



HAL
open science

Recommandations pour l'estimation des tendances temporelles et des distributions spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments

A. Yari, Aymeric Dabrin, Marina Coquery

► To cite this version:

A. Yari, Aymeric Dabrin, Marina Coquery. Recommandations pour l'estimation des tendances temporelles et des distributions spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments. [Rapport de recherche] irstea. 2017, pp.124. hal-02608356

HAL Id: hal-02608356

<https://hal.inrae.fr/hal-02608356>

Submitted on 16 May 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Recommandations pour l'estimation des tendances temporelles et des distributions spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments

A. Yari, A. Dabrin et M. Coquery

Juin 2018

Document final

En partenariat avec



Avec le soutien de

**AGENCE FRANÇAISE
POUR LA BIODIVERSITÉ**
MINISTÈRE DE L'ENVIRONNEMENT



Contexte de programmation et de réalisation

Ce rapport a été réalisé dans le cadre du programme scientifique et technique AQUAREF pour l'année 2017, dans le cadre du thème A « Recommandations, aide à la décision » et dans le cadre du partenariat Onema-Irstea 2016-2017, au titre de l'action 77, « Recommandation, aide à la décision ».

Auteurs :

Anice Yari
Irstea
anice.yari@irstea.fr

Aymeric Dabrin
Irstea
aymeric.dabrin@irstea.fr

Marina Coquery
Irstea
marina.coquery@irstea.fr

Vérification du document :

Mélanie Brun
Ifremer
melanie.brun@ifremer

Jean-Philippe Ghestem
BRGM
jp.ghestim@brgm.fr

Les correspondants

AFB : Pierre-François Staub, pierre-francois.staub@afbiodiversite.fr

Irstea : Marina Coquery, marina.coquery@irstea.fr

Référence du document : Anice Yari, Aymeric Dabrin, Marina Coquery - Recommandations pour l'estimation des tendances temporelles et des distributions spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments - Rapport AQUAREF 2017 - 124 p.

Droits d'usage :	<i>Accès libre</i>
Couverture géographique :	<i>International</i>
Niveau géographique :	<i>National</i>
Niveau de lecture :	<i>Professionnels, experts</i>
Nature de la ressource :	<i>Document</i>

1. CONTEXTE ET OBJECTIFS	15
1.1 Contexte réglementaire	15
1.2 Travaux disponibles sur l'évaluation des tendances	16
1.3 Objectifs de l'étude	16
2. COLLECTE DES DONNEES	17
3. PRESENTATION DE LA METHODOLOGIE D'ESTIMATION DES TENDANCES TEMPORELLES	19
3.1 Etude préliminaire des données.....	19
3.2 Normalisation des données.....	22
3.3 Etude statistique des tendances	24
3.4 Exploitation des résultats	25
3.5 Logigramme méthodologique	26
4. ETUDE DES TENDANCES TEMPORELLES SUR DES JEUX DE DONNEES REELLES.....	28
4.1 Estimation des tendances temporelles sur un jeu de données sur les sédiments	28
4.1.1 Caractérisation des données	28
4.1.2 Exploitation des données.....	30
4.2 Comparaison du suivi des contaminants dans les sédiments et dans les matières en suspension	49
4.2.1 Caractérisation des données	50
4.2.2 Exploitation des chroniques de données de sédiment et de MES.....	51
4.2.3 Exploitation de jeux de données MES à fréquence de prélèvement variable.....	67
4.3 Bilan sur l'étude des tendances temporelles.....	79
5. ETUDE DES DISTRIBUTIONS SPATIALES DES CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS .	82
5.1 Etude bibliographique	82
5.1.1 Introduction	82
5.1.2 Résultats de l'étude bibliographique	82
5.2 Exemples d'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments.....	89
5.2.1 Représentation graphique simple de la répartition spatiale de la contamination des sédiments.....	89
5.2.2 Etablissement d'un profil de contamination le long d'un linéaire de cours d'eau	90
5.2.3 Cartographie de la contamination des sédiments à l'échelle régionale.....	91
5.2.4 Suivi de l'évolution temporelle de la contamination des milieux aquatiques à l'échelle régionale	93
5.2.5 Exploitation de données sédiments issues de la surveillance à l'échelle d'un bassin.....	95
5.2.6 Analyse spatiale approfondie de la contamination métallique des sédiments à l'échelle d'un bassin.....	97
5.3 Eléments méthodologiques pour l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments	100
5.3.1 Caractérisation et étude préliminaire des données	101
5.3.2 Exploitation des données.....	102
5.3.3 Représentation des données	106

5.3.4 Tableau récapitulatif	109
6. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	112
7. BIBLIOGRAPHIE	114

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1 : Questionnaire adressé aux AE	118
Annexe 2 : Bilan des discussions réalisées avec les AE	123

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Principaux paramètres (ou cofacteurs) à envisager pour la normalisation des données de sédiment en milieu continental	22
Tableau 2 : Modèle de tableau de résultats de l'estimation des tendances temporelles ...	25
Tableau 3 : Stations AEAP et familles de substances retenues pour l'analyse des tendances des micropolluants dans les sédiments	29
Tableau 4 : Substances considérées lors de l'étude des données sur sédiment de l'AEAP .	29
Tableau 5 : Coefficients de détermination (R^2) obtenus par régression linéaire entre les concentrations en métal et les concentrations en fer dans les sédiments pour les 8 stations de l'AEAP retenues sur la période 1991-2015.	31
Tableau 6 : Disponibilité des résultats de mesure en métaux dans les sédiments sur la station de Noyelle-sur-Selle	32
Tableau 7 : Hypothèses sur les tendances des métaux dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle à partir des représentations graphiques temporelles sur la période 1991-2015.....	33
Tableau 8 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des concentrations en métaux dans les sédiments de la station Noyelle-sur-Selle pour comparer les chroniques normalisées ou non-normalisées (période étudiée : 1991-2015):	36
Tableau 9 : Impact de la normalisation par le fer sur la variabilité des résultats obtenus sur les métaux dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle.....	40
Tableau 10 : Caractérisation de la granulométrie des sédiments sur les stations AEAP retenues en termes de fractions granulométriques « inférieur à 63 μm » et « inférieur à 40 μm » sur la période 2007-2015	42
Tableau 11 : Corrélations établies entre les concentrations en PCB et la teneur en matière organique dans les sédiments prélevés sur la station de Chocques sur la période 2007-2015.....	45
Tableau 12 : Impact de la normalisation par la perte au feu sur la variabilité des résultats de PCB obtenus sur les sédiments prélevés sur la station de Chocques (CV = coefficient de variation).....	47
Tableau 13 : Corrélations établies entre les concentrations en HAP et la teneur en matière organique dans les sédiments prélevés sur la station de Jeumont sur la période 2007-2014.....	48
Tableau 14: Impact de la normalisation par la teneur en matière organique sur la variabilité des résultats de HAP obtenus sur les sédiments prélevés à la station de Jeumont sur la période 2007-2014 (n : nombre de données ; CV : coefficient de variation)	49

Tableau 15 : Stations AERM étudiées	50
Tableau 16 : Coefficients de variation (CV) des résultats en Al et Fe dans les sédiments et les MES pour les stations de Rhinau, de Gamsheim et de Sierck sur la période 2007-2013	53
Tableau 17 : Etude de la corrélation (R^2) entre les concentrations en métaux et les concentrations en Al ou Fe dans les sédiments et les MES pour les trois stations AERM considérées sur la période 2007-2013	54
Tableau 18 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des métaux dans les sédiments et les MES de la station de Sierck sur la période 1993-2014.....	56
Tableau 19 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des métaux dans les sédiments et les MES de la station de Gamsheim sur la période 2007-2013	57
Tableau 20 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des métaux dans les sédiments et les MES de la station de Rhinau sur la période 2007-2013.....	58
Tableau 21 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des HAP dans les sédiments et les MES de la station de Sarreinsming sur la période 2000-2013	64
Tableau 22 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des HAP dans les sédiments et les MES de la station de Liverdun sur la période 1992-2013.....	65
Tableau 23 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des HAP dans les sédiments et les MES de la station de Sierck sur la période 2000-2013.....	66
Tableau 24 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de métaux dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Rhinau sur la période 2007-2013	69
Tableau 25 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de métaux dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Gamsheim sur la période 2007-2013 (MK : pente selon Mann-Kendall ; RL : pente selon régression linéaire).....	69
Tableau 26 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de métaux dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Sierck sur la période 1993-2014.....	70
Tableau 27 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données sédiment (données non-normalisées et normalisées) et MES (non-normalisées avec différentes fréquences de prélèvement) pour les métaux à la station de Sierck sur la période 2007-2013	74

Tableau 28 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de HAP dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Sarreinsming sur la période 2001-2013	76
Tableau 29 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de HAP dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Sierck sur la période 2001-2013	76
Tableau 30 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de HAP dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Liverdun sur la période 1994-2013	77
Tableau 31 : Synthèse bibliographique concernant l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments (références classées par type de document et par ordre chronologique décroissant).....	84
Tableau 32 : Bilan des recommandations pour l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments de surface	110
Tableau 33 : Bilan des discussions réalisées avec les AE.....	124

Figure 1 : Représentation graphique (2007-2013) de la concentration en cadmium dans les MES de la station Gambsheim	19
Figure 2 : Logigramme méthodologique pour l'évaluation des tendances temporelles à partir de données de contaminants dans les sédiments	27
Figure 3 : Représentation graphique de l'évolution de la contamination en chrome des sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle pour les trois chroniques étudiées.....	34
Figure 4 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le plomb dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle pour les trois chroniques étudiées.....	37
Figure 5 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE sur les données non-normalisées du zinc dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle.....	39
Figure 6 : Etude de la corrélation entre la concentration en zinc dans les sédiments et la proportion de particules fines, fraction « inférieur à 40 µm », à la station de Chocques.....	43
Figure 7 : Représentation graphique (2007-2013) de la concentration en cadmium dans les sédiments (en haut) et dans les MES (en bas) de la station Gambsheim	52
Figure 8 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le zinc dans les sédiments et les MES de la station de Sierck.....	60
Figure 9 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le cuivre dans les sédiments et les MES de la station de Sierck.....	61
Figure 10 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le cuivre sur les jeux de données MES « dégradés » avec prélèvement trimestriel (4 fois par an sur la période 2007-2013, n = 32) à la station de Gambsheim - (a) : début de la chronique en janvier 2007 ; (b) : début en février 2007 ; (c) : début en mars 2007.	72
Figure 11 : Représentation de la répartition spatiale de plusieurs micropolluants organiques dans les sédiments de surface et le long d'une rivière et dans un estuaire adjacent (d'après Wu et al., 2016 [27]).....	89
Figure 12 : Représentation schématique de la contamination en PCB des sédiments le long du Rhône (d'après Desmet et al., 2012 [36]).....	90
Figure 13 : Carte des concentrations maximales en cuivre observées dans les sédiments de la région Rhône-Alpes au cours de la période 2006-2011 (d'après Bourg, 2013 [22]).....	91
Figure 14 : Logigramme méthodologique pour l'attribution d'un indice multi-contaminants (cas des métaux et des HAP) (d'après Bourg, 2013 [22]).....	92

Figure 15 : Carte de la contamination des sédiments de la région Rhône-Alpes par des micropolluants organiques et inorganiques d'après le calcul d'indices « poly-contaminants » (d'après Bourg, 2013 [22])	93
Figure 16 : Carte des concentrations en métaux dans les sédiments de la région Île-de-France sur la période 2008-2011 (d'après Lavielle, 2013 [21])	94
Figure 17 : Représentation de la contamination en zinc des sédiments du bassin Artois-Picardie (d'après Prygiel, 2017 [18]).	95
Figure 18 : Carte de la contamination métallique des sédiments du bassin Artois-Picardie déterminée à l'aide de scores « multi-contaminants » (d'après Prygiel, 2017 [18]).....	96
Figure 19 : Méthode d'élaboration des classes de concentration selon la technique des effectifs progressifs (d'après Castel et al., 2014 [20]).....	97
Figure 20 : Carte de la contamination en plomb des sédiments du bassin Loire-Bretagne sur la période 2000-2013, exprimée à l'aide des valeurs moyennes non-normalisées (d'après Castel et al., 2014 [20]).....	98
Figure 21 : Carte de la contamination en plomb des sédiments du bassin Loire-Bretagne sur la période 2005-2013, exprimée à l'aide des facteurs d'enrichissement par rapport à la concentration en aluminium (d'après Castel et al., 2014 [20])	99
Figure 22 : Profil en long des facteurs d'enrichissement en plomb (moyenne sur la période 2005-2013) dans les sédiments le long de la Loire (d'après Castel et al., 2014 [20]).....	100
Figure 23 : Exemple de classement de stations de l'AEAP en fonction de scores établis sur la base des données métaux et micropolluants organiques en 2007 et 2011 (d'après AEAP, communication directe).....	104
Figure 24 : Méthode de hiérarchisation des sites selon la médiane et les premier et troisième quartiles obtenus pour tous les sites étudiés (d'après Poulhier et al., 2017 [11]).....	105
Figure 25 : Classement de quatre stations de l'Observatoire des Sédiments du Rhône sur la base de scores établis selon la méthode des descripteurs tous sites confondus (d'après Poulhier et al., 2017 [11]).	106
Figure 26 : Représentation de la contamination en plomb sur le bassin Loire-Bretagne avec une implantation surfacique (a), linéaire (b) ou ponctuelle (c) (d'après Castel et al., 2014 [20])	107

Remerciements :

Les auteurs de ce rapport tiennent à remercier :

- Miguel Nicolaï de l'AERM et Dorothée Bolzan de l'AEAP pour avoir accepté de mettre à disposition d'AQUAREF les données issues de la surveillance exploitées dans ce rapport, ainsi que pour les échanges qui ont été réalisés dans le cadre de cette étude ;
- Marie Berdoulay de l'AESN et Xavier Bourrain de l'AELB pour leurs réponses au questionnaire envoyé par AQUAREF ;
- Emilie Prygiel du CEREMA Nord-Picardie pour les échanges effectués dans le cadre de l'étude des données de l'AEAP ;
- Benjamin Lopez du BRGM pour l'expertise et l'appui apportés concernant le traitement statistique des données et l'utilisation de l'outil statistique HYPE.

Liste des abréviations

ACP	Analyse en composantes principales
AE	Agence de l'Eau
AEAP	Agence de l'Eau Artois-Picardie
AELB	Agence de l'Eau Loire-Bretagne
AERM	Agence de l'Eau Rhin-Meuse
AERMC	Agence de l'Eau Rhône-Méditerranée-Corse
AESN	Agence de l'Eau Seine-Normandie
BRGM	Bureau de recherches géologiques et minières
Cerema	Centre d'études et d'expertise sur les risques, l'environnement, la mobilité et l'aménagement
CMA	<i>Chemical Monitoring Activity</i>
COT	Carbone organique total
DCE	Directive cadre sur l'eau
DEB	Direction de l'Eau et de la Biodiversité
DREAL	Direction régionale de l'Environnement, de l'Aménagement et du Logement
DRIEE	Direction Régionale et Interdépartementale de l'Environnement et de l'Energie
FE	Facteur d'enrichissement
GéHCO	Laboratoire GéoHydrosystèmes Continentaux
HAP	Hydrocarbure aromatique polycyclique
LQ	Limite de quantification
MES	Matières en suspension
NQE	Norme de qualité environnementale
OSR	Observatoire des Sédiments du Rhône
PCB	Polychlorobiphényle
PEC	<i>Probable Effect Concentration</i>
PNEC	<i>Predicted No Effect Concentration</i>
SANDRE	Service d'administration nationale des données et référentiels sur l'eau
TEC	<i>Threshold Effect Concentration</i>

RECOMMANDATIONS POUR L'ESTIMATION DES TENDANCES TEMPORELLES ET DES DISTRIBUTIONS SPATIALES DES CONCENTRATIONS DE CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS
Anice YARI, Aymeric DABRIN, Marina COQUERY

RESUME

L'évaluation des tendances temporelles et des distributions spatiales des contaminants dans la matrice sédiment est demandée aux Etats Membres par la réglementation européenne dans le cadre de la DCE. Cette évaluation doit permettre d'estimer de façon fiable une tendance afin de guider le choix des mesures de gestion nécessaires lorsque des augmentations des concentrations en contaminant sont identifiées et de s'assurer que les concentrations n'augmentent pas de manière significative. Il est donc nécessaire que les gestionnaires de bassin aient à leur disposition une méthodologie fiable pour l'évaluation des tendances temporelles et des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments.

Ce rapport propose une méthodologie pour l'évaluation des tendances temporelles de contamination en micropolluants organiques et en métaux dans les sédiments. Il donne également quelques clés méthodologiques pour l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments.

La méthodologie d'évaluation des tendances temporelles proposée par AQUAREF a été appliquée sur plusieurs jeux de données de surveillance des masses d'eau portant sur les sédiments de surface. Plusieurs études de cas ont été réalisées, notamment en termes de famille de substances, de longueur des chroniques et des possibilités de normalisation des données. Les critères à respecter pour une évaluation robuste des tendances temporelles ont ainsi été identifiés.

Une comparaison des tendances observées sur des données de sédiments de surface et des données de matières en suspension (MES) a ensuite été menée afin d'identifier l'intérêt d'un suivi complémentaire des MES. Le prélèvement de MES ciblant prioritairement les particules fines peut être considéré comme une « normalisation opérationnelle » par la granulométrie et permet ainsi de s'affranchir de l'étape de normalisation lors de l'exploitation des données.

La question de la fréquence à adopter pour le suivi des MES est également abordée en générant des jeux de données présentant différentes fréquences de prélèvement des MES. A plusieurs reprises, des tendances significatives ont été observées sur ces jeux de données de MES, sans être retrouvées sur les jeux de données de sédiment.

Enfin, l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments a été abordée au moyen d'une étude bibliographique et de plusieurs exemples d'application qui ont permis d'illustrer la grande variété des pratiques. De manière générale, le choix du mode d'exploitation et de représentation des données est conditionné par l'objectif et le périmètre de l'étude. Des recommandations, synthétisées sous forme d'un tableau récapitulatif, sont proposées.

A la suite de ces travaux, le couplage des approches temporelle et spatiale ainsi que l'étude de la question de l'explication des tendances et des distributions observées apparaissent comme des perspectives à approfondir.

Mots clés (thématique et géographique) : tendance, micropolluants organiques, métaux, sédiments, matières en suspension, normalisation, programme de surveillance, DCE

GUIDELINES FOR THE EVALUATION OF TEMPORAL TRENDS AND SPATIAL DISTRIBUTIONS OF CONTAMINANTS CONCENTRATIONS IN SEDIMENTS

Anice YARI, Aymeric DABRIN, Marina COQUERY

ABSTRACTS

The assessment of temporal trends and spatial distributions of contaminants in sediment by the Member State is required by the European regulation, according to the WFD. This trend evaluation must be reliable enough to be used as a basis for taking measures which are necessary when confirmed or possible increases of pollutant concentrations are identified, so that these increases do not become significant. Thus, watershed managers should be provided with a reliable methodology for the evaluation of temporal trends and spatial distributions in sediments.

