectées par la suite, provenaient du canal de Jonage, qui n'avait pas fait jusque-là l'objet de la même attention que le canal de Miribel en 1986-1990. De plus, les données obtenues en 2005-2006 se sont avérées difficilement comparables à celles des années antérieures, à cause de différences de méthode d'échantillonnage et d'analyse, d'espèces, de taille (ou d'âge) des poissons. Une comparaison graphique simple, sur le principe des « cartes de contrôle », montre qu'effectivement pour le hotu les concentrations mesurées en 2005-2006 au long du Rhône sont inférieures à la moyenne des concentrations des hotus du canal de Miribel en 1988 (figure 13.5). Cependant, eu égard à la variabilité des mesures de 1988 (moyenne de ΣPCBi 265 $\mu\text{g.kg}^{-1}$ PF, écart type 180 $\mu\text{g.kg}^{-1}$ PF), cette baisse n'est pas statistiquement significative.

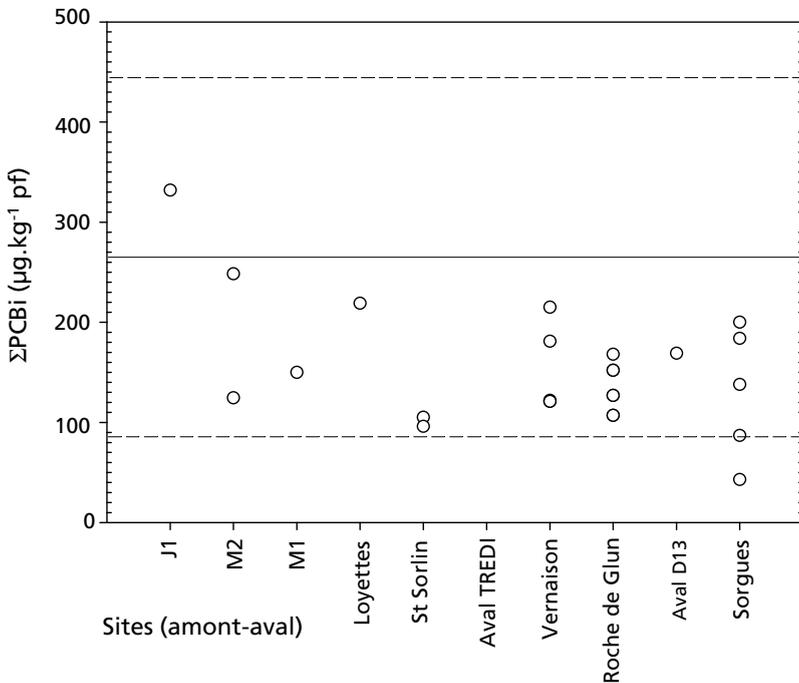


Figure 13.5. Comparaison des concentrations mesurées dans les hotus du Rhône entre 2005 et 2007 (chaque individu est représenté par un cercle) à la moyenne (tiret long) ou moyenne plus ou moins un écart type (tirets fins) des concentrations mesurées dans les hotus du canal de Miribel en 1988.

Il en va de même pour le sandre ou le brochet, sur des effectifs plus faibles aussi bien dans la période 1988-1989 qu'entre 2005 et 2007. La variabilité importante des concentrations en 1988-1989 peut être due, au moins en partie, à ce que les individus analysés étaient de taille et d'âge variables. La quasi-absence de données biométriques sur la période ancienne empêche d'affiner la comparaison.

Ainsi, alors que beaucoup de données ont été produites en 25 ans sur l'impact des PCB sur la contamination des poissons dans le Rhône, et plus généralement sur les processus de contamination et d'accumulation chez ces organismes, elles restaient en 2007 insuffisantes pour comprendre la variabilité de cette contamination, et *a fortiori* son devenir. C'est pourquoi le plan d'actions sur les PCB adopté en 2008 pour le bassin Rhône-Méditerranée (http://www.rhone-mediterranee.eau-france.fr/usages-et-pressions/pollution_PCB/pcb-programme-actions-2008-2010.php), à côté d'un inventaire extensif de la situation dans le bassin, comportait un volet de développement des connaissances articulé autour de deux questions, à savoir (i) comprendre le processus de contamination (source et transferts trophiques) et (ii) élucider les tendances.

3.3. 2008-2010 : premières réponses

Pour comprendre les processus de contamination, il est donc important d'identifier, au moins pour des espèces « clés » de poissons, les voies de contamination prédominantes, ainsi que les facteurs qui l'influencent. Ces facteurs peuvent être chimiques (propriétés des PCB), physiologiques ou trophiques.

Les résultats présentés ci-après sont tirés d'une étude menée sur le Rhône sur trois sites (voir figure 13.1) : un site amont, La Morte (MTE, référence relative) et deux sites en aval de plusieurs sources présumées de contamination, le Grand Large (GDL) et la lône de l'île du Beurre (BRE) (Lopes *et al.*, 2011). Sur chaque site, trois espèces de cyprinidés ont été recherchées de façon à (i) représenter différentes chaînes trophiques, et (ii) pouvoir comparer aux données disponibles par ailleurs. Il s'agit d'espèces suffisamment communes pour être présentes sur les trois sites d'étude, et connues *a priori* pour accumuler les PCB à différents niveaux de contamination : le barbeau, la brème commune et le chevaine. Pour chacun des 122 individus capturés, la taille, le poids et le sexe ont été déterminés, l'âge a été estimé par scalimétrie (comptage des annuli des écailles), le contenu stomacal a été examiné de manière à identifier les proies ingérées, et des filets de chair ont été prélevés aux fins d'analyse du taux de lipides, des PCB indicateurs (PCB28, 52, 101, 118, 138, 153 et 180), et d'isotopes du carbone et de l'azote. Ces derniers permettent de déterminer la position trophique des poissons et le type d'habitat exploité.

Dans un même temps, des invertébrés connus pour constituer la diète du barbeau et de la brème dans le secteur étudié (Vieille-Blanchard, 2007) ont été collectés à des fins d'analyse de PCB et d'isotopes. Un inventaire des invertébrés présents sur chaque site a également été réalisé. Les données de contamination des poissons sont présentées par espèce pour chaque site sur la figure 13.6.