This report suggests a methodology for the assessment of temporal trends of organic and metallic micropollutants in sediments. It also provides with methodological keys to perform the evaluation of spatial distributions of contaminants in sediments.

The methodology for the evaluation of temporal trends is applied on several data sets of surface sediment monitoring data. Several case studies are developed regarding the studied substances, the temporal range of the data set and the possibilities for data normalization. This enabled to identify the criteria to be met in order to perform a reliable study of the data from the temporal trend assessment perspective.

A comparison of the trends calculated in sediment data and suspended solids data on several sampling sites is also presented. The main goal was to identify the potential benefit of monitoring the suspended solids as an addition to the classical sediment monitoring. Indeed, suspended solids sampling mainly targets small-size particles, which can be assimilated to a “sampling grain-size normalization”, which can replace the data normalization performed once the data are being studied.

The question of sampling frequency for suspended solids monitoring is addressed as well by creating several data sets with different sampling frequencies. On several occasions, significant trends have been observed in the suspended solids data sets but were not observed in the sediment data sets.

Finally, the study of spatial distributions of contaminants in sediments is addressed. A bibliographical study is presented with some detailed examples which illustrate the variety of practices. The way the data are exploited and represented strongly depends on the objectives and the perimeter of the study. A set of guidelines are summarized in a table.

Following the obtained results and the already provided guidelines, two main perspectives appear in regard of going further in the question of trend assessment in sediments: the opportunities for coupling both the temporal approach and the spatial approach and the question of explaining and assessing the causes of the observed trends.

Key words (thematic and geographical area) : trends, organic micropollutants, metals, sediment, suspended solids, normalisation, monitoring programs, WFD

1. CONTEXTE ET OBJECTIFS

1.1 CONTEXTE REGLEMENTAIRE

La Directive Cadre Européenne sur l'Eau (DCE 2000/60/CE) [1] demande aux Etats membres de surveiller les substances chimiques pour la définition de l'état chimique et de l'état écologique des eaux continentales au niveau des différentes masses d'eau, ainsi que leur évolution au cours du temps. La DCE indique également, dans son annexe V, point 2.4.4., que pour les eaux souterraines les Etats membres doivent être en mesure d'« identifier les tendances à la hausse à long terme des concentrations de polluants induites par l'activité anthropogénique ainsi que les renversements de ces tendances ». Pour cela, il est demandé de veiller à ce que « les renversements de tendances [soient] démontrés par des données statistiques » avec un niveau de confiance associé. En revanche, la DCE ne mentionne ou ne préconise pas de méthode particulière pour l'établissement de ces tendances. Elle n'aborde pas non plus la question de l'établissement de tendances des concentrations de polluants dans les sédiments.

La notion de surveillance des sédiments pour l'évaluation de la qualité des masses d'eau est abordée dans la directive fille NQE 2008/105/CE [2]. Dans son article 3, cette dernière demande aux Etats Membres de procéder « à l'analyse tendancielle à long terme des concentrations des substances prioritaires » hydrophobes et de prendre les mesures nécessaires afin que ces concentrations « n'augmentent pas de manière significative ». Enfin, elle donne à titre indicatif une fréquence de contrôle d'une fois tous les trois ans pour l'évaluation des tendances temporelles. Cette fréquence de contrôle est ramenée à une fois par an pour les Etats Membres qui choisissent d'appliquer des NQE pour les sédiments. La directive fille 2013/39/UE [3] reprend les recommandations de la directive fille NQE 2008/105/CE.

Enfin, le Guide européen sur la surveillance chimique des sédiments et du biote selon la Directive Cadre sur l'Eau (dit « Guide CMA ») [4] décrit également les grands principes du suivi des tendances des contaminants dans la matrice sédiments. Il rappelle les principales sources de variabilité dans le cadre de la surveillance des sédiments. Il propose, enfin, les grands principes méthodologiques devant guider toute évaluation des tendances temporelles ainsi que les critères de sélection de l'outil statistique utilisé et aborde la question de la normalisation des données. Cependant, il ne recommande pas d'outil statistique en particulier.

Une étude plus détaillée de ces différents documents est présentée dans le rapport AQUAREF de Lionard *et al.*, 2015 [5].

En septembre 2016, un questionnaire concernant le suivi des tendances dans les matrices sédiment et biote a été élaboré par la Direction de l'Eau et de la Biodiversité (DEB) et adressé aux différentes Agences de l'Eau (AE) afin de connaître la façon dont cette problématique a été abordée au niveau des bassins. Cette enquête a fait l'objet d'un retour lors de la réunion du GT Substances du 4 octobre 2016, au cours de laquelle il est ressorti que les AE respectent les exigences réglementaires en termes de fréquence de surveillance des sédiments. Cependant, le besoin d'une méthodologie pour l'exploitation se fait sentir. Il existe donc une forte attente des AE vis-à-vis de cette problématique afin d'être en mesure d'exploiter et de valoriser les nombreuses données sur les sédiments dont elles disposent. Toutefois, ces données sont parfois lacunaires, tant dans la régularité du suivi que dans les paramètres étudiés (paramètres

normalisateurs notamment). L'acquisition de ces données est donc appelée à évoluer afin de garantir une évaluation robuste des tendances.

1.2 TRAVAUX DISPONIBLES SUR L'ÉVALUATION DES TENDANCES

Dans le cadre de ses travaux sur l'évaluation des tendances dans les eaux souterraines [6], le BRGM a développé l'outil statistique HYPE. Cet outil statistique permet d'évaluer les tendances temporelles à partir de chroniques comportant au moins 5 données. Il est en accès libre et s'accompagne d'un manuel d'utilisation [7] qui détaille le principe de son fonctionnement et décrit les tests statistiques qui y sont appliqués.

Par ailleurs, depuis 2014, AQUAREF s'est emparé de cette problématique d'évaluation des tendances dans les sédiments. Un premier rapport, rédigé par Irstea avec l'appui du BRGM, a été publié en 2015 [5]. Ce rapport s'articule autour de trois principaux axes. Premièrement, une synthèse des exigences et des recommandations européennes concernant la surveillance des sédiments continentaux dans une perspective d'évaluation des tendances spatiales et temporelles est présentée. Deuxièmement, le rapport recense et décrit les différentes méthodologies disponibles en termes de prélèvement, de prétraitement et d'exploitation des données telles qu'elles sont décrites dans les guides techniques et la littérature scientifique. Enfin, dans une dernière partie, certaines de ces méthodes d'exploitation sont appliquées sur un jeu de données fournies par l'AE Rhin-Meuse. L'outil statistique HYPE, développé par le BRGM pour les eaux souterraines, a été testé pour évaluer les tendances temporelles dans le contexte des sédiments sur des données de métaux obtenues sur une station du réseau de surveillance.

Ces premiers travaux ont ainsi permis de dresser un état des lieux des techniques disponibles pour l'évaluation des tendances spatiales et temporelles dans les sédiments et de commencer à tester leur applicabilité sur des données issues de la surveillance des masses d'eau. Ils ont également permis de souligner l'importance de la normalisation des données et d'évoquer l'apport que peut présenter le suivi des matières en suspension (MES), en complément d'un suivi des sédiments de surface. Enfin, la pertinence de l'utilisation de l'outil statistique HYPE pour l'évaluation des tendances dans les sédiments a été démontrée, bien qu'un certain nombre de verrous (longueur minimale des chroniques, suivi de paramètres normalisateurs, disponibilité des incertitudes) aient également été soulevés.

1.3 OBJECTIFS DE L'ÉTUDE

Dans le cadre de la programmation AQUAREF pour le cycle 2016-2018, une action a été menée sur l'évaluation des tendances temporelles et spatiales des concentrations des contaminants dans les sédiments, dans la continuité des précédents travaux [5]. Le présent rapport a pour but d'une part, de présenter une méthodologie d'estimation des tendances dans les sédiments au niveau d'une station de surveillance et d'autre part, de proposer quelques clés méthodologiques pour l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments.

Les objectifs détaillés sont les suivants :

- 1) développer et formaliser une méthodologie d'évaluation des tendances temporelles des contaminants dans les sédiments de surface applicable *via* un outil statistique fiable et simple d'utilisation (HYPE), permettant d'aller au-delà

d'une appréciation uniquement qualitative à partir d'un graphique présentant l'évolution de la concentration en fonction du temps ;

- 2) appliquer cette méthodologie à différents jeux de données issus des AE, sur les concentrations en métaux et contaminants organiques dans les sédiments pour illustrer différents cas de figure, y compris en comparant les résultats obtenus sur des chroniques de données de concentrations en contaminants dans les sédiments et dans les MES, afin de confirmer les précédentes observations [5] et de mettre en lumière les options de traitement des données les plus pertinentes ainsi que les limites de la méthodologie proposée ;
- 3) proposer des recommandations afin d'assurer la robustesse de cette méthodologie d'évaluation des tendances, notamment en ce qui concerne le type de suivi (sédiment de surface vs. MES), la longueur des chroniques, et le suivi et l'utilisation des paramètres normalisateurs.
- 4) dégager, à l'aide d'une étude bibliographique, des éléments méthodologiques et un premier ensemble de recommandations pour l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments.

Afin de répondre à ces objectifs, des données ont été obtenues auprès de différentes AE selon les critères définis dans la section 2 de ce rapport. La méthodologie d'évaluation des tendances temporelles est ensuite précisément décrite, puis appliquée sur les données obtenues afin d'en démontrer l'applicabilité et d'identifier les différentes pistes de traitement des données dans une perspective d'étude des tendances temporelles. Une étude comparative est notamment réalisée sur des données de sédiments de surface et de MES obtenues sur plusieurs stations. Enfin, la section 5 présente une étude bibliographique axée sur l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments et propose quelques clés méthodologiques pour la réalisation de telles études.

2. COLLECTE DES DONNEES

Dans la continuité des actions entreprises depuis 2014, AQUAREF a échangé avec les AE afin d'obtenir des jeux de données qui puissent faire l'objet d'une analyse de tendances avec l'outil HYPE. Ces jeux de données devaient, au mieux, remplir les critères ci-dessous.

- Matrices : pour les AE qui en disposaient, les données obtenues suite à un suivi des **MES** étaient demandées en même temps que les données sur les **sédiments**.
- Durée des chroniques : les chroniques devaient comporter au moins 6 données pour être exploitables *a minima* par HYPE ; cependant, certains tests n'étant effectués qu'au-delà de 10 données, des chroniques comportant **au moins 10 données** étaient demandées dans l'idéal ;
- Substances : les chroniques devaient présenter des données obtenues sur les **métaux** suivants : As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn, Hg (métaux mentionnés par la DCE) ; et des données obtenues sur les micropolluants organiques (notamment **HAP** et **PCB**, polluants hydrophobes suivis de longue date dans les sédiments et pour lesquels des résultats quantifiés sont fréquemment obtenus) ;

- Quantification : pour garantir une exploitation pertinente, les chroniques devaient présenter un maximum de **données quantifiées (idéalement plus de 80%)** ;
- Normalisation : afin de tester de manière plus approfondie les différentes possibilités de normalisation, le suivi de **paramètres normalisateurs** comme l'aluminium, le fer, le carbone organique ou la granulométrie était demandé ;

AQUAREF a ainsi obtenu des jeux de données de la part de l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse (AERM) et l'Agence de l'Eau Artois-Picardie (AEAP, via le CEREMA Nord-Picardie). Ces jeux de données, bien que ne respectant pas forcément tous les critères, ont permis de réaliser une première analyse des tendances temporelles décrite dans la section 4 de ce rapport. Ces jeux de données sont décrits dans les sections 4.1.1 (données AEAP) et 4.2.1 (données AERM).

3. PRESENTATION DE LA METHODOLOGIE D'ESTIMATION DES TENDANCES TEMPORELLES

3.1 ETUDE PRELIMINAIRE DES DONNEES

Avant d'effectuer une étude détaillée des tendances sur le jeu de données considéré, il est nécessaire de vérifier que la qualité des données est satisfaisante pour permettre une étude statistique pertinente. C'est pourquoi un examen préliminaire « visuel » est fondamental avant tout traitement statistique.

Un tel examen est utile pour identifier les changements de méthode analytique ou de laboratoire prestataire, qui peuvent en particulier entraîner une modification, et notamment une diminution, des limites de quantification. Une telle modification peut avoir un effet sur l'estimation des tendances, car elle peut faire apparaître artificiellement des tendances uniquement liées à un biais ou à un changement de méthode analytique.

Un exemple de cette situation est illustré sur la Figure 1. Dans cet exemple issu des données en cadmium obtenues dans les MES de la station Gamsheim (AERM ; code SANDRE : 20017000), la LQ sur le cadmium est divisée par 5 à partir de 2011 (0,5 mg/kg MS de 2007 à 2010 et 0,1 mg/kg MS de 2011 à 2013).

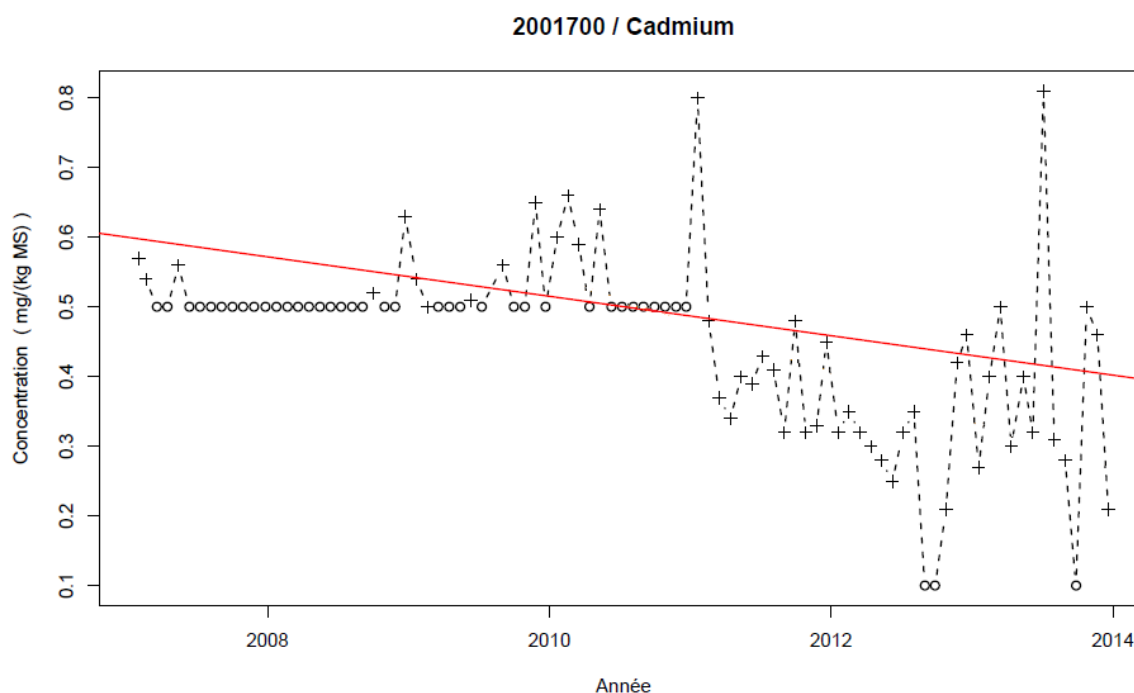


Figure 1 : Représentation graphique (2007-2013) de la concentration en cadmium dans les MES de la station Gamsheim (° : donnée non quantifiée ; + : donnée quantifiée ; ligne rouge : tendance selon test de Mann-Kendall effectué par HYPE)

On observe ainsi un très fort écart entre les fréquences de quantification obtenues au cours des deux périodes (27% de 2007 à 2010 et 92% de 2011 à 2013), car les valeurs généralement obtenues sur cette station sont inférieures à 0,5 mg/kg MS. Ces données ont été traitées par le logiciel HYPE (le descriptif du fonctionnement de cet outil est décrit au paragraphe 3.3). A titre indicatif, HYPE remplace les valeurs non quantifiées par la valeur de la limite de quantification. Un test de Mann-Kendall est ensuite appliqué sur l'ensemble de la chronique (ligne rouge) et donne une tendance à la baisse

significative de $-2,83.10^{-2}$ mg/kg MS/an alors qu'en réalité, les résultats obtenus sur plus de la moitié de la chronique ne sont pas exploitables (*i.e.* concentrations en cadmium inférieures à la limite de quantification). Seule la période à partir de 2011 peut réellement faire l'objet d'une analyse des tendances.

Il est donc essentiel non seulement de vérifier la présence de données quantifiées en nombre suffisant mais également d'étudier la répartition des données non quantifiées éventuellement présentes au sein de la chronique. Si les données non quantifiées sont majoritairement présentes en début ou en fin de chronique, cela permet de redéfinir les bornes temporelles de la chronique sur laquelle les tendances temporelles peuvent être étudiées de manière fiable.

Par ailleurs, il est nécessaire de procéder à un examen préliminaire des données afin de repérer et de corriger d'éventuelles erreurs dans le report des résultats, notamment :

- des erreurs de report de mesure (ex : un résultat de 2000 mg/kg présenté comme « non quantifié » alors que tous les autres résultats de la même chronique sont présentés comme « quantifiés » avec des valeurs bien inférieures) ;
- des erreurs de report d'unité (ex : des résultats de perte au feu qui sont donnés en mg/kg MS puis en % avec des erreurs de conversion) ;
- des erreurs de report de code SANDRE (ex : une même fraction granulométrique reportée sous deux codes SANDRE différents - l'un gelé et l'autre non), qui peuvent faire croire à des lacunes dans les données.

Il est également possible d'identifier visuellement des premières variations significatives, et ainsi d'émettre des premières hypothèses sur les possibles tendances et ruptures de tendances dans les chroniques, hypothèses qui pourront ensuite être confirmées, infirmées ou nuancées grâce à l'outil statistique HYPE. A ce titre, et ce même si l'outil HYPE peut fournir une représentation graphique des résultats, il est conseillé de tracer une représentation graphique de la chronique permettant d'illustrer et de justifier visuellement ces hypothèses. Cela permet également de repérer d'éventuels pics de contamination ou des valeurs aberrantes que l'on peut confirmer avec les tests statistiques appropriés (test de Grubbs, par exemple). Il est rappelé que HYPE ne procède pas à un test de valeurs aberrantes.

Une telle représentation graphique appliquée aux possibles paramètres normalisateurs ou cofacteurs (ex : concentration en aluminium, granulométrie) est également utile pour guider le choix du cofacteur le plus adapté, en comparant visuellement l'évolution temporelle des concentrations en contaminant et le comportement du cofacteur au cours du temps.

Cette étude préliminaire des données est donc une étape fondamentale dans la méthodologie d'évaluation des tendances. Elle permet de s'assurer de la fiabilité des données à étudier. Une fois la chronique à étudier définie précisément en termes de bornes temporelles et de substances d'intérêt, il est possible d'étudier les différentes possibilités de normalisation des données.

Cas particulier : Données métaux sur sédiment et méthode de minéralisation

- ❖ L'analyse des métaux dans les sédiments est réalisée après une étape de minéralisation acide des échantillons préalablement tamisés, broyés et séchés [8].
- ❖ Il existe principalement deux méthodes de minéralisation : minéralisation par eau régale (recommandée par AQUAREF [8]) et minéralisation totale par acide fluorhydrique.
 - La minéralisation par eau régale est moins forte que celle à l'aide d'acide fluorhydrique, seule apte à attaquer la matrice aluminosilicate.
 - En conséquence, les concentrations de certains métaux, notamment les plus réfractaires (ex : Ni, Cr), associés à la matrice aluminosilicate, obtenues après minéralisation à l'eau régale sont inférieures à celles obtenues après minéralisation par l'acide fluorhydrique.
 - Dans le cas d'études des distributions spatiales des métaux dans les sédiments où le fond géochimique est pris en considération, il est préférable d'utiliser des données obtenues après minéralisation totale.
 - Cependant, l'acide fluorhydrique est un acide très dangereux dont l'utilisation est strictement réglementée.
- ❖ Il est nécessaire de connaître la méthode de minéralisation employée avant d'effectuer une étude des tendances.
 - Dans le cas contraire, les données pour lesquelles la méthode n'est pas connue doivent être exclues de l'étude des tendances.
- ❖ Pour pouvoir être comparées entre elles, les données doivent avoir été obtenues avec la même méthode de minéralisation.

3.2 NORMALISATION DES DONNEES

La normalisation des données est une opération visant à s'affranchir, au moins partiellement, de l'impact de la variabilité induite par les hétérogénéités naturelles (granulométrie, teneur en matière organique) des sédiments prélevés. Elle consiste en une correction des concentrations en contaminants organiques ou inorganiques par des paramètres conservatifs (ou cofacteurs) représentatifs des échantillons prélevés. Le rapport AQUAREF de Lionard *et al.*, 2015 [5] a également montré que la normalisation peut permettre de détecter des tendances plus facilement que sur des données non normalisées, en raison d'une dispersion plus importante sur les données non normalisées.

Il existe différentes possibilités de cofacteurs en fonction des contaminants étudiés. En effet, un cofacteur donné n'est pas universel : en fonction de leur nature (notamment organique ou inorganique), des corrélations positives sont observées entre les micropolluants et différents paramètres, comme la concentration en aluminium pour les éléments trace métalliques ou la matière organique pour les micropolluants organiques. Un cofacteur utilisé pour une famille de substances donnée pourra être inadapté pour une famille différente. Le rapport AQUAREF de Lionard *et al.*, 2015 [5] fournit une description détaillée des différents paramètres normalisateurs qui peuvent être envisagés, basée notamment sur les recommandations du guide JAMP/OSPAR sur la normalisation des concentrations des micropolluants dans les sédiments [9]. Le Tableau 1 récapitule les différentes options les plus facilement envisageables (en termes de disponibilité du paramètre conservatif dans les jeux de données) en fonction des familles de substances.

Tableau 1 : Principaux paramètres (ou cofacteurs) à envisager pour la normalisation des données de sédiment en milieu continental

Famille chimique	Paramètres conservatifs
Métaux	Aluminium (Al) Fer (Fe) Granulométrie (ex : < 63 µm)
Micropolluants organiques	Carbone organique total (COT) Perte au feu Granulométrie (ex : < 63 µm)

La normalisation des concentrations en contaminants peut être effectuée de différentes façons. Elle peut être effectuée en divisant la concentration à normaliser par le cofacteur. Une autre méthode de normalisation consiste à transformer la concentration en contaminant pour une concentration du cofacteur unique servant de valeur de référence (ex : valeur moyenne du cofacteur ou point pivot calculé à partir de droites de régression entre les concentrations en contaminant et le cofacteur) [9][10].

Dans le cadre de l'étude des tendances temporelles de la contamination, la première méthode (division de la concentration par le cofacteur) a été retenue. Elle apparaît en effet comme la plus adaptée pour une étude de l'évolution temporelle de la contamination, car elle permet de prendre en compte les hétérogénéités naturelles entre les sédiments prélevés au cours des différentes années. La deuxième méthode est quant à elle plus adaptée lorsque l'on cherche à définir un point de référence unique par rapport auquel sont situés les échantillons étudiés, ce qui n'est pas le but recherché ici.

Si les échantillons étudiés présentent de très fortes similitudes en termes de teneur en matière organique et de granulométrie (coefficient de variation inférieur à 20%, valeur en dessous de laquelle la variabilité peut être considérée comme faible vis-à-vis de la variabilité analytique), une opération de normalisation n'est pas particulièrement nécessaire à l'exploitation statistique des données.

Ce critère sur la variabilité n'a toutefois pas vocation à être rédhibitoire. Ainsi, il est possible d'envisager une opération de normalisation même si le paramètre normalisateur présente une faible variabilité à l'échelle de la chronique, notamment pour faciliter un traitement plus systématique des données. Vérifier la variabilité des paramètres normalisateurs envisagés permet surtout de déterminer les paramètres normalisateurs les plus adaptés pour une opération de normalisation des données du jeu de données considéré.

Avant de procéder à toute opération de normalisation, il est nécessaire de s'assurer qu'il existe une bonne corrélation entre les concentrations en contaminant et le cofacteur. Il est pour cela possible de calculer une régression linéaire après avoir tracé graphiquement l'évolution de la concentration en fonction du paramètre normalisateur (l'utilisateur peut ainsi estimer visuellement la force de la corrélation). L'intensité de la corrélation entre les deux grandeurs peut être évaluée en considérant la valeur du coefficient de corrélation R (ou du coefficient de détermination R^2) pour les données d'un même site. Plus la valeur absolue de ce coefficient est élevée, plus la relation entre les deux grandeurs est forte. Pour estimer précisément la significativité de la corrélation, il est nécessaire de calculer la p-valeur associée à la régression linéaire. Une p-valeur inférieure à 0,05 est le critère conventionnellement adopté pour considérer une relation comme significative. Le nombre de données sur lesquelles est effectuée la régression a également son importance : l'établissement d'une corrélation sera d'autant plus fiable si elle est observée sur un grand nombre de données.

Ces deux critères (variabilité du cofacteur et corrélation) sont donnés afin de limiter les calculs à effectuer dans le cadre de l'évaluation des tendances. En effet, il reste théoriquement possible de normaliser les résultats d'analyse en dépit d'une faible variabilité du paramètre normalisateur et/ou d'une faible corrélation entre les concentrations en contaminant et le paramètre normalisateur. Cependant, l'opération est alors peu pertinente. L'observation de la variabilité des paramètres normalisateurs et l'étude de la force de la corrélation entre les concentrations en contaminant et le paramètre normalisateur sont nécessaires pour comprendre, le cas échéant, pourquoi une normalisation des données ne fournit pas de bons résultats.

L'essentiel à retenir :

- ❖ La normalisation des données de concentrations en micropolluants est une opération visant à s'affranchir de la variabilité due à l'hétérogénéité naturelle des sédiments prélevés.
- ❖ La normalisation est notamment basée sur le choix d'un paramètre normalisateur - ou cofacteur - adapté et reflétant la qualité granulométrique du sédiment prélevé (cf. Tableau 1).
- ❖ Il est nécessaire de s'assurer d'une bonne corrélation entre les concentrations en polluant et le paramètre normalisateur choisi.
- ❖ Une tendance détectée sur des données normalisées est plus « fiable » qu'une tendance détectée sur des données non-normalisées.
- ❖ Lorsqu'un paramètre normalisateur est choisi, il doit être utilisé pour l'ensemble des données d'une chronique donnée.
- ❖ En revanche, il est possible de comparer qualitativement des tendances obtenues sur deux chroniques de données normalisées, même si les paramètres normalisateurs sont différents entre les chroniques.
- ❖ Cas des métaux : Si un élément métallique (ex : Al ou Fe) est choisi en guise de paramètre normalisateur pour des données métaux, la méthode de minéralisation doit être la même pour les contaminants métalliques étudiés et pour le paramètre normalisateur retenu.

3.3 ETUDE STATISTIQUE DES TENDANCES

Lorsque les différentes possibilités de normalisation ont été explorées, il s'agit ensuite d'utiliser le logiciel HYPE pour effectuer l'étude des tendances proprement dite.

HYPE est un outil statistique fonctionnant sous R, qui est lui-même un logiciel disponible en accès libre à l'adresse <http://www.r-project.org>. Le manuel d'utilisation de HYPE rédigé par le BRGM [7] décrit toutes les étapes nécessaires à l'installation de R et des différents *packages* de HYPE, ainsi que le format que doivent avoir les données introduites dans HYPE pour l'évaluation des tendances.

Les données ainsi préparées sont traitées par HYPE, qui fournit les résultats numériques et graphiques des tests appliqués. En fonction des caractéristiques des chroniques (nombre de données, distribution normale ou non, etc.), HYPE applique différents tests : par exemple, en l'absence d'une distribution normale des données, HYPE ne calcule pas de régression linéaire ; et pour une chronique comportant moins de 10 données, HYPE n'applique pas de test de Mann-Kendall. Le manuel d'utilisation [7] détaille, pour chaque test, les conditions et limites d'application.

3.4 EXPLOITATION DES RESULTATS

Le logiciel HYPE fournit les résultats obtenus sous forme d'une part, de documents « .txt » pouvant être ouverts sous Excel et comprenant l'intégralité des résultats numériques de la caractérisation statistique et de l'étude des tendances ; et d'autre part, de documents PDF comprenant une illustration graphique des résultats obtenus. L'utilisateur interprète ensuite ces résultats et conclut sur les tendances observées ou non.

Les principales informations à extraire des rapports donnés par HYPE sont :

- les éventuelles tendances détectées, avec la pente associée ; il est en particulier conseillé de vérifier que les pentes fournies par le test de Mann-Kendall et par la régression linéaire (sous réserve que les deux tests aient été appliqués) sont proches ;
- les ruptures, à savoir les inversions de tendance et les changements de moyenne, avec les dates associées.

Afin d'obtenir une présentation claire des résultats obtenus pour plusieurs substances, il est recommandé de les présenter sous forme de tableau. Les tableaux du présent rapport s'inspirent du rapport de Poulier *et al.* (2017) [11] qui présente un état des lieux de la contamination des MES dans le bassin du Rhône, y compris dans une perspective de tendance temporelle. Le

Tableau 2 présente un modèle de tableau de résultats.

Tableau 2 : Modèle de tableau de résultats de l'estimation des tendances temporelles

Substance	Tendances		Ruptures	
	Symbole	Pente (unité)	Type	Date
A	→		Inversion ↘↗	XX/XX/XXXX
B	↘	- b		
C	↗	+ c	Chg. Moy. ↗	XX/XX/XXXX
D	↗	+ d		
E	↘	- e	Inversion →↘ Chg. Moy. ↘	XX/XX/XXXX YY/YY/YYYY

La colonne « Symbole » indique schématiquement la tendance globale calculée par HYPE selon le test de Mann-Kendall et/ou une régression linéaire :

- le signe « → » indique que le logiciel HYPE n'a pas détecté de tendance significative sur l'ensemble de la chronique ;
- le signe « ↘ » indique une tendance à la baisse détectée sur l'ensemble de la chronique ;
- le signe « ↗ » indique une tendance à la hausse détectée sur l'ensemble de la chronique.

La colonne « Pente » indique la pente des éventuelles tendances identifiées par HYPE, en indiquant la mention « MK » pour une pente obtenue par le test de Mann-Kendall et « RL » pour une pente obtenue par régression linéaire.

La colonne « Type » indique les ruptures identifiées par HYPE dans la chronique :

- dans le cas d'une rupture de moyenne, la mention « Chg. Moy. » est reportée, en indiquant à la suite avec le signe « ↗ » ou « ↘ » si le changement se fait dans le sens d'une augmentation ou d'une diminution de la moyenne ;
- dans le cas d'une inversion de tendances, la mention « Inversion » est reportée avec une description schématique de l'inversion (ex : « ↘↗ » pour une tendance à la baisse avant inversion et à la hausse après).

Remarque : HYPE peut identifier une inversion de tendances et/ou un changement de moyennes à une date précise de la chronique sans qu'aucune tendance significative ne se dégage à l'échelle de la chronique entière.

Si l'une ou l'autre de ces ruptures est identifiée, la date de rupture, fournie par HYPE, doit être indiquée dans la colonne « Date ».

Concernant l'interprétation des tendances calculées par le logiciel HYPE, il est nécessaire de rappeler que ces tendances sont issues de tests statistiques et qu'elles ne constituent pas, à elles seules, un indicateur de l'état chimique de la station (ex : pas de comparaison à des valeurs seuils). De plus, si une opération de normalisation est effectuée, la grandeur étudiée lors de la recherche des tendances n'est pas une concentration à proprement parler, mais un ratio de concentrations. Les tendances significatives détectées permettent de caractériser de façon quantitative l'évolution de la contamination à la station, conformément aux exigences réglementaires des directives européennes [1][2].

3.5 LOGIGRAMME METHODOLOGIQUE

La Figure 2 résume sous forme de logigramme les différentes étapes de la méthodologie proposée pour l'étude des tendances temporelles dans les sédiments de surface. Cette méthodologie peut également être adoptée dans le cas d'étude de données obtenues sur des MES, comme cela est présenté en 4.2.

La méthodologie commence par l'acquisition des données et leur étude préliminaire (en haut à gauche du logigramme). Une fois la chronique à étudier définie, les éventuels paramètres normalisateurs disponibles sont évalués. Si l'un d'eux présente une variabilité suffisante et qu'une corrélation acceptable peut être établie avec les données, la normalisation est effectuée et les deux catégories de données (non-normalisées et normalisées) peuvent être introduites dans HYPE. En revanche, s'il n'y a aucun paramètre normalisateur disponible ou si les critères de variabilité et/ou de corrélation ne sont pas respectés, seules les données non-normalisées sont introduites dans HYPE. L'étude des résultats numériques et graphiques fournis par HYPE permet ensuite de conclure sur l'évaluation des tendances.

La Figure 2 présente la méthodologie telle qu'elle doit être appliquée pour chaque station et chaque substance. L'étape la plus coûteuse en temps est celle de la préparation des données à introduire dans HYPE (préparation du fichier Excel et normalisation des données). A l'inverse, le calcul des tendances par HYPE est très rapide, sachant qu'il est possible de préparer un seul fichier Excel global regroupant les données de toutes les stations et substances étudiées (HYPE séparant ensuite les stations et les substances dans les fichiers de résultats fournis). A titre indicatif, un fichier-test Excel simulant les données de 20 substances suivies avec un prélèvement annuel pendant 20 ans sur 20 stations (soit 8 000 données) a pu être traité en environ 3 minutes (écriture des instructions dans R + temps de calcul).

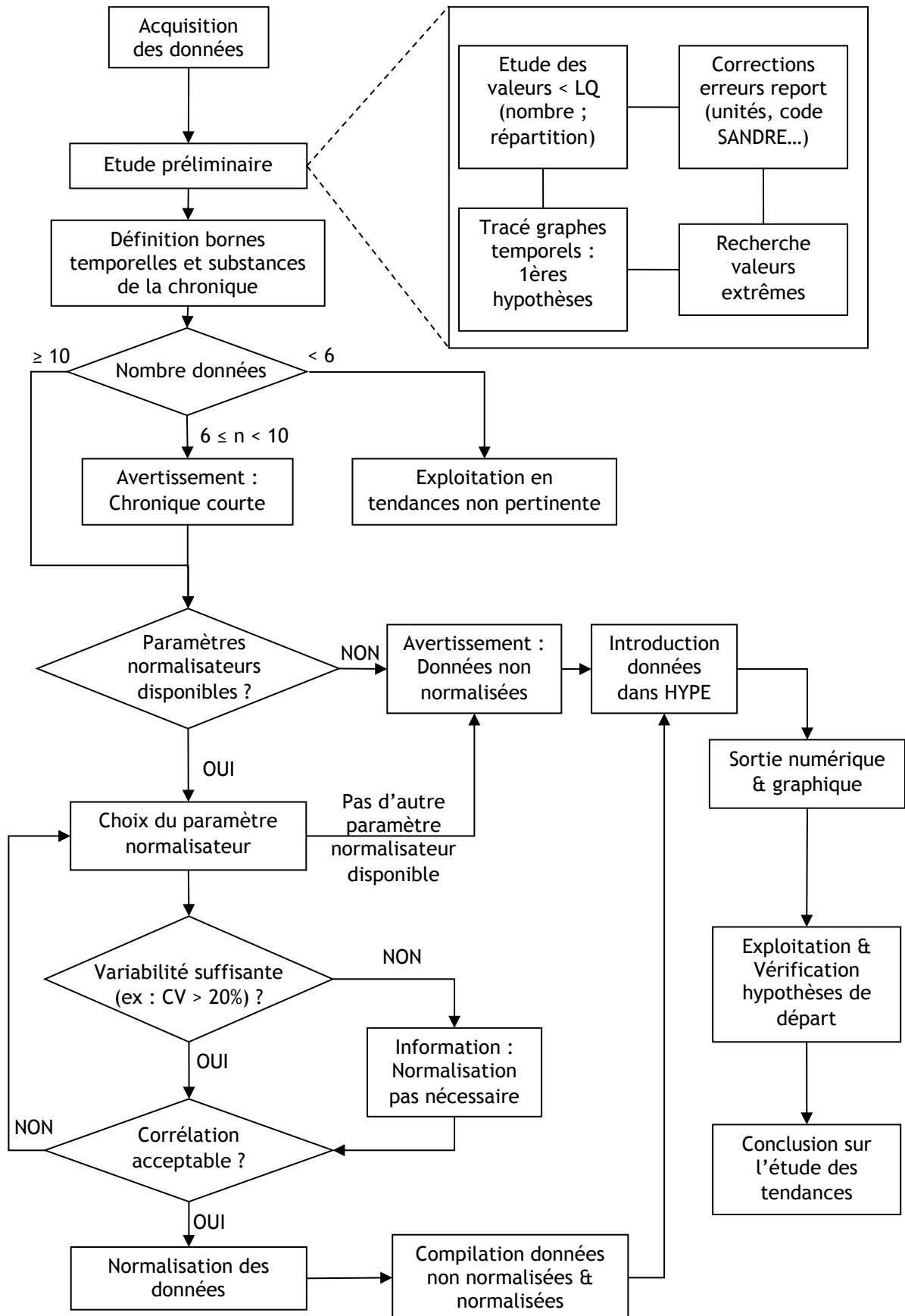


Figure 2 : Logigramme méthodologique pour l'évaluation des tendances temporelles à partir de données de contaminants dans les sédiments

4. ETUDE DES TENDANCES TEMPORELLES SUR DES JEUX DE DONNEES REELLES

4.1 ESTIMATION DES TENDANCES TEMPORELLES SUR UN JEU DE DONNEES SUR LES SEDIMENTS

4.1.1 Caractérisation des données

Les données présentées dans cette étude de cas sont issues de l'Agence de l'Eau Artois-Picardie (AEAP). Ces données comprennent des chroniques de 49 stations s'étalant entre 2007 et 2014, et concernent, toutes stations confondues, plus de 350 contaminants et paramètres globaux. Elles ont été fournies à AQUAREF via le CEREMA Nord-Picardie. Ces données ont fait l'objet d'une première étude de caractérisation par le CEREMA [12][13]. Cette étude a identifié les principales caractéristiques ainsi que d'éventuelles difficultés à réaliser une étude des tendances. Elle est focalisée sur l'étude des données métaux et considère la granulométrie et le carbone organique en tant que paramètres d'aide à l'interprétation des données.