Ces données confirment une différence de contamination entre sites et entre espèces : la contamination augmente d'amont en aval, tant en termes de niveau de contamination que de nombre d'individus au-dessus du seuil réglementaire. Par ailleurs, il apparaît que le chevaine est l'espèce la moins contaminée et que

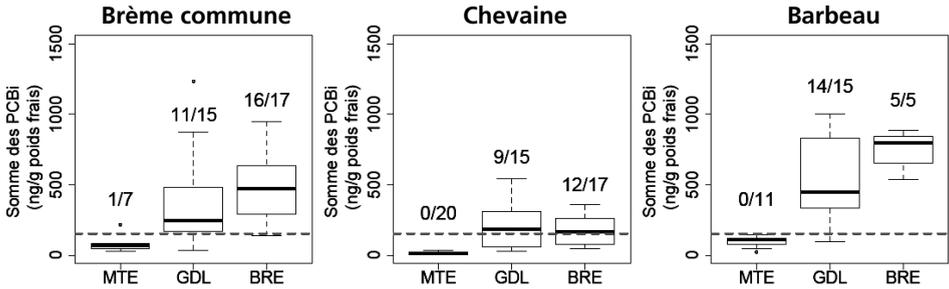


Figure 13.6. Niveaux de contamination en PCB dans chaque espèce de poisson sur les trois sites – MTE : La Morte ; GDL : Grand Large ; BRE : île du Beurre.

Les PCB sont exprimés par la somme des 7 PCB indicateurs. Les ratios au-dessus de chaque boxplot représentent le nombre d'individus au-dessus du seuil réglementaire sur le nombre total d'individus échantillonnés sur ce site. En pointillés horizontaux est représentée la concentration en PCBi équivalente au seuil réglementaire (154 ng.g⁻¹ PF).

le barbeau est plus contaminé que la brème. En revanche, aucune différence de contamination n'a été observée entre mâles et femelles. Enfin, on peut observer une grande variabilité intraspécifique des niveaux de contamination, notamment au Grand Large.

De nombreux facteurs physiologiques et trophiques sont connus pour expliquer la variabilité interspécifique de contamination des poissons aux PCB (Borga *et al.*, 2004). Nous avons tenté ici d'étudier la contribution de chaque type de facteur et ainsi expliquer non seulement la variabilité interspécifique de contamination que l'on peut observer, mais aussi la variabilité intraspécifique. Nous avons en particulier examiné l'influence des préférences alimentaires (par l'analyse des contenus stomacaux des poissons mis en relation avec l'inventaire faunistique effectué), de la position trophique et du type d'habitat exploité en utilisant les données isotopiques du carbone et de l'azote.

Les atomes constitutifs des êtres vivants proviennent des atomes de leur nourriture : il existe par conséquent une relation entre la composition isotopique de la nourriture et celle du consommateur. Lors de l'incorporation de ces éléments dans les tissus, il se produit un enrichissement en isotopes lourds par rapport à la nourriture (= enrichissement trophique), qui est compensé par l'excrétion préférentielle des isotopes légers. En moyenne le $\delta^{13}\text{C}$ ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) est enrichi de $\sim 1\text{‰}$ et le $\delta^{15}\text{N}$ ($^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$) de $\sim 3,4\text{‰} \pm 1,1\text{‰}$ à chaque niveau trophique (Post, 2002). Les rapports isotopiques stables du carbone et de l'azote reflètent donc la composition isotopique alimentaire (Dufour et Gerdeaux, 2001). Le ratio des isotopes d'azote peut être utilisé pour estimer la position trophique, alors que le ratio des isotopes du carbone, qui change peu quand le carbone est transféré dans la chaîne alimentaire, peut typiquement être utilisé pour évaluer les dernières sources de carbone exploitées par un organisme, quand la signature isotopique des sources est différente.

La position trophique (TP) d'un individu peut donc être déterminée à partir de sa signature isotopique et de celle de(s) référence(s) utilisée(s) (appelées lignes

de base). Nous avons choisi deux espèces de bivalves échantillonnées comme lignes isotopiques de base car elles ont des positions trophiques connues dans le réseau (consommateurs primaires, TP = 2) et sont caractéristiques de deux sources distinctes de carbone, avec par conséquent des signatures en $\delta^{13}\text{C}$ différentes : les grosses corbicules se nourrissent profondément dans le sédiment et sont donc caractéristiques d'une source de carbone détritique (environ - 30 ‰) alors que les *pisidium* se nourrissent à la surface du sédiment et caractérisent une source de carbone plus autochtone (environ - 20 ‰).

La figure 13.7 présente les données isotopiques des poissons des trois sites étudiés sous forme d'un « dual graphe », qui représente la variation en position trophique en fonction des données en $\delta^{13}\text{C}$. Cette représentation reporte les différences entre individus et entre espèces non seulement des niveaux trophiques (selon l'axe des ordonnées) mais aussi selon l'exploitation de la source de carbone (selon l'axe des abscisses) : plus les individus sont décalés vers la gauche du graphique, plus ils exploitent du carbone d'origine détritique.

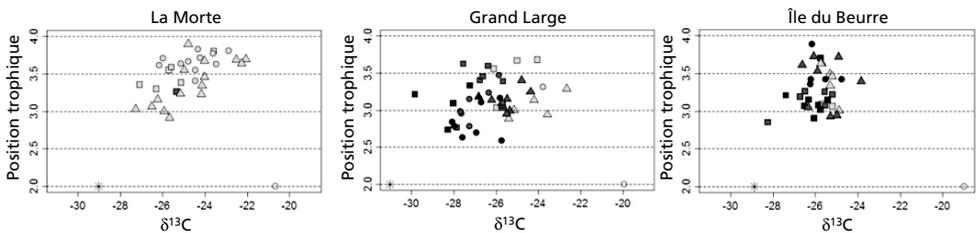


Figure 13.7. Dual graphe de la position trophique en fonction de la signature isotopique en carbone sur chaque site, pour chaque espèce.

Avec la brème (■), le barbeau (●) et le chevaine (▲) et les 2 lignes de base isotopiques : grosses corbicules (*) et *pisidium* (○). Le gradient de couleur pour chaque individu représente son niveau de contamination (somme des 7 PCB_i) : en gris clair les individus en dessous du seuil sanitaire (< 154 ng.g⁻¹ PF), en gris modéré les individus « moyennement » contaminés (entre 154 et 500 ng.g⁻¹ PF) et en noir les individus très contaminés (> 500 ng.g⁻¹ PF).

Aucun gradient de contamination ne peut être observé suivant la position trophique, en revanche, on peut observer un gradient au Grand Large selon $\delta^{13}\text{C}$, avec des individus d'autant plus contaminés qu'ils ont des signatures en carbone plus faibles.