Une caractérisation globale de ces données est donnée ci-dessous.

Matrices : ces données concernent uniquement **les sédiments**, l'AEAP ne coordonnant pas de suivi des MES. Les analyses sont effectuées sur la fraction inférieure à 2 mm. La méthode de minéralisation n'est précisément documentée que depuis 2013 (minéralisation à l'eau régale).

Durée des chroniques : en général, les chroniques disponibles vont **de 1990 à 2015 pour les métaux et de 2007 à 2014 pour les autres substances**, avec parfois des variations dans la durée des chroniques et des lacunes, parfois nombreuses, dans le suivi.

Substances suivies : les données AEAP concernent un très grand nombre de substances, organiques ou minérales. Globalement, des données sont disponibles pour **les métaux** (15 substances), **les HAP** (19 substances) et **les PCB** (12 substances).

Quantification : en fonction des stations et des substances, **les fréquences de quantification sont très variables**. Ainsi, une station présentant des fréquences de quantification élevées (supérieures à 80%) pour une famille de substances peut présenter des fréquences faibles (inférieures à 30%) pour une autre famille.

Normalisation : un suivi de la **granulométrie** a été effectué depuis 2007, rendant possible l'utilisation de ce paramètre pour la normalisation. Au cours de ce suivi, les différentes classes granulométriques rapportées ont varié, mais il est possible, en additionnant les résultats issus des classes granulométriques adaptées, de retrouver les résultats correspondant aux classes les plus couramment utilisées pour la normalisation, et notamment la classe « inférieur à 63 µm ». L'**aluminium** a fait l'objet d'un suivi trop lacunaire pour être exploité ; en revanche le **fer** compte davantage de données et a donc été utilisé comme paramètre normalisateur pour les métaux. Concernant les micropolluants organiques, le **carbone organique** n'a été suivi que depuis 2010, ce qui est trop récent, mais la **perte au feu** ont été suivies depuis 2008 ; l'utilisation de ce paramètre pour les tendances des PCB et HAP a donc été étudiée.

Etant donné le grand nombre de données disponibles, la sélection des données les plus pertinentes à exploiter a été faite en choisissant comme premiers critères la fréquence

de quantification (supérieure à 80%) et la présence de paramètres normalisateurs. Parmi les 49 stations, 8 stations ont ainsi été retenues (cf. Tableau 3). Le Tableau 4 donne quant à lui les substances considérées pour les trois familles retenues : métaux, HAP et PCB.

Tableau 3 : Stations AEAP et familles de substances retenues pour l'analyse des tendances des micropolluants dans les sédiments

Code SANDRE	Libellé	Cours d'eau	Familles de substances étudiées
1004000	Jeumont	Sambre	Métaux PCB HAP
1027000	Noyelle-sur-Selle	Selle	Métaux
1028000	Verchain-Maugre	Ecaillon	Métaux HAP
1037000	Brebières	Scarpe	Métaux PCB HAP
1069000	Chocques	Clarence	Métaux PCB
1089000	Bambecque	Yser	Métaux
1102000	Saint-Momelin	Canal de l'Aa	Métaux
1129000	Epagne	Somme	Métaux

Tableau 4 : Substances considérées lors de l'étude des données sur sédiment de l'AEAP

Famille	Métaux	HAP	PCB
Substances	As	Benzo(a)anthracène	
	Cd	Benzo(a)pyrène	
	Cr	Benzo(b)fluoranthène	PCB 101
	Cu	Benzo(k)fluoranthène	PCB 118
	Hg	Benzo(g,h,i)pérylène	PCB 138
	Ni	Fluoranthène	PCB 153
	Pb	Indéno(1,2,3-cd)pyrène	PCB 52
	Zn	Phénanthrène	
		Pyrène	

4.1.2 Exploitation des données

Les données concernant les stations listées dans le Tableau 3 ont été mises en forme pour être exploitées par HYPE. Dans cette partie du rapport sont décrits uniquement les résultats permettant d'illustrer au mieux, et de manière détaillée, les différents aspects de la méthodologie employée pour l'évaluation des tendances (cf. section 3), notamment en ce qui concerne la normalisation et l'exploitation des résultats obtenus à partir du logiciel HYPE.

Les coefficients de détermination et de corrélation et les p-valeurs associées lors de l'étude des corrélations à des fins de normalisation ont été calculés par l'utilitaire d'analyse d'Excel.

Etude des données de sédiment concernant les métaux

Les chroniques les plus longues (1990-2015) fournies par l'AEAP concernent les métaux. L'étude préliminaire des données obtenues sur ces stations ne permet pas d'identifier de changement de méthode analytique. La quasi-totalité des données sont quantifiées, et les quelques données non-quantifiées ne sont pas concentrées sur une période donnée. L'unité de report de mesure est le mg/kg MS pour tous les métaux, sauf pour le nickel et l'aluminium pour les résultats antérieurs à 2012 ; il est cependant difficile de relier cela à un changement de méthode car aucune réelle « rupture » dans la chronique ne peut être identifiée à partir de 2012.

Deux paramètres normalisateurs sont disponibles pour les métaux :

- la granulométrie, avec un suivi continu entre 2007 et 2014 ;
- le fer, avec des données entre 1990 et 2015 plus lacunaires : pour chacune des stations retenues, il manque les données entre 1997 et 2002, en 2008 et entre 2010 et 2012.

Normalisation par la concentration en fer

En dépit des lacunes observées dans le suivi, le fer présente plus de données que la granulométrie pour chacune des stations retenues. Il a donc été décidé d'étudier en premier lieu une normalisation par ce paramètre.

Le coefficient de variation de la concentration en fer sur ces 8 stations est en général supérieur à 20%, excepté pour les stations de Brebières et de Jeumont, où ils sont respectivement de 17% et 19%. La variabilité apparaît donc comme globalement suffisante pour étudier la corrélation entre les concentrations en métaux et la concentration en fer, même si le nombre de données par métal et par station est assez faible (n = 8 à 12). Des régressions linéaires par rapport à la concentration en fer ont été effectuées pour chaque métal et les coefficients de corrélation et de détermination ont été calculés. Les résultats sont présentés dans le Tableau 5. Les corrélations obtenues sont toutes positives ($R > 0$), c'est-à-dire que la concentration en métal dans le sédiment a tendance à augmenter avec la concentration en fer.

Tableau 5 : Coefficients de détermination (R^2) obtenus par régression linéaire entre les concentrations en métal et les concentrations en fer dans les sédiments pour les 8 stations de l'AEAP retenues sur la période 1991-2015.

CV : coefficient de variation ; n : nombre de données.

En vert : $R^2 > 0,75$; en jaune : $0,6 < R^2 < 0,75$.

Les corrélations avec une p-valeur $< 0,05$ sont indiquées par un *.

Station	CV Fe	As	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn
Jeumont	19%	0,055 (n = 12)	0,001 (n = 12)	0,001 (n = 12)	0,064 (n = 12)	0,215 (n = 12)	0,0004 (n = 8)	0,318 (n = 12)	0,001 (n = 11)
Noyelle-sur-Selle	28%	0,628* (n = 12)	0,823* (n = 12)	0,707* (n = 12)	0,919* (n = 12)	0,706* (n = 12)	0,941* (n = 9)	0,710* (n = 12)	0,919* (n = 11)
Verchain-Maugre	21%	0,479* (n = 12)	0,686* (n = 12)	0,461* (n = 12)	0,767* (n = 12)	0,273 (n = 12)	0,322 (n = 9)	0,389* (n = 12)	0,813* (n = 11)
Brebières	17%	0,383 (n = 12)	0,723* (n = 12)	0,626* (n = 12)	0,374 (n = 12)	0,598* (n = 12)	0,532* (n = 9)	0,850* (n = 12)	0,632* (n = 11)
Chocques	23%	0,025 (n = 12)	0,550* (n = 12)	0,717* (n = 12)	0,824* (n = 12)	0,851* (n = 12)	0,861* (n = 9)	0,588* (n = 12)	0,790* (n = 11)
Bambecque	23%	0,660* (n = 11)	0,860* (n = 12)	0,519* (n = 11)	0,450* (n = 11)	0,122 (n = 12)	0,948* (n = 9)	0,023 (n = 12)	0,070 (n = 10)
Saint-Momelin	33%	0,656* (n = 11)	0,420* (n = 12)	0,783* (n = 11)	0,488* (n = 11)	0,178 (n = 12)	0,914* (n = 9)	0,659* (n = 12)	0,616* (n = 11)
Epagne	32%	0,010 (n = 11)	0,218 (n = 12)	0,142 (n = 11)	0,212 (n = 11)	0,089 (n = 12)	0,888* (n = 9)	0,178 (n = 12)	0,888* (n = 9)

Toutes stations confondues, le nickel et le zinc sont les deux métaux dont la concentration présente le plus souvent une forte corrélation avec la concentration en fer. A l'inverse, les corrélations observées pour l'arsenic et le mercure sont moins marquées et majoritairement non significatives.

La station de Noyelle-sur-Selle est celle pour laquelle les corrélations les plus fortes entre les métaux et le fer sont obtenues : les coefficients sont supérieurs à 0,75 pour 4 métaux (Cd, Cu, Ni et Zn) et les coefficients des 4 autres métaux (As, Cr, Hg et Pb) sont compris entre 0,60 et 0,75, ce qui, sans être particulièrement élevé, reste une corrélation acceptable. Toutes les p-valeurs associées sont largement inférieures à 0,05 (la plus élevée, pour l'arsenic, est de 0,002). Le coefficient de variation de la concentration en fer sur cette station est de 28%, indiquant une variabilité relativement importante. A l'inverse, la station de Jeumont ne présente de corrélation significative pour aucun des métaux étudiés (p-valeurs supérieures voire très supérieures à 0,05) et la variabilité de la concentration en fer est l'une des plus faibles observées sur ces 8 stations (19%). Les autres stations font état de résultats intermédiaires entre ces deux « extrêmes ».

Une étude comparative des tendances calculées sur des données de métaux non-normalisées et des données normalisées a été réalisée sur les données de la station de Noyelle-sur-Selle, pour laquelle les corrélations entre les métaux et le fer sont les plus fortes observées. Le Tableau 6 décrit les chroniques à la station de Noyelle-sur-Selle en termes de présence ou d'absence de résultat pour chaque métal et chaque année (1 donnée par an lorsque le suivi a été effectué).

Tableau 6 : Disponibilité des résultats de mesure en métaux dans les sédiments sur la station de Noyelle-sur-Selle (gris : donnée disponible ; blanc : donnée absente)

	Fe	As	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Pb	Zn
1991	gris	gris	gris	gris	gris	gris	blanc	gris	gris
1992	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	blanc
1993	gris	gris	gris	gris	gris	gris	blanc	gris	gris
1994	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
1995	gris	gris	gris	gris	gris	gris	blanc	gris	gris
1996	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
1997	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
1998	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
1999	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2000	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2001	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2002	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2003	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2004	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2005	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2006	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2007	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	blanc
2008	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2009	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2010	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2011	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2012	blanc	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2013	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2014	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris
2015	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris	gris

Il s'agit donc de chroniques longues (supérieures à 10 ans). Six métaux (As, Cd, Cr, Cu, Hg et Pb) présentent un suivi continu sur l'ensemble de la période 1991-2015 ; le nickel et le zinc présentent respectivement 3 et 2 lacunes. En revanche, le fer présente uniquement 12 résultats de mesure répartis de manière irrégulière entre 1991 et 2015 ; aussi seuls les résultats obtenus sur les métaux aux mêmes années que pour le fer pourront être normalisés.

Une représentation graphique de l'évolution de la concentration en métaux (données non normalisées et données normalisées) en fonction du temps permet de formuler des hypothèses à partir des tendances observées *de visu*. Trois chroniques ont ainsi été étudiées :

- la chronique entière de données non-normalisées, c'est-à-dire pour l'ensemble des données entre 1991 et 2015 ;
- la chronique de données non-normalisées correspondant aux dates pour lesquelles une donnée sur le fer est également disponible (dite chronique « partielle ») ;
- la chronique de données normalisées par le fer, obtenue en divisant la concentration en métal par la concentration en fer pour les dates où ces deux données étaient disponibles.

Ces hypothèses sont indiquées dans le Tableau 7. L'exemple du chrome est détaillé dans la Figure 3.

Tableau 7 : Hypothèses sur les tendances des métaux dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle à partir des représentations graphiques temporelles sur la période 1991-2015

Métal	Non-normalisées (chronique entière)	Non-normalisées (chronique partielle)	Normalisées
As	Pas de tendance	Pas de tendance	Pas de tendance
Cd	Légère tendance à la baisse	Légère tendance à la baisse	Légère tendance à la baisse
Cr	Pas de tendance	Tendance à la baisse	Tendance à la baisse
Cu	Pas de tendance	Légère tendance à la baisse	Légère tendance à la baisse
Hg	Légère tendance à la baisse	Pas de tendance	Pas de tendance
Ni	Pas de tendance	Pas de tendance	Pas de tendance
Pb	Légère tendance à la baisse	Tendance à la baisse	Tendance à la baisse
Zn	Pas de tendance	Légère tendance à la baisse	Légère tendance à la baisse

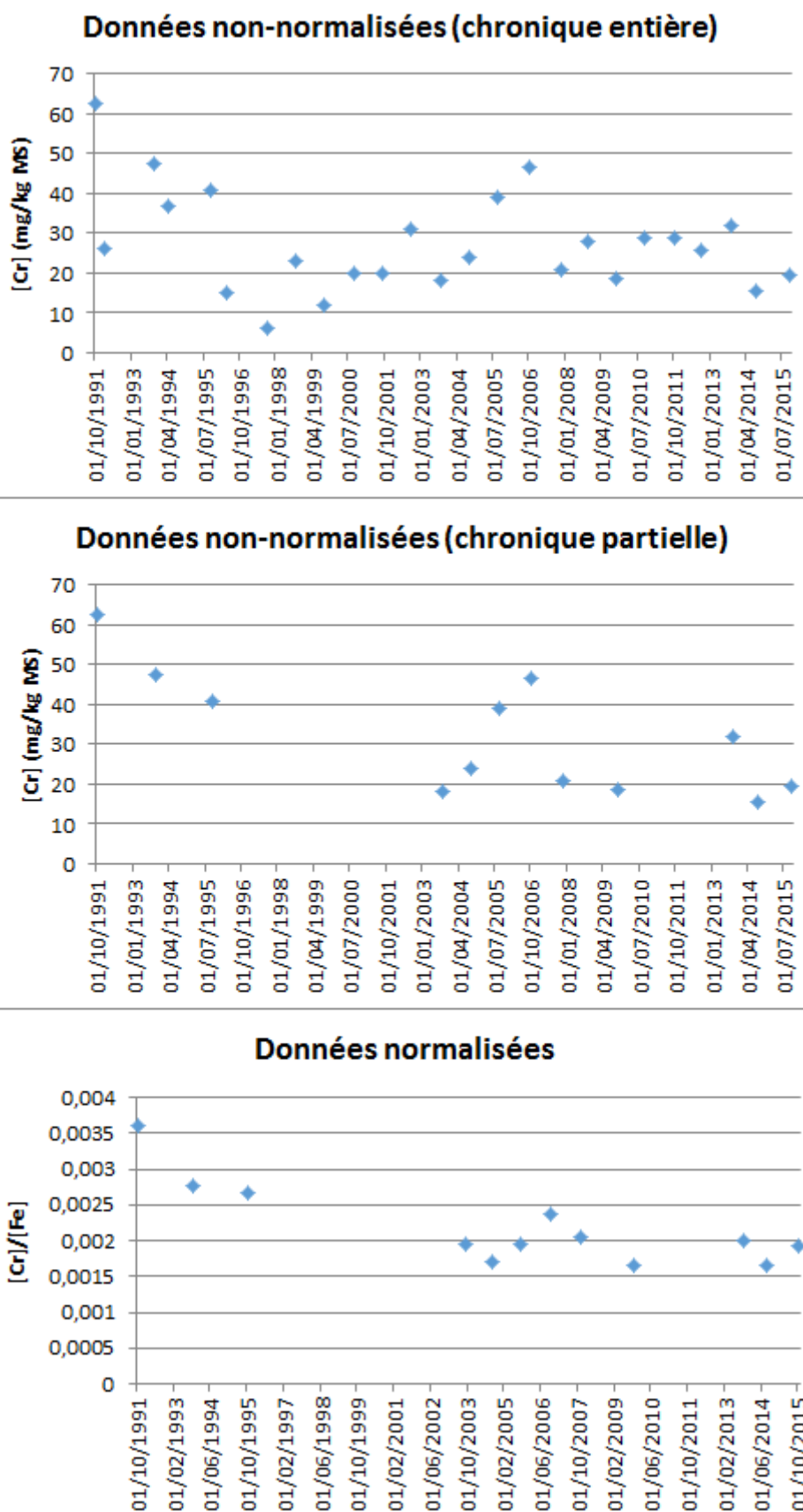


Figure 3 : Représentation graphique de l'évolution de la contamination en chrome des sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle pour les trois chroniques étudiées

Les données ont été mises en forme afin d'être exploitables par HYPE. Elles ont ensuite été introduites dans HYPE. Les résultats sur les tendances sont consignés dans le Tableau 8. A titre d'illustration, un exemple de résultats graphiques fournis par HYPE pour l'étude des tendances des métaux dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle est donné dans la Figure 4 (exemple du plomb). Pour rappel, en fonction de la caractérisation des données, HYPE n'applique pas forcément tous les tests statistiques disponibles ; en particulier, l'application de la régression linéaire suppose une distribution normale des données, ce qui n'est pas toujours le cas.