De manière à affiner l'étude des réseaux trophiques de chaque espèce et d'étudier la contribution de chaque source de carbone (détritique et autochtone) à la signature isotopique de chaque espèce ou de chaque individu, nous avons utilisé des modèles de mélange (SIAR – *Stable isotope Analysis in R* – développé par Parnell *et al.*, 2010 : <http://cran.r-project.org/web/packages/siar/index.html>). Ces modèles s'appuient sur la décomposition de la signature isotopique en carbone et en azote en fonction des deux sources possibles identifiées, ici corbicules et *pisidium*. Ces modèles ont d'abord été appliqués au niveau spécifique de manière à étudier la variabilité interspécifique d'exploitation de l'habitat. Les résultats montrent seulement deux types de distributions différents parmi les 9 jeux de

données testés (3 espèces sur 3 sites – figure 13.8). Le premier profil (A), obtenu pour la brème et le barbeau à La Morte et à l'île du Beurre, montre une exploitation similaire des 2 sources de carbone, et donc des 2 types d'habitats qu'elles représentent. Le second profil (B), obtenu pour le chevaïne sur les 3 sites et les 3 espèces au Grand Large, montre une exploitation préférentielle du carbone d'origine autochtone. Ces résultats sont en accord avec le caractère opportuniste du chevaïne, qui a donc tendance à manger les proies plus facilement accessibles que celles enfouies dans le sédiment. Pour ce qui est de la brème et du barbeau, les résultats obtenus au Grand Large sont à mettre en parallèle avec les résultats de l'inventaire faunistique montrant une très forte disponibilité des proies sur ce site, ne contraignant donc pas ces espèces à « fouiller » le sédiment pour se nourrir.

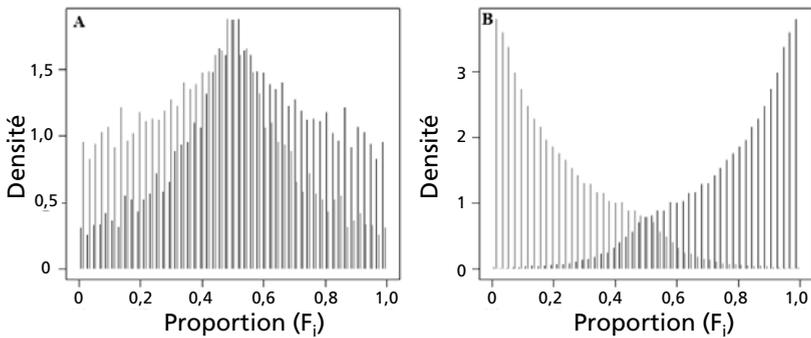


Figure 13.8. Distributions de probabilité de la proportion de carbone d'origine détritique (en clair) et autochtone (en noir) dans le profil isotopique de chaque espèce obtenues par les modèles de mélange.

(A) Profil obtenu pour la brème et le barbeau à La Morte (amont) et l'île du Beurre (aval). (B) Profil obtenu pour le chevaïne sur les 3 sites et pour les 3 espèces au Grand Large.

Les modèles de mélange ont également été utilisés au niveau individuel de manière à étudier la variabilité intraspécifique d'exploitation de l'habitat et à faire le lien avec les niveaux de contamination individuels observés. Les résultats montrent que la concentration en PCB_i augmente avec l'exploitation du carbone d'origine détritique, surtout au Grand Large (figure 13.9). Ils confirment que le compartiment sédimentaire joue un rôle important dans la contamination de ces espèces de poissons.

Afin d'étudier les facteurs de contrôle susceptibles d'expliquer tant la variabilité inter- que intraspécifique de contamination, un modèle de régression log-linéaire a été développé, visant à décrire la concentration en PCB dans les poissons (ΣPCB_i , abrégé PCB_p) en fonction de toutes les variables explicatives disponibles : la taille (L) en cm, corrélée au poids et à l'âge, la position trophique (TP), le pourcentage de matière grasse (MG), le sexe (S), le pourcentage de carbone détritique exploité (dC) et le site. L'effet site est représenté par la concentration maximale en PCB à laquelle les poissons ont été exposés durant leur vie (ΣPCB_i , abrégé PCB_{sed} en ng g^{-1} PS).

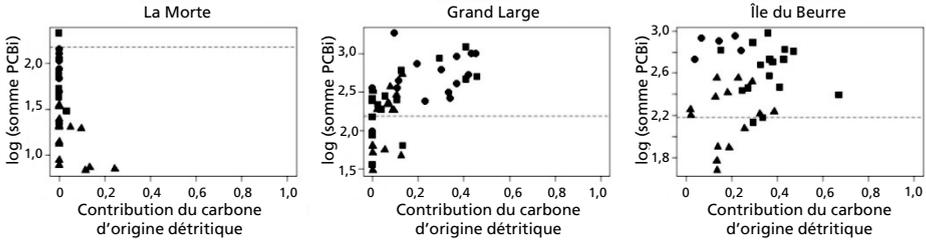


Figure 13.9. Relation entre la proportion de carbone détritique exploité par chaque individu et son niveau de contamination.

Concentrations (en log à base 10) pour la brème (■), le barbeau (●) et le chevaine (▲).

Le « meilleur » modèle (équation 1) a été obtenu avec seulement trois variables significatives, qui expliquent à elles seules 78 % de la variabilité de contamination des poissons : la taille (cm), le pourcentage de carbone détritique exploité et la concentration maximale dans les sédiments à laquelle les individus ont été exposés durant leur vie (ng.g^{-1} PS).

$$\begin{aligned} \log_{10}(PCB_p) = & -0,569(\pm 0,167) + 0,036(\pm 0,003) \times L \\ & - 0,779(\pm 0,188) \times dC + 0,591(\pm 0,065) \times \log_{10}(PCB_{\text{sed}}) \end{aligned} \quad (1)$$

Les prédictions obtenues avec ce modèle statistique et la comparaison avec les observations sont représentées sur la figure 13.10. Cette représentation permet de vérifier que le modèle est suffisamment calibré au jeu de données et de voir comment il peut être utilisé en évaluation du risque. En effet, les points dans le quadrant en haut à gauche reflètent une surestimation du niveau de contamination car le modèle prédit des concentrations au-dessus du seuil sanitaire alors qu'on les observe en dessous. En revanche, dans une perspective d'évaluation du risque, le cas le plus problématique est pour les individus en bas à droite de la figure, car dans ce quadrant le risque est sous-estimé (on prédit le niveau de contamination en dessous du seuil alors qu'il est observé au-dessus). Cependant, seulement 3 individus (sur 113) sont concernés, et pour 2 d'entre eux, le seuil sanitaire est compris dans l'intervalle d'incertitude lié à la mesure.

Ni le taux de lipides, ni le sexe, ni la position trophique ne sont ici déterminants dans la prédiction de la concentration en PCBi, alors que ces facteurs sont souvent cités pour être des facteurs expliquant les niveaux de contamination des poissons (Borga *et al.*, 2004). Le fait de ne pas observer d'effet de la position trophique peut s'expliquer parce que le barbeau, la brème et le chevaine ont des positions trophiques voisines. On ne peut observer au plus qu'un niveau trophique d'écart (voir figure 13.7). On peut donc raisonnablement supposer que cette amplitude n'est pas assez grande pour pouvoir observer un effet de la position trophique sur les niveaux de contamination. L'intégration d'une espèce carnivore dans cette étude aurait peut-être pu améliorer les conclusions sur cet aspect, à condition que ses proies aient une diète liée au carbone d'origine détritique.

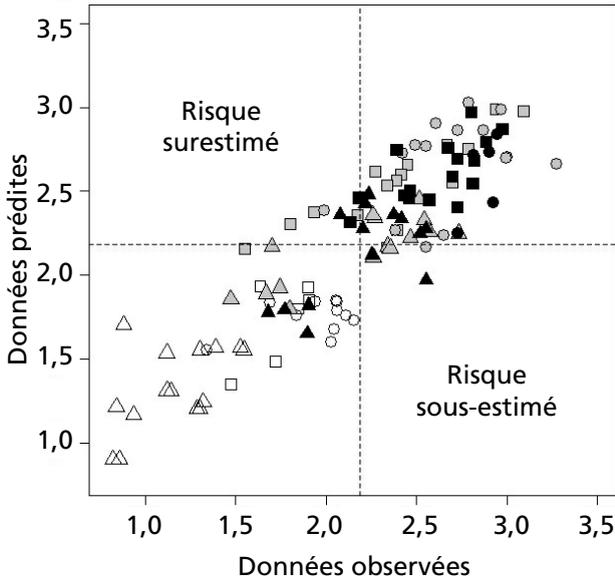


Figure 13.10. Relation entre les concentrations en PCB prédites par le modèle log-linéaire et les observations.

Concentrations (en log à base 10) pour la brème (■), le barbeau (●) et le chevaine (▲) à La Morte (blanc), au Grand Large (gris) et à l'île du Beurre (noir). La ligne pointillée représente la concentration en PCB (ΣPCBi) équivalente au seuil sanitaire pour la consommation des poissons.

Le modèle log-linéaire obtenu ci-dessus fait le lien entre concentration en PCB dans les poissons et les sédiments. Il peut être utilisé de manière inversée pour dériver une concentration maximale en PCB_i dans les sédiments compatible avec le seuil réglementaire de consommation des poissons, en fixant PCB_p à $154 \text{ ng.g}^{-1} \text{ PF}$, valeur équivalente au seuil réglementaire (Babut *et al.*, 2009). Cette valeur a été calculée pour chaque individu de chaque espèce, tous sites confondus. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau 13.II. On observe une grande variabilité de la concentration dans le sédiment compatible avec une contamination des individus inférieure au seuil réglementaire.

En d'autres termes, 75 % des poissons sont prédits être conformes au seuil réglementaire si la concentration en PCB (exprimée en ΣPCBi) dans le sédiment

Tableau 13.II. Distribution du seuil sédiment ($\text{ng.g}^{-1} \text{ PS}$) rétrocalculé à partir du modèle log-linéaire.

	Moyenne	Médiane	1 ^{er} quartile	10 ^e centile
Toutes espèces confondues ($n = 113$)	67,7	31,7	12,7	5,9
Brème ($n = 39$)	24,7	16,3	7,6	4,7
Chevaine ($n = 43$)	137	78,1	42,6	29,8
Barbeau ($n = 31$)	25,6	22,5	7,1	4,3

n'excède pas $12,7 \text{ ng.g}^{-1}$ PS. Pour atteindre 90 % des poissons conformes, il faut que cette concentration soit inférieure ou égale à $5,9 \text{ ng.g}^{-1}$ PS.

La compréhension des principaux facteurs de contrôle de la contamination des trois espèces de poissons étudiées (modèle log-linéaire, voir équation 1) associée à la connaissance des tendances temporelles de la contamination des sédiments (voir paragraphe 2.2 ci-avant) permet d'élucider la question des tendances temporelles de la contamination de ces espèces, qui n'avait pu être tranchée sur la base des analyses. En effet, sauf à admettre des changements importants de comportement trophique, la tendance générale de la contamination pour ces trois espèces est essentiellement déterminée par la tendance dans les sédiments. Ainsi, il apparaît que les niveaux de concentration en PCB des barbeaux, chevaines et brèmes à l'amont de Lyon (canal de Miribel et surtout de Jonage) sont en diminution, plus récemment dans le cas du Grand Large/canal de Jonage que dans celui du canal de Miribel. Ceci paraît cohérent avec les constats de contamination dressés à partir de 2005, qui ont porté principalement sur des poissons âgés de plusieurs années, et donc ayant été exposés aux concentrations maximales dans les sédiments de ce secteur. En revanche, à l'aval de Lyon (île du Beurre), et bien que la concentration des PCB dans les sédiments ait baissé par rapport à la décennie 1990-1999, la tendance actuelle de la contamination des sédiments n'est pas à la diminution. On ne peut donc pas escompter de baisse des concentrations dans les poissons dans ce secteur.

4. ■ Flux des PCB à la mer

Le Golfe du Lion est un habitat marin côtier soumis à une forte pression anthropique. Le Rhône constitue un forçage majeur de cette région et une voie d'entrée importante de contaminants chimiques dans le Golfe du Lion ([Radakovitch et al., 2008](#)). L'environnement marin est un milieu récepteur où les contaminants chimiques persistants, tels que les PCB, aboutissent et sont désormais imbriqués dans les cycles biogéochimiques de ces écosystèmes. Dans le Golfe du Lion, les connaissances acquises indiquent une contamination persistante, relativement élevée des ressources halieutiques et de l'ensemble de leurs réseaux trophiques par les PCB et par le mercure ([Bodiguel et al., 2008](#) ; [Cossa et al., 2009](#) ; [Harmelin-Vivien et al., 2012](#)).