Tableau 8 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des concentrations en métaux dans les sédiments de la station Noyelle-sur-Selle pour comparer les chroniques normalisées ou non-normalisées (période étudiée : 1991-2015):

(n : nombre de données ; Chg Moy : Changement de moyenne ; MK : pente selon test de Mann-Kendall ; RL : pente de la régression linéaire)

Métal	Non-normalisé (chronique entière)					Non-normalisé (chronique partielle)					Normalisé				
	n	Tendances		Ruptures		n	Tendances		Ruptures		n	Tendances		Ruptures	
		Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date		Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date		Symbole	Pente (an ⁻¹)	Type	Date
As	25	→				12	→				12	→			
Cd	25	↘	-1,26.10 ⁻² (MK)	Chg Moy ↘	04/09/1998	12	↘	-1,43.10 ⁻² (MK)			12	→			
Cr	25	→		Chg Moy ↘	18/10/1995	12	↘	-1,23.10 ⁻² (MK) -1,41.10 ⁻² (RL)	Chg Moy ↘	18/10/1995	12	↘	-4,9.10 ⁻⁵ (MK)		
Cu	25	→		Chg Moy ↘	18/10/1995	12	→		Chg Moy ↘	05/10/2006	12	→			
Hg	25	↘	-4,31.10 ⁻³ (MK)			12	↘	-5,3.10 ⁻³ (MK)			12	→			
Ni	22	→		Chg Moy ↗	16/09/2003	9	→				9	→			
Pb	25	↘	-1,13 (RL)	Chg Moy ↘	18/10/1995	12	↘	-1,98 (MK) -2,07 (RL)	Chg Moy ↘	05/10/2006	12	↘	-8,15.10 ⁻⁵ (MK) -9,2.10 ⁻⁵ (RL)		
Zn	23	→				11	↘	-7,37 (MK) -6,65 (RL)	Chg Moy ↘	05/10/2006	11	↘	-2,57.10 ⁻⁴ (MK) -2,32.10 ⁻⁴ (RL)		

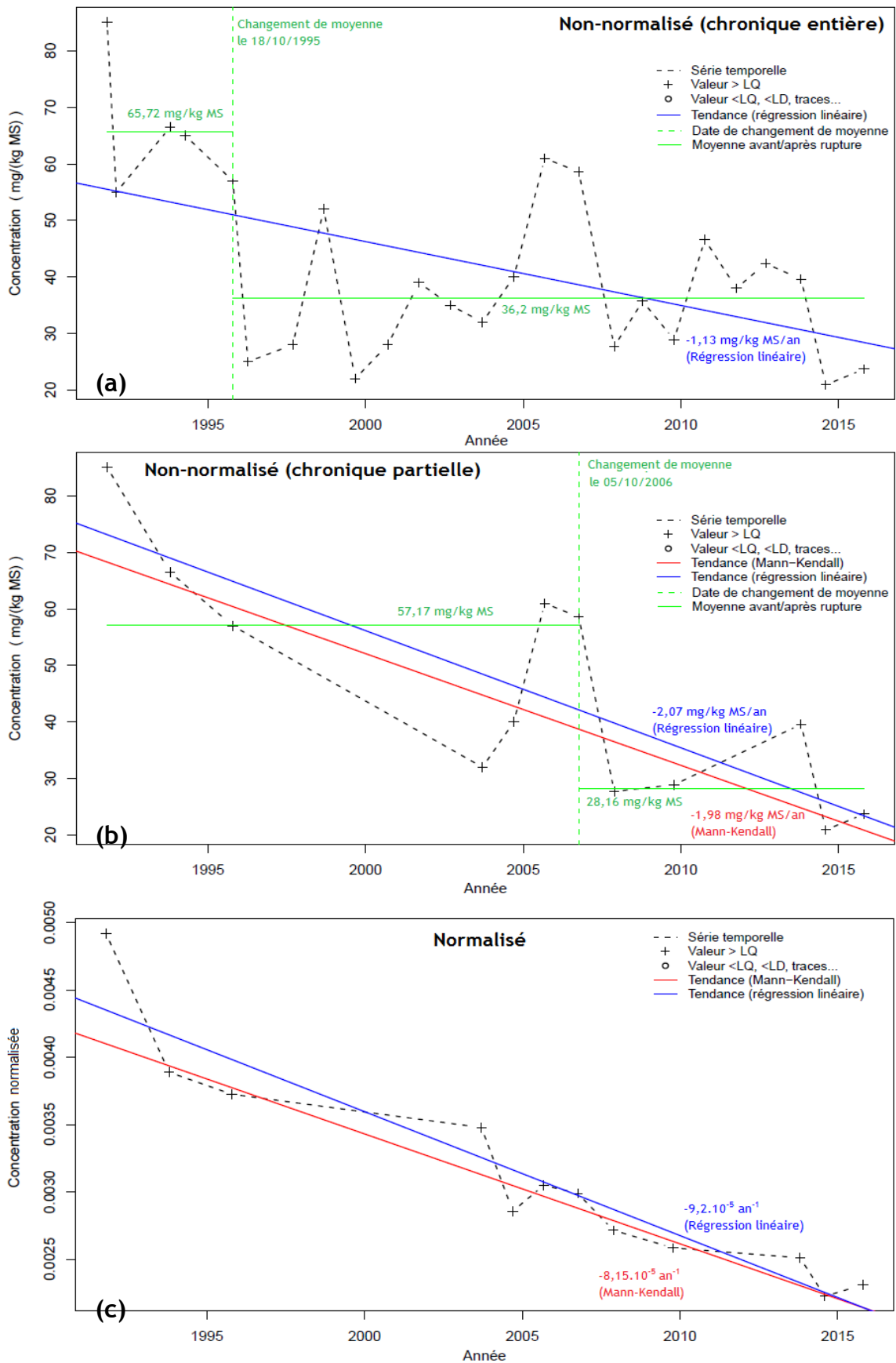


Figure 4 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le plomb dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle pour les trois chroniques étudiées
 Sur la chronique entière de données non-normalisées, on observe une absence de tendance significative pour 5 métaux (As, Cr, Cu, Ni et Zn). Les 3 autres métaux (Cd, Hg

et Pb) font état de tendances à la baisse sur l'ensemble de la chronique. Cette tendance est particulièrement marquée pour le plomb, la régression linéaire fournissant une pente de $-1,13 \text{ mg/kg MS/an}$ (cf. Figure 4a).

On observe également plusieurs changements de moyenne. Ceux-ci ne représentent pas une tendance à proprement parler mais permettent d'identifier une « rupture » dans la chronique qui peut permettre d'appuyer les résultats fournis par le test de Mann-Kendall et/ou la régression linéaire.

Il est ensuite possible de comparer :

- d'une part, les résultats obtenus sur les deux chroniques de données non-normalisées, ce qui permet d'évaluer l'impact d'une « dégradation » du jeu de données due aux lacunes dans le suivi ;
- d'autre part, les résultats obtenus sur la chronique partielle de données non-normalisées et sur la chronique de données normalisées.

La « dégradation » du jeu de données pour obtenir la chronique dite « partielle » conduit à la suppression de près de la moitié des données d'origine ($n = 22$ à 25 avant dégradation et $n = 9$ à 12 après dégradation ; à noter également que la plupart des valeurs retirées sont concentrées sur la période 1996-2002 ; cf. Tableau 6). Cette dégradation a peu d'influence sur les tendances observées pour 5 métaux sur les 8 étudiés :

- pour l'arsenic, le cuivre et le nickel, aucune tendance n'est détectée sur les deux chroniques ;
- pour le cadmium et le mercure, une tendance à la baisse est identifiée et les pentes données par le test de Mann-Kendall sont similaires dans les deux cas.

En revanche, sur la chronique partielle, la pente de la tendance à la baisse calculée pour le plomb est presque deux fois plus élevée que celle sur la chronique entière (cf. Figure 4a et Figure 4b). Il peut donc y avoir de fortes disparités entre deux chroniques s'étendant sur une même période mais avec un nombre de données différent. C'est pourquoi il est essentiel de travailler avec des chroniques présentant un maximum de données.

Par ailleurs, pour le chrome et le zinc, la dégradation du jeu de données fait apparaître une tendance à la baisse qui n'est pas identifiée sur la chronique entière. Cet effet est particulièrement marqué pour le zinc : en effet, la dégradation entraîne la perte de deux valeurs d'environ 500 et 300 mg/kg MS (les autres valeurs sont généralement inférieures à 300 mg/kg MS) en début de chronique (1994 et 1998) qui « tirent vers le haut » l'ensemble de la chronique (cf. Figure 5).

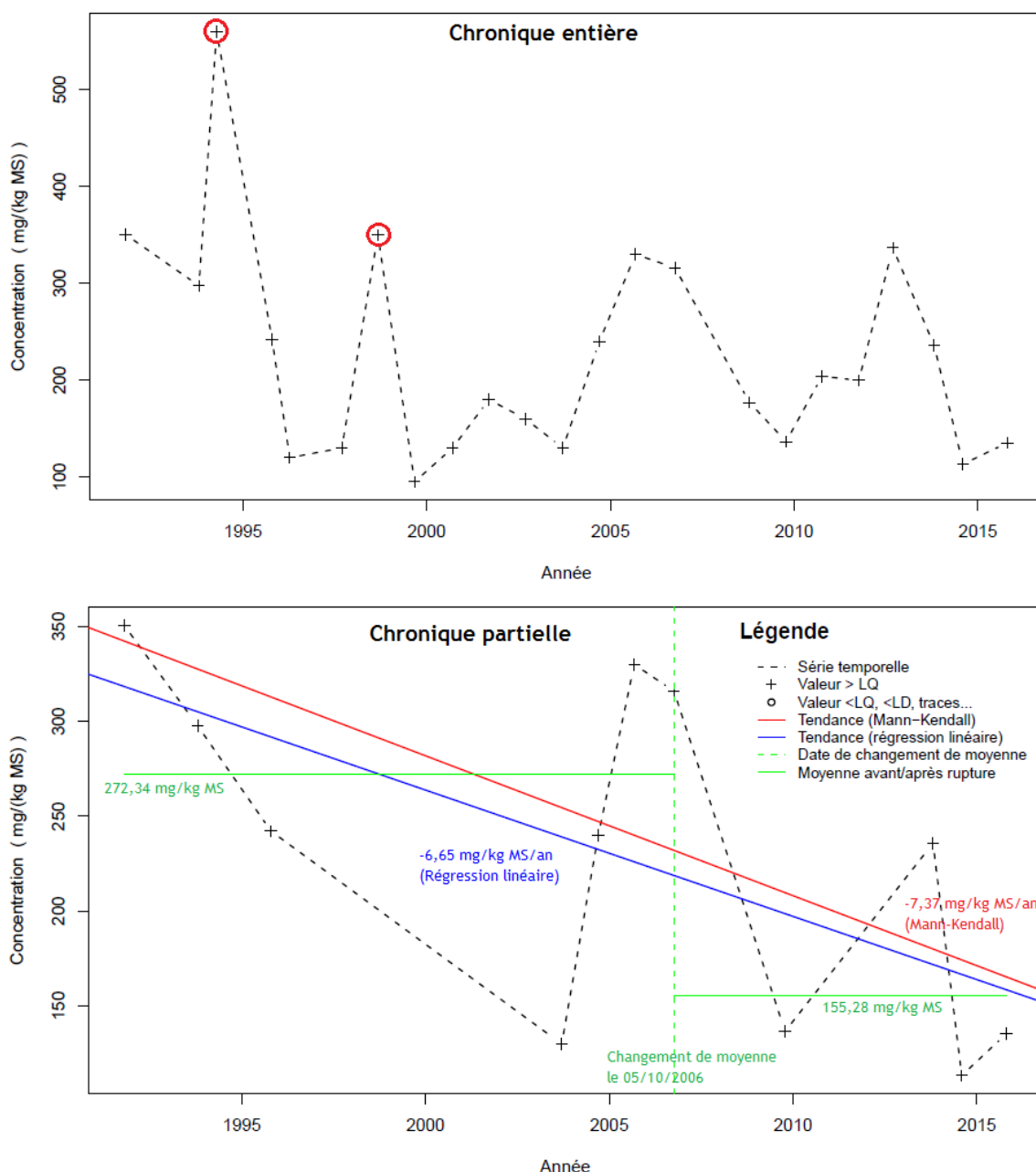


Figure 5 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE sur les données non-normalisées du zinc dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle

En haut : chronique entière ; en bas : chronique partielle

La suppression de deux valeurs élevées (entourées en rouge) de la chronique entière contribue à faire apparaître une tendance à la baisse.

Des disparités sont également observées au niveau des ruptures observées dans les chroniques. Ainsi, sur les chroniques de données non-normalisées, les ruptures observées peuvent être différentes entre la chronique entière et la chronique partielle (observation ou non de ruptures ou dates différentes). L'identification des ruptures est en effet très liée à la régularité du suivi effectué.

Cet exemple illustre ainsi le fait qu'il est capital de disposer d'un suivi des contaminants et des paramètres normalisateurs aussi régulier que possible afin d'éviter la perte d'information, notamment lors de la normalisation des données et pour

s'assurer que les tendances observées ne sont pas dues à une variabilité de la nature des sédiments prélevés.

Concernant la comparaison entre les données normalisées et les données non-normalisées, on obtient des tendances similaires pour 6 métaux sur 8 (As, Cr, Cu, Ni, Pb et Zn). Ainsi, dans le cas du plomb (cf. Figure 4b et Figure 4c), une tendance à la baisse est identifiée par le test de Mann-Kendall et par la régression linéaire. On observe également qu'un pic en 2005 sur les données non-normalisées du plomb (cf. Figure 4b) est « lissé » par la normalisation (cf. Figure 4c), montrant que la normalisation permet de réduire la variabilité des données.

Dans le cas du cadmium et du mercure, en revanche, la tendance à la baisse observée sur les données non-normalisées n'est pas retrouvée sur les données normalisées.

Dans l'ensemble, les résultats obtenus après l'exploitation des données par HYPE sont en bon accord avec les hypothèses établies au préalable *de visu* (cf. Tableau 7).

L'impact de la normalisation a de plus été évalué. Le Tableau 9 montre que cette opération permet effectivement de diminuer la variabilité des données.

Tableau 9 : Impact de la normalisation par le fer sur la variabilité des résultats obtenus sur les métaux dans les sédiments de la station de Noyelle-sur-Selle (n : nombre de valeurs ; R² : coefficient de corrélation ; CV : coefficient de variation) Les p-valeurs associées à R² sont toutes inférieures à 0,05.

Métal	n	R ²	CV chronique entière	CV chronique partielle	CV données normalisées (Fe)	Rapport CV chronique partielle / CV données normalisées
As	12	0,628	48%	30%	22%	1,3
Cd	12	0,823	79%	37%	16%	2,4
Cr	12	0,707	46%	47%	26%	1,8
Cu	12	0,919	40%	45%	21%	2,2
Hg	12	0,706	54%	61%	37%	1,7
Ni	9	0,941	40%	38%	11%	3,5
Pb	12	0,710	39%	45%	25%	1,8
Zn	11	0,919	50%	38%	16%	2,4

De manière logique, la réduction de la variabilité par la normalisation est d'autant plus manifeste que la corrélation entre les concentrations en contaminant et le paramètre normalisateur est forte : ainsi, plus le coefficient de détermination R² est élevé, plus le rapport entre le coefficient de variation des données non-normalisées et le coefficient de variation des données normalisées de la chronique partielle est élevé (Cd, Cu, Ni et Zn montrent ainsi des rapports supérieurs à 2 associés à des R² supérieurs à 0,80).

Normalisation par la granulométrie

Il est également possible d'envisager une normalisation des données de concentrations en métaux dans les sédiments par la granulométrie. En général, plus un sédiment présente une forte teneur en particules fines, plus sa concentration en éléments traces métalliques est élevée en raison d'une surface spécifique plus importante des particules fines pour l'adsorption des métaux. Ainsi, les concentrations en contaminants inorganiques sont communément corrigées par la fraction « inférieure à 63 µm » (code SANDRE 3047). D'autres fractions comme les fractions « inférieure à 20 µm » (code

SANDRE 6228) ou « inférieure à 40 μm » (code SANDRE 7176) sont également mentionnées dans une moindre mesure dans la littérature [5].

Dans les données de l'AEAP, le suivi de la granulométrie a été effectué depuis 2007. Les classes granulométriques étudiées ont varié au fil des années. Cependant, il est possible de calculer manuellement les proportions de particules de diamètre inférieur à 63 μm ou à 40 μm à partir des données disponibles pour obtenir un nombre suffisant (supérieur ou égal à 7) de données. A noter toutefois qu'en 2012, la classe « inférieure à 2 μm » a été reportée sous le libellé « *Particules inférieures à 2 μm* » et le code SANDRE 3050 (qui est gelé), alors que toutes les autres données ont été reportées sous le libellé « *Particules - Classe granulométrique : inférieure à 2 μm* » (code SANDRE 2842). Cela illustre bien l'importance d'une étude préliminaire des données disponibles afin d'identifier et de corriger les éventuelles erreurs de report de mesure et/ou de code SANDRE.

Le Tableau 10 résume la distribution des fractions granulométriques « inférieur à 63 μm » et « inférieur à 40 μm » pour les 8 stations retenues.

Tableau 10 : Caractérisation de la granulométrie des sédiments sur les stations AEAP retenues en termes de fractions granulométriques « inférieur à 63 µm » et « inférieur à 40 µm » sur la période 2007-2015

(n : nombre de données ; Min. : valeur minimale sur la chronique ; Max. : valeur maximale ; Moy. : valeur moyenne ; CV : coefficient de variation)

Station	n	Classe « inférieur à 63 µm »				Classe « inférieur à 40 µm »			
		Min.	Max.	Moy.	CV	Min.	Max.	Moy.	CV
Jeumont	9	61,3%	91,9%	74,0%	12%	50,5%	77,2%	61,2%	13%
Noyelle-sur-Selle	7	62,3%	84,18%	69,2%	11%	41,2%	68,9%	52,0%	19%
Verchain-Maugre	7	69,6%	82,9%	77,9%	6%	53,4%	65,9%	60,2%	8%
Brebières	8	62,5%	81,1%	74,6%	8%	49,1%	69,6%	63,1%	11%
Chocques	8	50,8%	79,8%	63,4%	19%	39,4%	66,2%	50,9%	20%
Bambecque	7	66,7%	88,1%	74,1%	10%	54,4%	77,1%	62,7%	13%
Saint-Momelin	8	70,2%	86,7%	76,4%	9%	56,8%	75,8%	66,5%	10%
Epagne	8	41,3%	73,5%	62,2%	18%	32,6%	60,4%	49,7%	20%

Dans l'ensemble, la variabilité sur ces deux fractions granulométriques n'excède pas 20% : sur chaque station, les échantillons prélevés au cours des différentes années sont donc relativement homogènes sur le plan de la granulométrie. Une normalisation par la granulométrie n'est donc pas strictement nécessaire, en particulier pour les stations de Verchain-Maugre, de Brebières et de Saint-Momelin, pour lesquelles les variabilités obtenues sont très faibles (inférieures ou égales à 10%).

L'étude d'une corrélation entre les données de concentrations en métaux et la granulométrie des sédiments est plus pertinente pour les stations sur lesquelles les variabilités observées sont les plus fortes, à savoir les stations de Chocques et d'Epagne (18-20%). Les résultats, obtenus sur seulement 6 ou 7 données en fonction des stations, sont peu satisfaisants : les coefficients de détermination R^2 obtenus sont faibles, souvent inférieurs à 0,5 (avec p-valeurs > 0,05), ce qui est insuffisant pour justifier une normalisation.

On observe toutefois une exception pour le zinc sur la station de Chocques, pour lequel une régression linéaire fournit un coefficient R^2 de 0,755 (p-valeur = 0,025) pour la fraction « inférieur à 40 µm » (cf. Figure 6). Pour la fraction « inférieur à 63 µm », la régression est moins significative ($R^2 = 0,616$ et p-valeur = 0,06). Seule la fraction « inférieur à 40 µm » a donc été retenue pour la normalisation des données du zinc sur cette station.

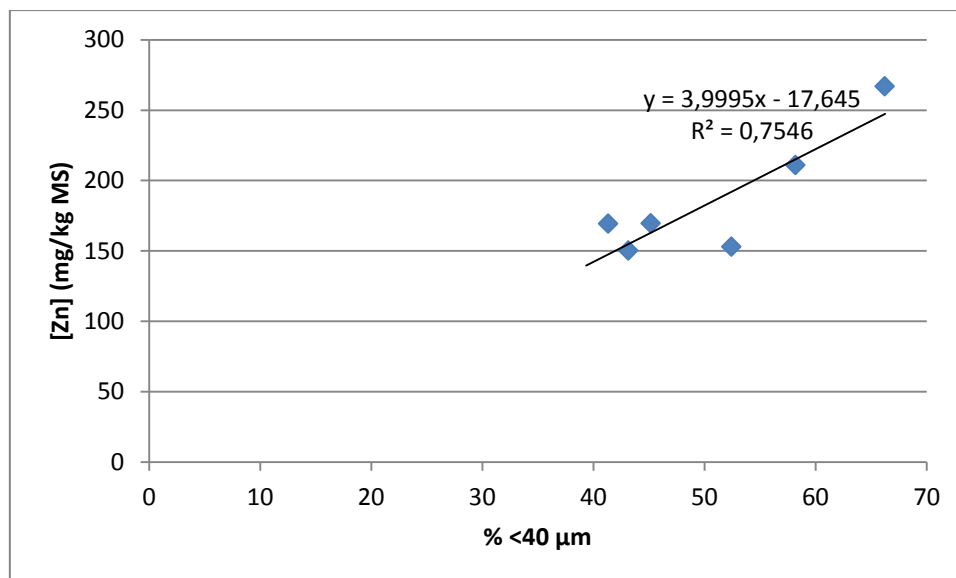


Figure 6 : Etude de la corrélation entre la concentration en zinc dans les sédiments et la proportion de particules fines, fraction « inférieur à 40 μm », à la station de Chocques

Une étude des tendances temporelles a donc été menée sur le zinc avec des données non-normalisées et des données normalisées (fraction < 40 μm uniquement) introduites dans le logiciel HYPE. Le faible nombre de données (seulement 6) ne permet pas d'effectuer de test de Mann-Kendall (qui requiert au minimum 10 données). Seule une régression linéaire peut être effectuée.

Dans les deux chroniques étudiées (données non-normalisées et données normalisées), aucune tendance significative n'est identifiée par HYPE. La portée de ce résultat est toutefois limitée par le faible nombre de données sur lequel il est basé, HYPE fournissant des résultats d'autant plus fiables qu'ils sont calculés à partir d'un grand nombre de données.

Par ailleurs, comme observé précédemment, l'opération de normalisation permet bien de diminuer la variabilité des données : le coefficient de variation sur les données est de 24% pour les données non-normalisées et de 12% pour les données normalisées par la proportion de particules « inférieur à 40 μm ».

Cette étude de cas explore ainsi deux des principales voies de normalisation pour les métaux. Elle permet d'illustrer l'applicabilité de la méthodologie proposée par AQUAREF pour l'évaluation des tendances temporelles dans les sédiments avec deux voies de normalisation : géochimique (avec Al ou Fe) ou granulométrique (avec les teneurs en particules fines).

Cependant, elle souligne également l'importance de disposer de chroniques qui soient à la fois suffisamment longues et comportant peu de lacunes. Une étude des tendances sur les sédiments sera d'autant plus pertinente qu'elle est effectuée sur une durée suffisamment longue pour espérer observer des changements significatifs. De plus, la normalisation d'un résultat de mesure ne peut être effectuée que si le suivi des paramètres normalisateurs est effectué de manière régulière. Sur ces chroniques de longueur acceptable, la variabilité des paramètres normalisateurs ainsi que la corrélation entre les concentrations en contaminants et les paramètres normalisateurs doivent être vérifiées.

Etude des données de sédiments concernant les micropolluants organiques

Outre la granulométrie (fractions « inférieur à 63 μm » et « inférieur à 40 μm ») déjà évoquée ci-dessus pour les métaux, les résultats d'analyse de micropolluants organiques peuvent être normalisés par la teneur en carbone organique total (COT) ou la perte au feu. Pour ces trois paramètres normalisateurs (granulométrie, COT et perte au feu), l'analyse des tendances des données AEAP est plus difficile car ces paramètres n'ont été suivis que depuis récemment. En effet :

- comme mentionné ci-dessus, les données sur la granulométrie n'ont été bancarisées que depuis 2007 (soit entre 7 et 9 données pour les stations listées dans le Tableau 3) ;
- la perte au feu n'est disponible qu'à partir de 2008 (6 à 8 données) ;
- la teneur en COT n'est disponible qu'à partir de 2010 (5 ou 6 données).

Les PCB présentent des fréquences de quantification élevées (supérieures à 80%) pour les stations de Brebières, de Jeumont et de Chocques (pour les PCB, LQ = 2 $\mu\text{g}/\text{kg}$ de 2007 à 2010 et LQ = 0,4 $\mu\text{g}/\text{kg}$ de 2011 à 2015). Les coefficients de variation de la perte au feu et de la teneur en COT sont supérieurs à 20%.

Sur les stations de Brebières et de Jeumont, aucune corrélation significative n'a pu être établie entre les concentrations en PCB et les mesures des trois paramètres normalisateurs utilisés ($R^2 < 0,5$ et $p > 0,05$ pour toutes les régressions linéaires effectuées).

Sur la station de Chocques, aucune corrélation significative n'a été établie entre les concentrations en PCB et la granulométrie (fractions « inférieur à 63 μm » et « inférieur à 40 μm »). De plus fortes corrélations avec la perte au feu et surtout la teneur en COT sont obtenues, mais ces corrélations ne sont pas significatives (p -valeurs de l'ordre de 0,1) et elles sont établies sur un nombre de données insuffisant ($n = 4$ et 6 respectivement pour perte au feu et COT) (cf. Tableau 11).

Tableau 11 : Corrélations établies entre les concentrations en PCB et la teneur en matière organique dans les sédiments prélevés sur la station de Chocques sur la période 2007-2015.
 En vert : $R^2 > 0,75$; en jaune : $0,6 < R^2 < 0,75$.

Substance	Corrélation avec perte au feu		Corrélation avec COT	
	Nombre de données	R ²	Nombre de données	R ²
PCB 101	6	0,539	4	0,760
PCB 118		0,544		0,734
PCB 138		0,499		0,672
PCB 153		0,502		0,584
PCB 52		0,556		0,808

En plus de la mauvaise qualité de la corrélation obtenue entre la concentration en PCB et la teneur en matière organique (estimée par perte au feu ou COT), une étude de ces données avec HYPE se heurte à trois obstacles majeurs :

- la longueur insuffisante des chroniques pour effectuer un test de Mann-Kendall (10 données minimum sont nécessaires) ;
- le nombre insuffisant de données normalisées par le COT pour effectuer une régression linéaire (5 données minimum sont nécessaires) ;
- la distribution non-normale de la plupart des données non-normalisées et normalisées par la perte au feu, qui exclut également l'application d'une régression linéaire.

Seul le PCB153, avec des données normalement distribuées, peut être traité par HYPE avec une régression linéaire. Les données non-normalisées ne montrent aucune tendance significative et la corrélation entre la concentration en PCB 153 et la teneur en matière organique (perte au feu ou COT) est insuffisante pour justifier une normalisation. La taille du jeu de données disponible (n = 4 à 6) est clairement insuffisante pour conclure avec confiance sur les tendances observées sur la période étudiée.

Le Tableau 12

Tableau 12 compare les coefficients de variation pour les données non-normalisées (uniquement les données qui pouvaient être normalisées par la perte au feu) et les données normalisées par la perte au feu. Les fortes valeurs observées pour ces coefficients de variation sur les données non-normalisées ($CV \geq 100\%$) peuvent être en partie expliquées par la présence d'un pic de contamination en 2011, avec des concentrations comprises entre 26 et 106 $\mu\text{g}/\text{kg}$ pour les différents PCB, alors que les autres résultats de la chronique étudiée sont tous inférieurs à 20 $\mu\text{g}/\text{kg}$.

Tableau 12 : Impact de la normalisation par la perte au feu sur la variabilité des résultats de PCB obtenus sur les sédiments prélevés sur la station de Chocques (CV = coefficient de variation)

Substance	Nombre de données	CV données non-normalisées	CV données normalisées (perte au feu)	Rapport CV données non-normalisées/CV données normalisées
PCB 101	6	131%	97%	1,4
PCB 118		121%	87%	1,4
PCB 138		100%	70%	1,4
PCB 153		101%	76%	1,3
PCB 52		157%	126%	1,2

On retrouve une réduction de la variabilité après normalisation. Cette réduction, d'un facteur 1,2 à 1,4, est moins importante que celle observée lors de la normalisation des concentrations en métaux par la concentration en fer (cf. Tableau 9) puisque les corrélations établies entre les concentrations en PCB et la perte au feu dans les sédiments sont moins marquées et moins significatives. Cependant, ces résultats ont été obtenus sur un nombre réduit de données.

Concernant les HAP, les fréquences de quantification pour les 9 substances étudiées (benzo(a)anthracène ; benzo(a)pyrène ; benzo(b)fluoranthène ; benzo(k)fluoranthène ; benzo(g,h,i)pérylène ; fluoranthène ; indéno(1,2,3-cd)pyrène ; phénanthrène et pyrène) sont supérieures à 90%.

De même que pour les PCB, aucune corrélation significative n'a pu être établie avec la proportion de particules « inférieur à 63 µm » (ni avec aucune autre classe granulométrique disponible dans les données AEAP). Cela montre qu'il est en effet difficile de déterminer la fraction granulométrique la plus adaptée pour une normalisation des concentrations en contaminants organiques et que cette dernière n'est pas toujours possible, comme cela avait été souligné dans le rapport AQUAREF de Lionard *et al.* [5].

Les corrélations obtenues entre les concentrations en HAP et les teneurs en matière organique varient fortement en fonction des stations : les stations de Brebières et de Jeumont présentent des corrélations significatives pour la plupart des HAP tandis que les stations de Chocques, Bambecques, Epagne, Saint-Momelin et Noyelle-sur-Selle ne montrent des corrélations significatives pour aucun HAP.

Les corrélations les plus significatives sont obtenues pour la plupart des HAP avec le COT pour la station de Jeumont ($R^2 > 0,8$ et p-valeurs $< 0,05$) (cf. Tableau 13). Seul le benzo(a)pyrène ne présente pas de corrélation significative avec la perte au feu (p-valeur = 0,19) ou en COT (p-valeur = 0,19).

Tableau 13 : Corrélations établies entre les concentrations en HAP et la teneur en matière organique dans les sédiments prélevés sur la station de Jeumont sur la période 2007-2014.
 En vert : $R^2 > 0,75$; en jaune : $0,6 < R^2 < 0,75$
 Les corrélations avec une p-valeur $< 0,05$ sont indiquées par un *

Substance	Corrélation avec perte au feu		Corrélation avec COT	
	Nombre de données	R ²	Nombre de données	R ²
Benzo(a)anthracène	7	0,787*	5	0,934*
Benzo(a)pyrène		0,313		0,483
Benzo(b)fluoranthène		0,757*		0,859*
Benzo(k)fluoranthène		0,637*		0,961*
Benzo(g,h,i)pérylène		0,860*		0,892*
Fluoranthène		0,616*		0,815*
Indéno(1,2,3-cd)pyrène		0,826*		0,823*
Phénanthrène		0,726*		0,911*
Pyrène		0,655*		0,925*

Cependant, ces résultats doivent être nuancés, comme pour les PCB sur la station de Chocques, car ils résultent d'un nombre restreint de données (7 et 5 valeurs respectivement pour la corrélation des HAP avec la perte au feu et la teneur en COT).

Les données sur les HAP ont ensuite été introduites dans HYPE. Toutes les substances ont fait l'objet d'une étude des tendances avec une régression linéaire (le test de Mann-Kendall n'étant pas applicable), sauf le benzo(a)pyrène dont les données n'étaient pas normalement distribuées. Aucune tendance significative n'a été identifiée pour ces 9 HAP, sur les chroniques de données non-normalisées (entières et partielles) comme sur les chroniques de données normalisées.

Le Tableau 14 détaille les coefficients de variation pour les données non-normalisées, les données normalisées par la teneur en COT et les données normalisées par la perte au feu, à la station de Jeumont sur la période 2007-2014.

Tableau 14: Impact de la normalisation par la teneur en matière organique sur la variabilité des résultats de HAP obtenus sur les sédiments prélevés à la station de Jeumont sur la période 2007-2014 (n : nombre de données ; CV : coefficient de variation)

HAP	CV ₀ données non-normalisées (n = 9)	CV ₁ données normalisées par perte au feu (n = 7)	CV ₂ données normalisées par COT (n = 5)	Rapport CV ₀ /CV ₁	Rapport CV ₀ /CV ₂
Benzo(a) anthracène	51%	32%	17%	1,6	3,0
Benzo(a) pyrène	98%	82%	84%	1,2	1,2
Benzo(b) fluoranthène	42%	22%	16%	1,9	2,6
Benzo(k) fluoranthène	57%	37%	11%	1,5	5,2
Benzo(g,h,i) pérylène	46%	25%	18%	1,8	2,6
Fluoranthène	50%	35%	19%	1,4	2,6
Indéno(1,2,3-cd)pyrène	62%	51%	65%	1,2	0,95
Phénanthrène	46%	30%	14%	1,4	3,3
Pyrène	53%	38%	21%	1,4	2,5

On retrouve une réduction de la variabilité après normalisation (excepté pour l'indéno(1,2,3-cd)pyrène avec la teneur en COT, probablement en raison d'un résultat d'indéno(1,2,3-cd)pyrène non quantifié qui induit une forte variabilité par rapport aux autres données). Les corrélations obtenues étant plus importantes pour la teneur en COT, la réduction de la variabilité est d'autant plus marquée. Il est rappelé toutefois que cette normalisation est effectuée sur moins de données que pour la perte au feu.

La méthodologie proposée par AQUAREF pour l'évaluation des tendances dans les sédiments doit être mise en œuvre sur des chroniques de données respectant certains critères pour garantir une étude fiable. L'utilisation d'un outil statistique robuste, tel que le logiciel HYPE, pour de telles études, impose de disposer de chroniques de données suffisamment longues et présentant peu de lacunes, pour les contaminants comme pour les paramètres normalisateurs, pour faire l'objet d'une étude pertinente. Si les chroniques ne respectent pas ces critères, l'évaluation des tendances sera moins fiable.

4.2 COMPARAISON DU SUIVI DES CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS ET DANS LES MATIERES EN SUSPENSION

L'objectif de cette section est d'évaluer les tendances temporelles calculées par HYPE sur des données de sédiments et de MES obtenues sur les mêmes stations. En effet, l'AERM effectuée depuis plusieurs années un suivi mensuel des MES, qui peut apporter des informations et des pistes intéressantes vis-à-vis de l'étude des tendances. Notamment, le suivi des MES cible les particules fines en suspension, ce qui peut être considéré comme un « sous-échantillonnage » d'une fraction granulométrique

relativement homogène dans le temps et dans l'espace (généralement <200/300 µm). En comparaison, les particules des sédiments de surface sont généralement plus grossières et peuvent atteindre 2000 µm de diamètre. Le fait de cibler les particules fines peut être assimilé à une « normalisation opérationnelle » (non numérique, *i.e.* la normalisation n'est pas effectuée sur les données mais sur le prélèvement en lui-même). Le suivi des MES permet ainsi de s'affranchir d'une étape de normalisation numérique au moment de l'exploitation des données. Par ailleurs, le suivi mensuel des MES permet de générer rapidement des chroniques comportant suffisamment de données pour être exploitées par HYPE.

4.2.1 Caractérisation des données

Les données utilisées dans cette étude de cas ont été fournies par l'AERM et s'ajoutent à celles de la station de Sierck précédemment étudiées dans le rapport AQUAREF de Lionard *et al.*, 2015 [5]. Il s'agit de données de métaux et de contaminants organiques dans les sédiments et MES sur 6 stations réparties sur la portion nord-est du bassin Rhin-Meuse (cf. Tableau 15).

Tableau 15 : Stations AERM étudiées

Code SANDRE station	Libellé station	Cours d'eau
2001050	Rhinau	Rhin
2001700	Gambsheim	Rhin
2060750	Liverdun	Moselle
2094900	Sierck	Moselle
2099500	Sarreinsming	Sarre
2124000	Givet	Meuse

Comme pour les données de l'AEAP, une caractérisation globale de ces données est présentée ci-dessous.

Matrices : ces 6 stations ont été choisies car elles présentent l'avantage de faire l'objet d'un suivi à la fois sur les sédiments et sur les MES. Il est donc possible d'effectuer des estimations de tendance sur ces deux matrices et de comparer les résultats obtenus. Le suivi des MES est généralement mensuel (12 données par an) et comporte donc beaucoup plus de données que le suivi annuel des sédiments (1 donnée par an).

Durée des chroniques : trois de ces stations (Liverdun, Sierck et Sarreinsming) ont des chroniques qui, toutes substances confondues, comprennent une vingtaine d'années au moins (entre 1992 et 2014). Cependant, le suivi est parfois très lacunaire, rendant difficile, voire impossible, une estimation des tendances pour certains contaminants. Pour les stations de Rhinau et de Gambsheim, le suivi est plus court, entre 2007 et 2013, mais moins lacunaire. Enfin, la station de Givet, dont le suivi commence également en 2007, ne comporte aucune donnée sédimentaire pour les années 2011, 2012 et 2013.