Une étude récente, réalisée en 2009-2010 avec l'appui de l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse ([Tronczynski et al., 2012](#)), permet d'apprécier les quantités de PCB rejetés par le Rhône dans le Golfe du Lion. Quelques éléments de cette étude sont brièvement exposés ci-après.

Pour évaluer les flux annuels des contaminants organiques apportés à la Méditerranée par le Rhône, des campagnes de prélèvement d'eau et des matières en suspension (MES) dans la partie en aval du fleuve ont été réalisées entre mars 2009 et mars 2010. Les prélèvements ont eu lieu à Arles, à la station SORA (IRSN). Une fréquence bimensuelle hors des périodes de crues, et plus fréquente pendant les périodes de crues, a été adoptée. Les prélèvements réalisés sur une année

hydrique entière intègrent ainsi diverses conditions hydrologiques et physico-chimiques pouvant influencer les apports du fleuve à la mer. De nombreuses méthodes d'estimation de flux fluviaux ont été formulées du fait de la grande variabilité des relations existantes entre les flux des constituants étudiés et les régimes hydrologiques et hydro-sédimentaires dominants. De plus, la fréquence d'échantillonnage adoptée limite généralement la description de ces relations et, par conséquent, doit être intégrée dans les modèles statistiques d'estimation des flux (Preston *et al.*, 1989).

Les flux annuels de PCB particuliers (associés aux matières en suspension) exportés par le Rhône vers le Golfe du Lion ont été estimés par une méthode de régression linéaire en $\log(\text{flux}) - \log(\text{débit solide } Q_s)$, et les flux annuels de PCB dissous, par la méthode de pondération des flux journaliers par les débits (Meybeck et Ragu, 1996). Pour ces estimations, nous avons utilisé les concentrations en contaminants dissous et particuliers, déterminées deux fois par mois, et les données journalières de débit et de concentration en MES (MEDDE : www.vigicrues.gouv.fr/) (Tronczynski *et al.*, 2012).

Le flux estimé pour la période 2009-2010 et transporté dans le Golfe du Lion par le Rhône, s'élève à 160 kg.an^{-1} en PCB totaux (somme des flux dissous et particuliers, tableau 13.III). Une comparaison des apports en PCB particuliers avec la période 1994-1995, qui a fait l'objet d'une précédente étude (Tronczynski et Héas-Moisan, 1996), révèle une forte différence entre ces deux périodes. Les flux de sept congénères indicateurs (ΣPCBi_7) associés aux matières en suspension sont nettement plus faibles en 2009-2010.

Cette étude montre toutefois que les concentrations en PCB dans les matières en suspension n'ont pas diminué au cours des 15 dernières années. Les concentrations moyennes de la somme des sept congénères indicateurs sont de $39,5 \mu\text{g.kg}^{-1}$ ($n = 34$) et $36,1 \mu\text{g.kg}^{-1}$ ($n = 27$) en 1994-1995 et 2009-2010 respectivement (Tronczynski *et al.*, 2012). Ce dernier résultat est à souligner car il semble indiquer la présence d'un important stock de PCB dans les sédiments et/ou dans les

Tableau 13.III. Estimation des flux solides, liquides et de PCB dissous et particuliers pour les deux suivis de 2009-2010 et de 1994-1995 (Tronczynski et Héas-Moisan, 1996). ΣPCBi_7 indique le flux pour la somme des sept congénères indicateurs et ΣPCB indique le flux pour la somme de tous les congénères déterminés ; le flux en PCB dissous n'a pas été déterminé en 1994-1995.

	Flux eau	Flux MES	Flux particulaire		Flux dissous		Flux totaux
	Q_l $\text{km}^3.\text{an}^{-1}$	Flux Q_s Mt.an^{-1}	ΣPCBi_7 kg.an^{-1}	ΣPCB kg.an^{-1}	ΣPCBi_7 kg.an^{-1}	ΣPCB kg.an^{-1}	ΣPCB kg.an^{-1}
2009-2010	50,4	2,7	87,3	139,2	9,3	20,3	159,5
1994-1995	80,8	15,8	290,0	–	–	–	–
Rapport 1994/1995-2009/2010	1,6	5,9	3,3	–	–	–	–

sols du bassin versant du Rhône. La différence des apports en PCB particuliers entre les deux périodes semble surtout liée à la différence significative entre les apports en eau douce et en matières en suspension. En effet, le débit cumulé et le flux particulaire étaient respectivement 1,6 et 5,9 fois supérieurs en 1994-1995 (voir tableau 13.III). Ceci implique des variations interannuelles considérables des charges polluantes du Rhône exportées vers le Golfe du Lion. Il est également à noter que la majorité des PCB totaux est transportée sous une forme associée aux matières en suspension (MES). Le régime hydro-sédimentaire joue un rôle prépondérant dans les apports des constituants particuliers et ce sont ainsi les crues qui contribuent pour l'essentiel à l'apport annuel en PCB associés aux MES. Cependant, une fraction non négligeable (environ 13 %) de PCB totaux est transportée sous la forme dissoute (Tronczynski *et al.*, 2012). Cette fraction des apports est rarement estimée pour les composés hydrophobes tels que les PCB. Néanmoins, cette fraction des contaminants organiques est aussi disponible pour les organismes, et peut être bioaccumulée dans les réseaux trophiques du Golfe du Lion.

Les flux du Rhône en PCB sont comparés aux flux sortants en mer des quelques autres fleuves au monde, sous forme de flux total (figure 13.11 page suivante) (A) et de flux rapporté à la surface du bassin versant (B). Ces apports, présentés sur une échelle annuelle, semblent en effet être proportionnels aux débits de ces fleuves ou encore liés à l'importance de la superficie de leurs bassins versants. Ainsi, même les grands fleuves arctiques, représentant les bassins versants éloignés de grands centres urbains, faiblement peuplés, apportent à la mer des quantités non négligeables en PCB. Les apports normalisés par rapport à la surface de bassins versants, reflètent une contamination plus importante du bassin versant du Rhône et d'autres fleuves en Europe et en Amérique du Nord. Il apparaît ainsi que malgré les réglementations instaurées depuis plus de deux décennies, la contamination de l'environnement par les PCB persiste, et elle est plus importante dans les anciens pays producteurs et consommateurs (Breivik *et al.*, 2007).

Les résultats de cette étude confirment que les flux fluviaux des PCB constituent une importante source d'apports au Golfe du Lion et que la voie fluviale est un mode essentiel de dispersion des PCB dans l'environnement côtier français. Un observatoire pérenne des apports du Rhône en contaminants permettrait de préciser les variations interannuelles de ces flux et de bâtir des scénarii d'évolution de la contamination en PCB des écosystèmes marins dans le Golfe du Lion.