Substances suivies : les données comprennent des concentrations pour les métaux (8 substances), les HAP (17 substances), les PCB (7 substances) et le DEHP.

Quantification : sur l'ensemble des stations étudiées, des taux de quantification supérieurs à 80% sont observés pour les métaux et certains HAP (les 9 HAP étudiés avec les données AEAP). En revanche, les PCB et le DEHP présentent des taux de quantification souvent inférieurs à 30%, ce qui rend leur étude dans le cadre d'une

évaluation des tendances peu pertinente. L'étude des tendances sur ces 6 stations de l'agence AERM porte donc sur les métaux et les HAP.

Normalisation : en ce qui concerne les paramètres normalisateurs, le suivi est inégal.

- Les données de granulométrie n'ont été bancarisées qu'à partir de 2011 pour ces 6 stations ; il n'est donc pas possible d'utiliser ce paramètre pour la normalisation.
- Pour les métaux, **le fer et l'aluminium** ont été suivis. Cependant, pour les stations de Givet, de Liverdun et de Sarreinsming, ce suivi ne recouvre celui des métaux que sur une courte durée (entre 2 et 5 ans). Le recouvrement est en revanche plus important pour les stations de Rhinau et de Gamsheim, pour lesquelles l'aluminium, le fer et les autres métaux ont été suivis sans interruption entre **2007 et 2013** (soit 7 ans).
- Pour les micropolluants organiques, le **carbone organique total** est le seul paramètre ayant fait l'objet d'un suivi relativement long et régulier. Sur les stations à chroniques longues (≥ 20 ans) Sierck et Sarreinsming, le suivi ne présente quasiment aucune lacune (une en 2011 pour Sierck). Sur la station de Liverdun, seules deux lacunes (de 1997 à 1999 et de 2011 à 2012) sont observées sur la période 1992-2013. Les stations de Rhinau et Gamsheim font état d'un suivi ininterrompu sur l'ensemble de la chronique (2007-2013). Enfin, sur la station de Givet, seules les données MES montrent un suivi continu sur la période 2007-2013. La perte au feu, en revanche, n'a été suivie, au mieux, que depuis 2011.

Les métaux et les HAP étudiés dans les données AERM sont les mêmes que ceux indiqués dans le Tableau 4.

4.2.2 Exploitation des chroniques de données de sédiment et de MES

La méthodologie d'estimation des tendances temporelles détaillée dans la section 3 peut également être appliquée sur des données obtenues sur des MES. L'objectif de l'étude de cas effectuée avec les données de l'AERM est de comparer les résultats fournis par une étude de tendances menée sur les sédiments et sur les MES. Tout comme pour les données AEAP, une distinction est faite entre l'étude des données sur les métaux et l'étude des données sur les micropolluants organiques (HAP).

Etude des données sédiment et MES sur les métaux

Une étude préliminaire des données fournies par l'AERM permet d'identifier plusieurs changements de méthode qui affectent la continuité de la qualité des données sur la durée de la chronique. Le cas déjà évoqué du cadmium dans les données MES de la station Gamsheim, illustré sur la Figure 1, en est un exemple. Sur les données brutes, un changement de méthode d'analyse est identifié en janvier 2011 (passage de la méthode NF EN ISO 11885 [dosage par ICP-AES] [14] - code SANDRE 306 - à la méthode NF EN ISO 15586 [dosage par AAS] [15] - code SANDRE 425). Les données de sédiments montrent le même effet de changement de méthode pour le cadmium (cf. Figure 7).

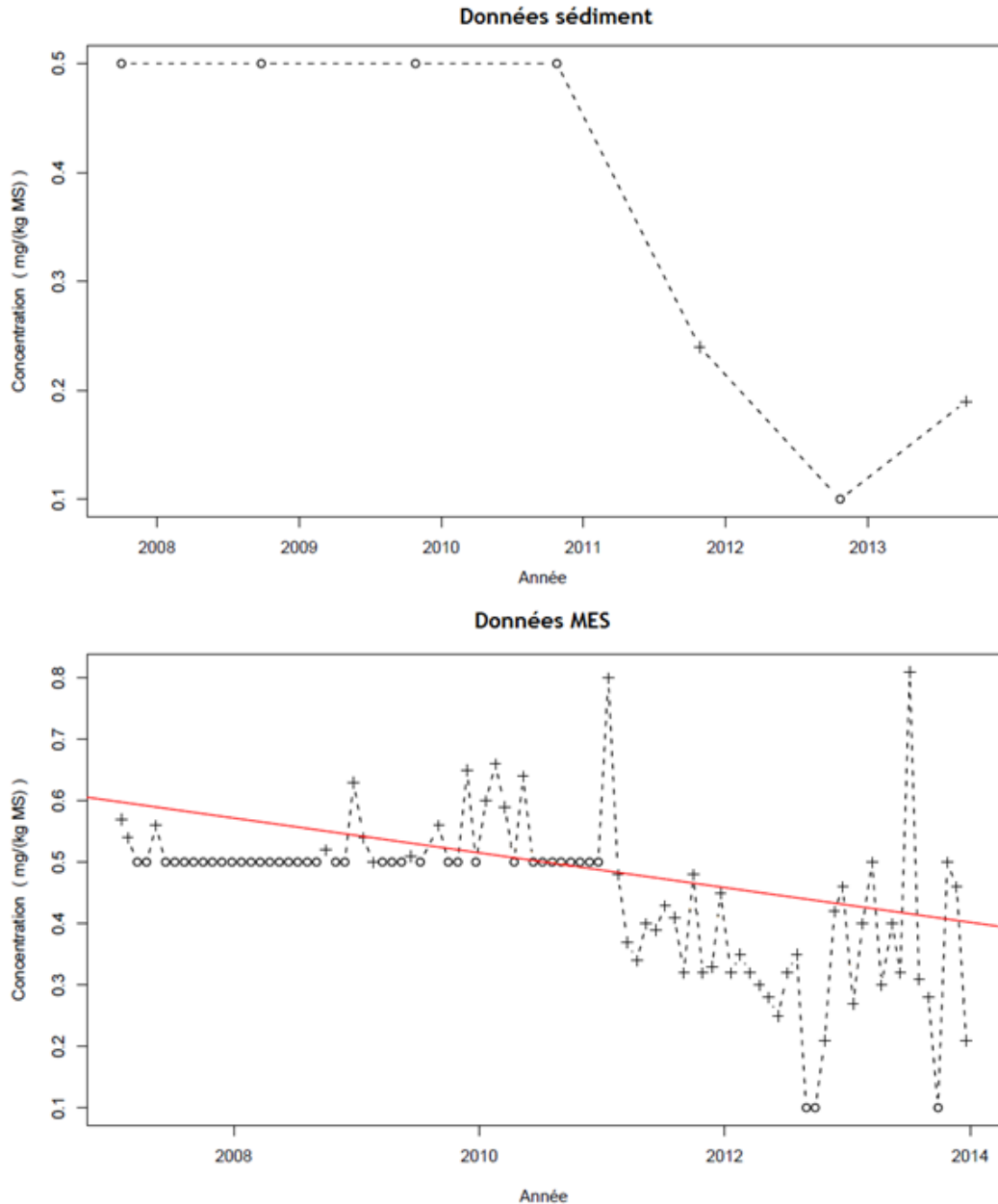


Figure 7 : Représentation graphique (2007-2013) de la concentration en cadmium dans les sédiments (en haut) et dans les MES (en bas) de la station Gamsheim (° : donnée non quantifiée ; + : donnée quantifiée ; ligne rouge : tendance selon test de Mann-Kendall effectué par HYPE)

Ce changement de méthode analytique pour le cadmium est également identifié pour les données de la station de Rhinau. Les résultats obtenus pour les concentrations en mercure dans les sédiments et MES de la station de Sarreinsming montrent également plusieurs changements de méthode (dont une période de 3 ans entre 2001 et 2003 où la méthode d'analyse est indiquée comme étant « non fixée » ou « inconnue »). Les données concernant ces paramètres sont donc à manipuler avec précaution.

D'autres changements de méthode ont été identifiés (ex : pour le nickel sur les stations de Rhinau et de Gamsheim), mais les changements de LQ qui en résultent n'ont pas - ou peu - d'incidence sur l'étude des tendances car les résultats sont quantifiés avant et après le changement de méthode.

Contrairement aux données de l'AEAP, les données fournies par l'AERM ne comportent pas de suivi granulométrique suffisamment long pour permettre une normalisation par ce paramètre. Une normalisation géochimique peut en revanche être envisagée. Deux cofacteurs sont pour cela disponibles : l'aluminium et le fer.

Au vu des données disponibles, il est d'ores et déjà possible d'écarter les données (sédimentaires et/ou MES) de certaines stations, notamment en raison de la durée trop courte de ces suivis :

- Liverdun : sur les sédiments et les MES, les suivis de l'aluminium, du fer et des autres métaux étudiés ne se recoupent au mieux que sur 5 ans. Ces données sont donc difficilement exploitables car les deux chroniques ne pourront pas être comparées ;
- Givet : les données de métaux (y compris l'aluminium et le fer) dans les sédiments ne comportent qu'entre 1 et 4 résultats sur l'ensemble de la période disponible (2006-2013) ;
- Sarreinsming : sur les sédiments, les suivis de l'aluminium et du fer et des autres métaux étudiés ne se recoupent au mieux que sur 4 années.

Sur les 3 autres stations (Sierck, Gamsheim et Rhinau), une étude de corrélation entre les métaux et l'aluminium et entre les métaux et le fer peut être faite, sur une durée de 7 ans (de 2007 à 2013). L'étude est donc focalisée sur ces trois stations, qui peuvent faire l'objet des comparaisons les plus complètes et les plus pertinentes à partir des chroniques de contamination des sédiments et des MES.

Le Tableau 16 présente les coefficients de variation des résultats en fer et en aluminium dans les sédiments et les MES sur les trois stations considérées. Comme cela a été évoqué précédemment, la normalisation est d'autant plus pertinente que les échantillons prélevés présentent une forte hétérogénéité, la normalisation ayant pour but de s'affranchir de la variabilité naturelle des particules prélevées.

Tableau 16 : Coefficients de variation (CV) des résultats en Al et Fe dans les sédiments et les MES pour les stations de Rhinau, de Gamsheim et de Sierck sur la période 2007-2013

Station	CV données sédiment (n = 7)		CV données MES (n = 90 ou 92) ¹	
	Al	Fe	Al	Fe
Rhinau	25%	27%	26%	25%
Gamsheim	28%	8%	20%	17%
Sierck	62%	40%	31%	23%

¹n = 90 pour Rhinau et Gamsheim et 92 pour Sierck

La station de Sierck est celle pour laquelle la variabilité la plus forte est observée dans les sédiments pour les deux cofacteurs de normalisation géochimique (62% pour Al et 40% pour Fe). Pour les deux autres stations, les coefficients de variations sont faibles (en particulier pour le fer à la station de Gamsheim avec un coefficient de variation de 8% pour les sédiments) à modérés (25-28%), traduisant une plus grande homogénéité des sédiments (vis-à-vis de la composition géochimique) prélevés sur ces deux stations par rapport à ceux prélevés sur la station de Sierck au cours de la même période.

La plupart des valeurs du Tableau 16 étant supérieures à 20%, une étude des corrélations entre les concentrations en métaux et la concentration en paramètre normalisateur (Al ou Fe) dans les sédiments et les MES a été réalisée pour les trois stations et pour les deux paramètres normalisateurs (Al ou Fe). Le Tableau 17 présente les résultats de l'étude des corrélations.

Tableau 17 : Etude de la corrélation (R^2) entre les concentrations en métaux et les concentrations en Al ou Fe dans les sédiments et les MES pour les trois stations AERM considérées sur la période 2007-2013

(SED = données sédimentaires ; MES = données MES ; n = nombre de données)

En vert : $R^2 > 0,75$; en jaune : $0,6 < R^2 < 0,75$; en gris : régression non calculée (fréquence de quantification < 50%)

Les corrélations avec une p-valeur < 0,05 sont indiquées par un *

Métal	Rhinau				Gambshheim				Sierck			
	SED (n = 7)		MES (n = 90)		SED (n = 7)		MES (n = 90)		SED (n = 7)		MES (n = 68 ou 92) ¹	
	Al	Fe	Al	Fe	Al	Fe	Al	Fe	Al	Fe	Al	Fe
As	0,074	0,222	0,371	0,328	0,063	0,645*	0,105	0,129	0,721*	0,729*	0,042	0,045
Cd			0,024	1E-05			0,003	0,144	0,098	0,229	0,180	0,181
Cr	0,327	0,246	0,100	0,069	0,023	0,253	0,384	0,297	0,702*	0,716*	0,128	0,111
Cu	0,348	0,504	0,120	0,109	0,165	0,743*	0,194	0,380	0,638*	0,655*	0,036	0,067
Hg	0,322	0,140	0,067	0,004	0,530	0,439	0,078	0,013	0,817*	0,654*	0,087	0,002
Ni	0,271	0,786*	0,012	0,027	0,075	0,243	0,327	0,471	0,699*	0,699*	0,108	0,150
Pb	0,308	0,303	0,058	0,120	0,059	0,107	0,057	0,084	0,298	0,365	0,029	0,009
Zn	0,399	0,129	0,124	0,063	0,836*	0,283	0,222	0,227	0,295	0,312	0,002	0,021

¹n = 68 pour As, Cr, Cu et Zn et n = 92 pour Cd, Hg, Ni et Pb

Pour les données sédiments sur la station de Sierck, on observe d'assez bonnes corrélations ($R^2 > 0,6$) avec Al et Fe pour l'arsenic, le chrome, le cuivre, le mercure et le nickel, que le cofacteur considéré soit l'aluminium ou le fer (p-valeurs < 0,05). Cela peut être mis en relation avec le fait que c'est sur cette station que la variabilité du fer et de l'aluminium dans les sédiments est la plus élevée (cf. Tableau 16).

En revanche, aucune corrélation n'est établie entre les concentrations en métaux et la concentration en aluminium ou en fer dans les MES : toutes stations et substances confondues, le R^2 maximum (0,471) obtenu concerne les données du nickel par rapport au fer sur la station Gambshheim. Il apparaît donc peu pertinent de corriger les résultats obtenus sur MES selon une normalisation géochimique.

Comme indiqué en début de section, la normalisation des données MES n'est pas forcément nécessaire étant donné que le prélèvement des MES cible les particules fines et opère donc, en quelque sorte, une normalisation par la granulométrie au moment du prélèvement.

La normalisation n'apparaît donc pertinente que pour les données sur les sédiments de la station de Sierck. A ce stade de l'étude, afin de comparer directement les jeux de données sur sédiment et sur MES, seules les données brutes ont été considérées. La normalisation des données sur les sédiments de la station de Sierck est explorée dans une autre section de ce rapport (cf. section 4.2.3).

Les tendances calculées sur les données non-normalisées de sédiment et de MES ont été comparées pour les trois stations. Les Tableau 18, Tableau 19 et Tableau 20 indiquent les résultats obtenus pour les stations de Sierck, Gambshheim et Rhinau, respectivement.

Pour les données MES concernant le cadmium sur les stations de Gamsheim et de Rhinau, l'étude des tendances a été effectuée uniquement sur les données quantifiées postérieures à 2011 en raison du changement de méthode identifié lors de l'étude préliminaire des données.

Tableau 18 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des métaux dans les sédiments et les MES de la station de Sierck sur la période 1993-2014

(n : nombre de données ; Chg. Moy. : changement de moyenne ; Inversion : inversion de tendances ; MK : pente selon test de Mann-Kendall ; RL : pente de la régression linéaire)

Métal	Données sédiment					Données MES				
	n	Tendances		Ruptures		n	Tendances		Ruptures	
		Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date		Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date
As	21	→		Chg. Moy. ↘	11/9/2006	222	↗	0,169 (MK)	Chg. Moy. ↗ Inversion →↘	04/08/2005 02/08/2011
Cd		→				245	→		Inversion ↗↘ Chg. Moy. ↘	21/09/1995 15/02/2011
Cr		→		Chg. Moy. ↘	11/9/2006	221	↘	-0,525 (MK)	Chg. Moy. ↘	15/02/2011
Cu		→		Chg. Moy. ↗	6/10/2009	222	↗	6,78 (MK)	Inversion ↗↘	30/08/2011
Hg		↘	-3,47.10 ⁻² (MK)	Chg. Moy. ↘	11/9/2006	245	↘	-9,89.10 ⁻³ (MK)	Inversion ↘↗	30/09/2008
Ni		↘	-1,41 (MK) -1,53 (RL)	Chg. Moy. ↘	11/9/2006	246	↘	-6,98 (MK)	Inversion ↘↗	03/07/2013
Pb		→				245	↘	-3,89 (MK)	Inversion ↘↗	13/02/2013
Zn		→				222	↘	-1,98 (MK)	Inversion ↗↘	17/10/1996

Tableau 19 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des métaux dans les sédiments et les MES de la station de Gamsheim sur la période 2007-2013

(n : nombre de données ; Chg. Moy. : changement de moyenne ; Inversion : inversion de tendances ; MK : pente selon test de Mann-Kendall)

Les données MES sur le cadmium n'ont été exploitées qu'après 2011 (n = 38)

Métal	Données sédiment (n = 7)				Données MES (n = 90)			
	Tendances		Ruptures		Tendances		Ruptures	
	Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date	Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date
As	→				→		Inversion ↘→	02/10/2007
Cd	Pas de test effectué (données non normalement distribuées)				→		Inversion ↘→	06/07/2012
Cr	→				→			
Cu	→				→		Chg. Moy. ↘	11/05/2010
Hg	→				→			
Ni	→				↘	-0,566 (MK)	Chg. Moy. ↘	30/09/2011
Pb	Pas de test effectué (données non normalement distribuées)				↘	-0,931 (MK)	Chg. Moy. ↘	11/05/2010
Zn	→				→			

Tableau 20 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des métaux dans les sédiments et les MES de la station de Rhinau sur la période 2007-2013

(n : nombre de données ; Chg. Moy. : changement de moyenne ; Inversion : inversion de tendances ; MK : pente selon test de Mann-Kendall)

Les données MES sur le cadmium n'ont été exploitées qu'après 2011 (n = 38)

Métal	Données sédiment (n = 7)				Données MES (n = 89)			
	Tendances		Ruptures		Tendances		Ruptures	
	Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date	Symbole	Pente (mg/kg MS/an)	Type	Date
As	→				→			
Cd	Pas de test effectué (données non normalement distribuées)				→		Inversion ↘→	05/07/2012
Cr	→				→			
Cu	Pas de test effectué (données non normalement distribuées)				→		Chg. Moy. ↘	17/03/2010
Hg	→				→		Inversion ↘→ Chg. Moy. ↗	01/10/2007 19/01/2011
Ni	→				↘	-0,62 (MK)		
Pb	→				↘	-0,643 (MK)	Chg. Moy. ↘	03/09/2008
Zn	→				→		Inversion ↘→	01/10/2007

Les résultats obtenus sur la station de Sierck (Tableau 18) proviennent de chroniques plus longues que celles des stations de Gamsheim et de Rhinau (Tableau 19 et Tableau 20) : 22 ans (1993-2014) contre 7 ans (2007-2013).