5. ■ Perspectives en matière de gestion

Cette étude de cas sur les PCB du Rhône nous paraît révélatrice des enjeux et difficultés de la gestion de l'environnement et des risques associés, notamment dans une perspective à moyen et long termes, qui sont les plus importantes en raison de l'inertie des écosystèmes et de leurs délais de réponse. Sans prétendre à l'exhaustivité, nous souhaitons ici en relever quelques-uns qui ressortent de la période récente.

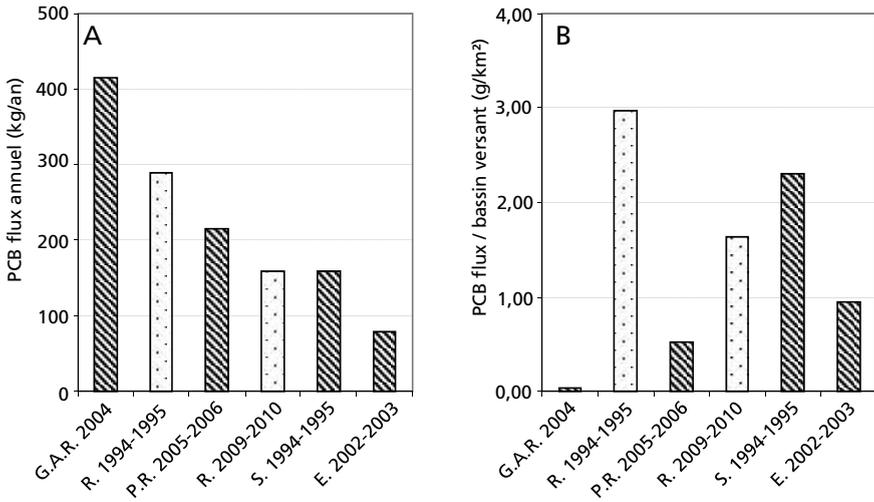


Figure 13.11. A. Flux annuels (en $\text{kg}\cdot\text{an}^{-1}$) : Rhône (R. 1994-1995 et R. 2009-2010) ; grands fleuves arctiques (G.A.R. 2004) (Carrizo et Gustafsson, 2011) ; rivière Pearl (P.R. 2005-2006, Chine) (Guan *et al.*, 2009) ; rivière Susquehanna (S. 1994-1995, États-Unis) (Foster *et al.*, 2000) ; fleuve Ebro (E. 2002-2003, Espagne) (Gómez-Gutiérrez *et al.*, 2006). B. Flux normalisés (en $\text{g}\cdot\text{km}^{-2}$) par rapport à la superficie des bassins versants.

Un premier enjeu se situe au niveau du diagnostic et de sa complétude : alors que l'épisode de contamination révélé à la fin de la décennie 1980 à l'amont de Lyon a eu un impact fort en termes de gestion des risques, avec l'établissement pour la première fois en France d'une valeur guide pour les PCB totaux dans l'alimentation, l'extension spatiale de la contamination n'a pas été évaluée. La surveillance mise en place à l'époque, avec des moyens extrêmement réduits, paraît avec le recul avoir été insuffisante et assez mal ciblée en termes d'espèces et de zone à surveiller (par exemple canal de Miribel plutôt que les deux bras du Rhône). Il est essentiel, dès le début de cas de contamination, de poser un diagnostic étendu et complet, et d'établir un modèle conceptuel et spatial de la distribution du ou des contaminants dans l'écosystème. Il s'agit de comprendre quels compartiments sont affectés, et comment ils interagissent entre eux, à l'échelle de sites ou de tronçons et à celle du bassin versant. C'est ce qui a été mis en chantier dans le Rhône, et qui a été partiellement présenté dans ce chapitre : les recherches ne sont pas terminées et il reste des choses à comprendre, notamment le rôle des chasses sédimentaires, et des données à interpréter.

Un deuxième enjeu se situe clairement au niveau de l'identification des sources de contamination, qui, dans le cas des PCB du Rhône, ne sont pas complètement élucidées. Il semble évident que les sources endogènes (stocks de PCB dans les sédiments du Rhône et de ses affluents) jouent un rôle important, mais il est tout aussi évident que des sources exogènes (sols de sites contaminés, agglomérations...) contribuent encore à la contamination du système Rhône. Sans une

hiérarchisation des sources et leur localisation, l'élaboration d'une stratégie de gestion appropriée restera hasardeuse et probablement peu efficace.

Le troisième enjeu est d'établir un référentiel qui puisse servir à la prise de décisions. C'est une demande quasi immédiate des autorités, voire du public, en cas de crise environnementale : que des seuils soient proposés afin de séparer les situations saines des situations à risque. En introduisant le terme de référentiel, nous voulons cependant suggérer que la question est plus complexe et qu'il ne suffit pas de proposer une ou deux valeurs seuils, assorties d'un certain nombre de considérations essentiellement techniques, telles que les modalités d'échantillonnage ou la gestion des erreurs. L'application de seuils décisionnels relève d'une approche nécessairement réductrice, où la complexité des situations est ramenée à deux ou trois conditions. La réalité est cependant plus nuancée, d'autant plus que l'environnement, notamment aquatique, est l'objet d'usages ou de projets multiples, et souvent en tensions les uns avec les autres, voire en conflit. Par exemple, faudrait-il interdire l'effacement de digues, qui permettrait un meilleur fonctionnement écologique du système et améliorerait la prévention des crues, parce qu'un seuil de contamination des sédiments serait dépassé ? Il y a des risques, ou des coûts écologiques, ainsi que des gains (bénéfices), pour les différentes options envisageables dans un cas comme celui-là, qu'une simple approche par seuils ne permet pas d'appréhender. En revanche, les seuils peuvent avoir une place dans un référentiel visant à appréhender les usages conflictuels et les impacts des options de gestion envisageables.

Remerciements

Les données sur la contamination des poissons et des sédiments par les PCB citées dans ce chapitre n'auraient pu être acquises sans les contributions d'Annie Roy-Peretti (Irstea, Maly) et Gwenaëlle Roux (ENTPE). L'étude qui a permis l'acquisition de ces données et leur interprétation a été financée par l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse, les Régions Rhône-Alpes et Provence-Alpes-Côte d'Azur, et la Compagnie nationale du Rhône dans le cadre du « Plan Rhône », avec une contribution de l'ONEMA. L'étude des flux de PCB à la mer est soutenue par l'Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse.

Références bibliographiques

- Afssa (2005). Avis de l'Agence française de sécurité sanitaire des aliments relatif à une demande d'appui scientifique et technique relative au risque sanitaire lié à la consommation de poissons pêchés dans le département du Rhône (zone du canal de Jonage), Afssa, Maisons-Alfort.
- Afssa (2008a). Appui scientifique et technique de l'Agence française de sécurité sanitaire des aliments relative au plan

- d'échantillonnage national des PCB dans les poissons de rivière : proposition de méthodologie. Saisine n° 2008-SA-0019, Agence française de sécurité sanitaire des aliments (Afssa), Maisons-Alfort.
- Afssa (2008b). Avis relatif à l'interprétation des résultats d'analyse du plan d'échantillonnage mis en place dans le cadre de la pollution en PCB des poissons du Rhône. Saisine n° 2007-SA-0239, Agence française de sécurité sanitaire des aliments, Maisons-Alfort.
- Afssa (2009). Appui scientifique et technique de l'Agence française de sécurité sanitaire des aliments relatif à l'interprétation des données du plan national PCB 2008 dans les poissons de rivière et à la proposition du plan d'échantillonnage 2009. Agence française de sécurité sanitaire des aliments (Afssa), Maisons-Alfort.
- Alcock RE, Johnston AE, McGrath SP, Berrow ML, Jones KC (1993). Long-term changes in the polychlorinated biphenyl (PCB) content of United Kingdom soils. *Environ. Sci. Technol.*, **27** : 1918-1923.
- ARALEP (2003). Suivi hydrobiologique du Rhône au niveau de la centrale nucléaire de Saint-Alban – Saint-Maurice l'Exil. Synthèse 1985-2001, ARALEP/EDF, Villeurbanne (F).
- Bábek O, Famera M, Hilscherová K, Kalvoda J, Dobrovolný P, Sedláček J, Machát J, Holoubek I (2011). Geochemical traces of flood layers in the fluvial sedimentary archive; Implications for contamination history analyses. *Catena*, **87** : 281-290.
- Bábek O, Hilscherová K, Nehyba S, Zeman J, Famera M, Francu J, Holoubek I, Machát J, Klánová J (2008). Contamination history of suspended river sediments accumulated in oxbow lakes over the last 25 years, Morava River (Danube catchment area), Czech Republic. *J. Soils Sediments*, **8** : 165-176.
- Babut M, Miège C (2007). Contamination des poissons et des sédiments du Rhône par les polychlorobiphényles – Synthèse des données disponibles, Cemagref, Lyon.
- Babut M, Miegé C, Villeneuve B, Abarnou A, Duchemin J, Marchand P, Narbonne JF (2009). Correlations between dioxin-like and indicators PCBs: potential consequences for environmental studies involving fish or sediment. *Environ. Pollut.*, **157** : 3451-3456.
- Bodiguel X, Tronczynski J, Loizeau V, Munsch C, Guiot N, Le Guellec AM, Olivier N, Rounsard F, Mellon C (2008). Classical and novel organohalogen compounds (PCBs and PBDEs) in hake (*M. merluccius*, L.) from the Mediterranean and Atlantic coasts (France). *WIT Transactions on Ecology and the Environment*, 157-166.
- Borga K, Fisk AT, Hoekstra PF, Muir DCG (2004). Biological and chemical factors of importance in the bioaccumulation and trophic transfer of persistent organochlorine contaminants in arctic marine food webs. *Environ. Toxicol. Chem.*, **23** : 2367-2385.
- Breivik K, Sweetman A, Pacyna JM, Jones KC (2002). Towards a global historical emission inventory for selected PCB congeners – A mass balance approach: 2. Emissions. *Sci. Total Environ.*, **290** : 199-224.
- Breivik K, Sweetman A, Pacyna JM, Jones KC (2007). Towards a global historical emission inventory for selected PCB congeners – A mass balance approach. 3. An update. *Sci. Total Environ.*, **377** : 296-307.
- Carrizo D, Gustafsson O (2011). Pan-Arctic river fluxes of polychlorinated biphenyls. *Environ. Sci. Technol.*, **45** : 8377-8384.
- CARSO (2000). Étude des PCB et des métaux sur les poissons du Haut-Rhône – Synthèse des campagnes 1988, 1989, 1991 et 1999. Report n° CAR/99-1034, Service de la Navigation Rhône Saône – Mission Environnement, Lyon.
- CE (2006a). Directive 2006/13/CE de la Commission du 3 février 2006 modifiant les annexes I et II de la directive 2002/32/CE du Parlement européen et du Conseil sur les substances indésirables dans les aliments pour animaux, en ce qui concerne les dioxines et les PCB de type dioxine. *Journal Officiel de l'Union européenne*, **32/44-32/53**.
- CE (2006b). Règlement (CE) n° 1881/2006 de la Commission du 19 décembre 2006 portant fixation de teneurs maximales pour certains contaminants dans les denrées alimentaires. *Journal officiel de l'Union européenne*.
- Cossa D, Harmelin-Vivien M, Mellon-Duval C, Loizeau V (2009). Bioamplification of methylmercury in two trophically dissimilar marine ecosystems. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **73** : A245.

- Desmet M, Mourier B, Mahler B, van Metre P, Roux G, Persat H, Lefèvre I, Peretti A, Chapron E, Simonneau A, Miège C, Babut M (2012). Spatial and Temporal Trends in PCBs in Sediment along the Lower Rhône River, France. *Sci. Total Environ.*, **433** : 189-197.
- Dufour E, Gerdeaux D (2001). Apports des isotopes stables ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$, $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$, $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$, $^{36}\text{S}/^{34}\text{S}$, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) aux études écologiques sur les poissons. *Cybius*, **25** : 369-382.
- Eisenreich SJ, Capel PD, Robbins JA, Bourbonniere RA (1989). Accumulation and diagenesis of chlorinated hydrocarbons in lacustrine sediments. *Environ. Sci. Technol.*, **23** : 1116-1126.
- Foster GD, Lippa KA, Miller CV (2000). Seasonal concentrations of organic contaminants at the fall line of the Susquehanna River basin and estimated fluxes to northern Chesapeake Bay, USA. *Environ. Toxicol. Chem.*, **19** : 992-1001.
- French TD, Campbell LM, Jackson DA, Casselman JM, Scheider WA, Hayton A (2006). Long-term changes in legacy trace organic contaminants and mercury in Lake Ontario salmon in relation to source controls, trophodynamics, and climatic variability. *Limnol. Oceanogr.*, **51** : 2794-2807.
- Gómez-Gutiérrez AI, Jover E, Bodineau L, Albaigés J, Bayona JM (2006). Organic contaminant loads into the Western Mediterranean Sea: Estimate of Ebro River inputs. *Chemosphere*, **65** : 224-236.
- Guan YF, Wang JZ, Ni HG, Zeng EY (2009). Organochlorine pesticides and polychlorinated biphenyls in riverine runoff of the Pearl River Delta, China: Assessment of mass loading, input source and environmental fate. *Environ. Pollut.*, **157** : 618-624.
- Harmelin-Vivien M, Bodiguel X, Charmasson S, Loizeau V, Mellon-Duval C, Tronczyński J, Cossa D (2012). Differential biomagnification of PCB, PBDE, Hg and Radiocesium in the food web of the European hake from the NW Mediterranean. *Mar. Pollut. Bull.*, **64** : 974-983.
- Hickey JP, Batterman SA, Chernyak SM (2006). Trends of chlorinated organic contaminants in Great Lakes trout and walleye from 1970 to 1998. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.*, **50** : 97-110.
- Lopes C, Perga ME, Peretti A, Roger M-C, Persat H, Babut M (2011). Is PCBs concentration variability between and within freshwater fish species explained by their contamination pathways? *Chemosphere*, **85** : 502-508.
- Mai B, Zeng EY, Luo X, Yang Q, Zhang G, Li X, Sheng G, Fu J (2005). Abundances, depositional fluxes, and homologue patterns of polychlorinated biphenyls in dated sediment cores from the Pearl River Delta, China. *Environ. Sci. Technol.*, **39** : 49-56.
- Meunier P (2008). Rapport d'information sur le Rhône et les PCB : une pollution au long cours. In: Assemblée nationale – Commission des Affaires économiques, Paris.
- Meybeck M, Ragu A (1996). River Discharges to the Oceans. An assessment of suspended solids, major ions, and nutrients. Environment Information and Assessments, UNEP, Nairobi.
- Monod G, Bouvet Y, Devaux A, Lorgue G (1990). Les difficultés de l'évaluation des risques liés à une pollution chronique du milieu aquatique par les polychlorobiphényles (PCBs). Un cas sur le Haut-Rhône. *Le Courrier de la cellule environnement*. INRA.
- Monod G, Devaux A, Riviere JL (1988). Effects of chemical pollution on the activities of hepatic xenobiotic metabolizing enzymes in fish from the river Rhône. *Sci. Total Environ.*, **73** : 189-201.
- Mourier B, Desmet M, Van Metre PC, Mahler BJ, Perrodin Y, Roux G, Bedell J-P, Lefèvre I, Babut M (2014). Historical records, sources and spatial trends of PCBs along the Rhône River (France). *Sci. Tot. Environ.*, **476-477** : 568-576.
- Olivier J-M, Dole-Olivier M-J, Carrel G, Malard F, Lamouroux N, Bravard J-P (2009). The Rhône River Basin. In: Tockner K, Uehlinger U, Robinson CT. *Rivers of Europe*. Academic Press, London, 247-295.
- Parnell A, Inger R, Bearhop S, Jackson AL (2010). Source partitioning Using Stable Isotopes: Coping with Too Much Variation. *PLoS ONE*, **5** : e9672.

- Persat H, Olivier JM, Bravard JP (1995). Stream and riparian management of large braided Mid-European rivers, and consequences for fish. In: Armantrout NB. *Condition of the World's Aquatic Habitats – Proceedings of the World Fisheries Congress, Theme 1*. Oxford and IBH Publishing Co. Pvt. Ltd., New Delhi (In), 139-169.
- Post DM (2002). Using stable isotopes to estimate trophic position: Models, methods, and assumptions. *Ecology*, **83** : 703-718.
- Preston SD, Bierman Jr VJ, Silliman SE (1989). An evaluation of methods for the estimation of tributary mass loads. *Wat. Resour. Res.*, **25** : 1379-1389.
- Radakovitch O, Roussiez V, Ollivier P, Ludwig W, Grenz C, Probst JL (2008). Input of particulate heavy metals from rivers and associated sedimentary deposits on the Gulf of Lion continental shelf. *Est., Coast. Shelf Sci.*, **77** : 285-295.
- SIE. Base de données micropolluants du programme PCB. In: EauFrance (éd). *Système d'informations sur l'eau du bassin Rhône-Méditerranée*.
- Tronczynski J, Héas-Moisin K (1996). Évaluation des charges polluantes du Rhône à la Méditerranée – Contaminants organiques organoazotés et organochlorés dissous et particulaires dans le Rhône. Ifremer – Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse.
- Tronczynski J, Tixier C, Cadiou J-F, Bely N, Héas-Moisin K, Castelle S, Migon C, Dufour A, Merieau R (2012). Apports rhodaniens et suivi atmosphérique des contaminants organiques persistants (PCB, PBDE, HAP, PCDD/F) dans le Golfe du Lion (2009-2010). RST-RBE/BE/LBCO/2012-04, Ifremer.
- Van Metre PC, Callender E, Fuller CC (1997). Historical trends in organochlorine compounds in river basins identified using sediment cores from reservoirs. *Environ. Sci. Technol.*, **31** : 2339-2344.
- Van Metre PC, Mahler BJ (2005). Trends in hydrophobic organic contaminants in urban and reference lake sediments across the United States, 1970-2001. *Environ. Sci. Technol.*, **39** : 5567-5574.
- Verneaux J (1977). Biotypologie de l'écosystème « eau courante ». Détermination approchée de l'appartenance biotypologique d'un peuplement ichtyologique. *CR Acad. Sc.*, Paris, 675-678.
- Vieille-Blanchard M (2007). Ressources trophiques utilisées par deux espèces de poissons du Rhône, Université de Lille 2 – Master 2 Toxicologie environnementale et Industrielle, Lyon.
- Wong CS, Capel PD, Nowell LH (2001). National-scale, field-based evaluation of the biota – Sediment accumulation factor model. *Environ. Sci. Technol.*, **35** : 1709-1715.
- Zennegg M, Kohler M, Hartmann PC, Sturm M, Gujer E, Schmid P, Gerecke AC, Heeb NV, Kohler HPE, Giger W (2007). The historical record of PCB and PCDD/F deposition at Greifensee, a lake of the Swiss plateau, between 1848 and 1999. *Chemosphere*, **67** : 1754-1761.