Pour la station de Sierck :

- seuls le mercure et le nickel montrent des tendances significatives (à la baisse) dans les données de sédiments. Les autres métaux ne présentent pas de tendances significatives dans les données de sédiments ;
- des tendances significatives à la baisse sont également identifiées pour le mercure et le nickel dans les données MES. De plus, aucune tendance significative n'est observée pour le cadmium dans les données MES, résultat également observé dans les sédiments ;
- des tendances significatives, à la hausse (arsenic et cuivre) comme à la baisse (chrome, plomb et zinc) sont observées dans les données MES alors qu'elles ne sont pas observées dans les sédiments (cf. Figure 8 pour le zinc et Figure 9 pour le chrome) ;
- cependant, sur les données de sédiments pour le chrome et le cuivre (sans tendance significative), des changements de moyenne de même sens que les tendances globales identifiées sur les données MES (à la baisse pour Cr et à la hausse pour Cu) sont parfois identifiés.

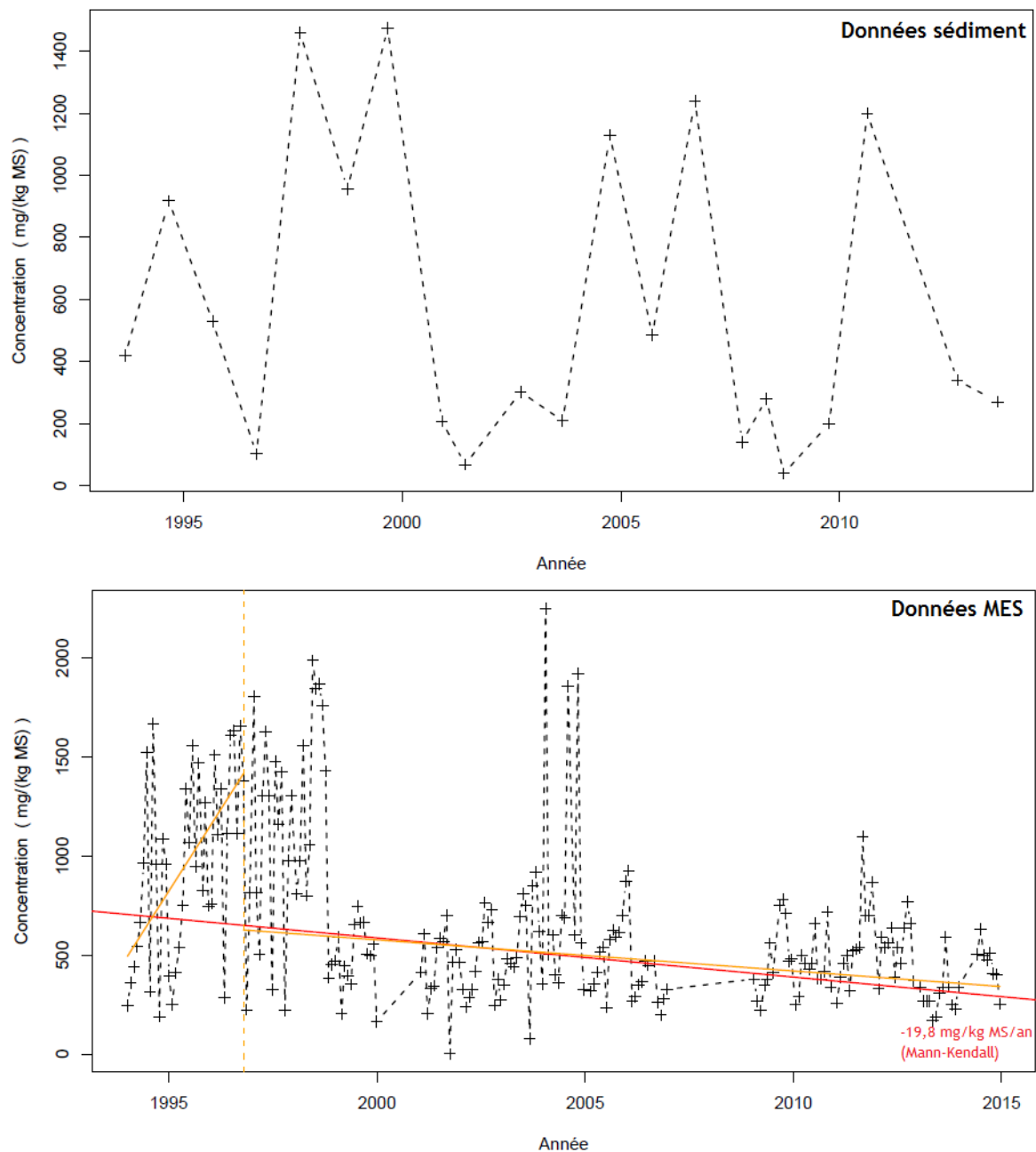


Figure 8 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le zinc dans les sédiments et les MES de la station de Sierck. Une tendance à la baisse significative est observée dans les données MES alors qu'aucune tendance significative n'est identifiée dans les données sédiment.

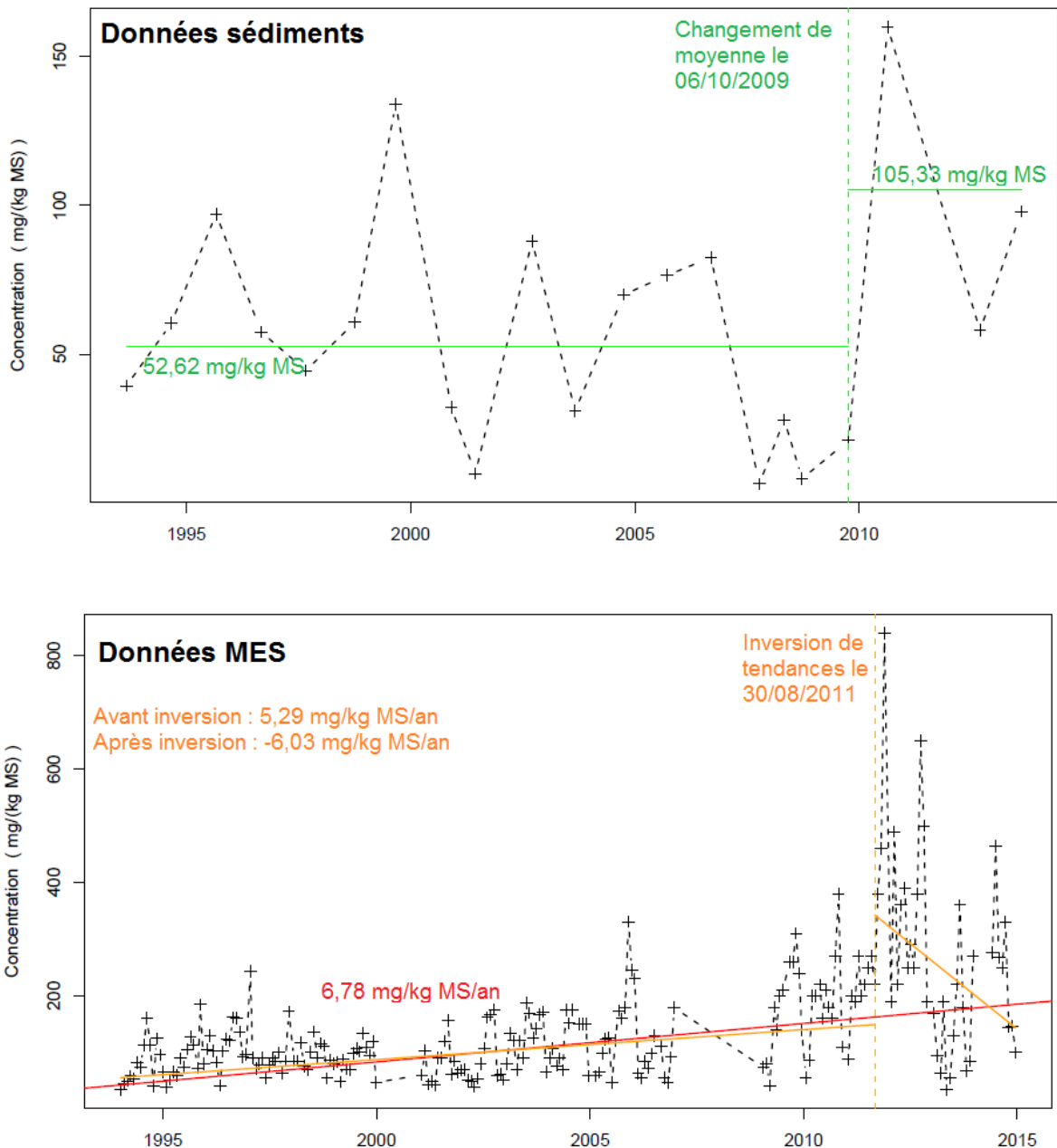


Figure 9 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le cuivre dans les sédiments et les MES de la station de Sierck

Pour les stations de Gamsheim et de Rhinau, les chroniques de données sont plus courtes (7 ans contre 20 ans pour Sierck). Pour ces deux stations, aucune tendance significative n'est identifiée dans les données sédiments. En revanche, les données MES font état de tendances significatives pour le plomb et le nickel sur ces deux stations.

Toutefois, ces tendances sont relativement faibles au regard des données et de la durée de la chronique. En effet les pentes des tendances oscillent entre -0,5 et -1 mg/kg MS/an sachant que les moyennes sur la chronique sont :

- de 31,7 mg/kg MS (Ni) et 25,5 mg/kg MS (Pb) pour Gamsheim ;
- de 30,6 mg/kg MS (Ni) et 22,3 mg/kg MS (Pb) pour Rhinau.

Ainsi, sur des périodes courtes, le suivi des MES identifie peu de tendances supplémentaires par rapport au suivi des sédiments.

De manière générale, on observe que l'étude des données MES par HYPE identifie davantage de tendances significatives et de ruptures dans les chroniques (changements de moyenne et inversions de tendances) que l'étude des données de sédiments. Cela peut notamment s'expliquer par le fait que le suivi des MES est effectué de façon mensuelle (soit 12 prélèvements par an) alors que le suivi des sédiments est effectué de façon annuelle (1 prélèvement par an). Il y a donc beaucoup plus de données disponibles pour les chroniques de MES que sur les sédiments, ce qui permet un suivi plus fin de l'évolution des concentrations.

Dans le cadre d'une comparaison entre résultats obtenus sur des données de sédiment et des données de MES (ponctuelles, par centrifugation), il est nécessaire de rappeler que le sédiment est une matrice plus intégratrice, ce qui peut être une autre hypothèse pour expliquer les différences observées en termes de tendances. Cependant, il est difficile de vérifier cette hypothèse car cela implique de connaître précisément les dynamiques hydrologiques pouvant affecter et perturber les sédiments, qui peuvent fortement varier d'un site à l'autre. A l'inverse, le prélèvement des MES permet de mieux maîtriser la période d'échantillonnage, qui est bien définie et connue.

Etude des données de sédiment et de MES sur les micropolluants organiques

Dans les données AERM, seuls les HAP présentent des fréquences de quantification élevées (supérieures à 80%). Les HAP étudiés sont les mêmes que ceux étudiés pour les données AEAP, à savoir : benzo(a)anthracène ; benzo(a)pyrène ; benzo(b)fluoranthène ; benzo(k)fluoranthène ; benzo(g,h,i)pérylène ; fluoranthène ; indéno(1,2,3-cd)pyrène ; phénanthrène ; pyrène.

Aucun changement de méthode ni aucune erreur de report de mesure, de code SANDRE ou d'unité n'est identifié dans les données fournies par l'AERM. En revanche, des « pics » de contamination sont parfois identifiés pour certains HAP, notamment sur les données MES, sur certaines stations. Les valeurs obtenues lors de ces pics étant très supérieures à celles obtenues dans l'ensemble des chroniques, il est nécessaire de manipuler les résultats obtenus lors de l'étude des tendances avec précaution.

Comme cela a été indiqué lors de la caractérisation des données, le seul paramètre disponible pour la normalisation des résultats est le carbone organique total (COT). Cependant, après étude des corrélations entre les concentrations en HAP et la teneur en COT, aucune corrélation significative n'a été établie sur aucune des 6 stations étudiées que ce soit pour les données sédiment ou MES. La comparaison entre suivi des HAP sur sédiments et sur MES est donc effectuée sur des données non normalisées uniquement.

Comme pour les métaux, la station de Givet n'est pas adaptée pour comparer les résultats obtenus sur les tendances à partir des données de sédiments et de MES, car les chroniques de sédiment ne comportent que 4 données sur l'ensemble de la période disponible (2006-2013).

L'étude n'a pas été faite non plus sur les stations de Rhinau et de Gamsheim car, pour chaque HAP, les 7 données disponibles (trop peu nombreuses pour effectuer un test de Mann-Kendall) ne sont pas normalement distribuées pour calculer une régression linéaire (probablement en raison d'un pic de contamination observé respectivement en 2012 pour la station de Rhinau et en 2013 pour la station de Gamsheim).

L'étude a donc été réalisée sur 3 stations : Sarreinsming, Sierck et Liverdun. Pour les stations de Sarreinsming et de Sierck, les données disponibles sur les sédiments s'étendent sur la période 2000-2013 alors que les données disponibles sur les MES s'étendent sur la période 1992-2014. Afin de garder une certaine pertinence dans la comparaison des résultats, seule la période 2000-2013 a été considérée. Pour les trois stations de Sarreinsming, de Liverdun et de Sierck, un fort pic de contamination a été observé sur les données de MES prélevées en mai 2010 (respectivement le 12, 19 et 20 mai 2010 pour les trois stations¹) pour 7 HAP sur les 9 étudiés (seuls le benzo(g,h,i)pérylène et l'indéno(1,2,3-cd)pyrène ne font pas état de ce pic). Ces pics de contamination rendant les graphes produits par HYPE peu lisibles et n'étant pas représentatifs de l'ensemble de la contamination observée à l'échelle de la chronique, ces valeurs ont été retirées du jeu de données étudié (valeurs aberrantes). Après vérification (calcul des tendances sur les jeux de données avec et sans pic), ce retrait n'a pas d'influence significative sur les résultats de l'estimation des tendances effectuée par l'outil statistique HYPE, celui-ci étant conçu pour être peu sensible aux valeurs exceptionnelles isolées.

Les résultats obtenus à partir du traitement des données par HYPE sont donnés, dans les Tableau 21, Tableau 22 et Tableau 23 pour les stations de Sarreinsming, de Liverdun et de Sierck, respectivement.

¹ La Sarre (rivière sur laquelle est située la station de Sarreinsming) est un affluent de la Moselle (sur laquelle sont situées les stations de Liverdun et de Sierck). Il semble donc normal d'observer ce pic de contamination sur les 3 stations, s'il s'agit par exemple d'une contamination accidentelle qui se serait produite sur la station de Sarreinsming à l'amont.

Tableau 21 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des HAP dans les sédiments et les MES de la station de Sarreinsming sur la période 2000-2013

(Chg. Moy. : changement de moyenne ; Inversion : inversion de tendances ; MK : pente selon test de Mann-Kendall)

HAP	Données sédiment (n = 13)				Données MES (n = 169)			
	Tendances		Ruptures		Tendances		Ruptures	
	Symbole	Pente (µg/kg MS/an)	Type	Date	Symbole	Pente (µg/kg MS/an)	Type	Date
Benzo(a)anthracène	→				↘	-9,74 (MK)	Inversion ↘↗	18/01/2010
Benzo(a)pyrène	→		Chg. Moy. ↘	6/9/2004	↘	-8,63 (MK)	Inversion ↘↗	18/01/2010
Benzo(b)fluoranthène	→		Chg. Moy. ↗	25/9/2008	↘	-9,19 (MK)	Inversion ↗↘	23/02/2002
Benzo(k)fluoranthène	→				↘	-6,21 (MK)	Inversion ↘↗	18/01/2010
Benzo(ghi)pérylène	→				↘	-8,37 (MK)	Inversion ↗↘	19/02/2004
Fluoranthène	→				↘	-29,6 (MK)	Inversion ↗↘	26/11/2002
Indéno(123cd)pyrène	→		Chg. Moy. ↘	6/9/2004	↘	-20,1 (MK)	Inversion ↘↗	01/09/2008
Phénanthrène	→				↘	-10,7 (MK)	Inversion ↘↗	18/01/2010
Pyrène	→				↘	-26,8 (MK)	Inversion ↘↗	18/01/2010

Tableau 22 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des HAP dans les sédiments et les MES de la station de Liverdun sur la période 1992-2013

(n : nombre de données ; Chg. Moy. : changement de moyenne ; Inversion : inversion de tendances ; MK : pente selon test de Mann-Kendall)

HAP	Données sédiment					Données MES				
	n	Tendances		Ruptures		n	Tendances		Ruptures	
		Symbole	Pente (µg/kg MS/an)	Type	Date		Symbole	Pente (µg/kg MS/an)	Type	Date
Benzo(a)anthracène	12	→		Chg. Moy. ↗	24/09/2007	128	↘	-8,84 (MK)	Inversion ↗↘	01/07/2003 Chg. Moy. ↘ 11/12/2006
Benzo(a)pyrène	17	→				140	→		Inversion ↗→	10/09/2003 Chg. Moy. ↘ 11/12/2006
Benzo(b)fluoranthène	17	→				140	→		Chg. Moy. ↗	11/12/2006
Benzo(k)fluoranthène	17	→				140	→		Chg. Moy. ↘	21/08/2006
Benzo(ghi)pérylène	17	→				140	→		Inversion ↗→	23/03/2004 Chg. Moy. ↘ 11/12/2006
Fluoranthène	17	→				140	↘	-20,9 (MK)	Inversion ↗↘	30/09/2002
Indéno(123cd)pyrène	17	→				140	↘	-12,2 (MK)	Inversion ↘→	27/01/2010
Phénanthrène	12	→		Chg. Moy. ↗	24/09/2007	128	↘	-16,7 (MK)	Inversion ↗↘	01/07/2003
Pyrène	12	→		Chg. Moy. ↗	24/09/2007	128	↘	-27,6 (MK)	Inversion ↗↘	01/07/2003

Tableau 23 : Résultats de l'étude effectuée au moyen du logiciel HYPE sur les tendances des HAP dans les sédiments et les MES de la station de Sierck sur la période 2000-2013

(Inversion : inversion de tendances ; MK : pente selon test de Mann-Kendall)

HAP	Données sédiment (n = 15)				Données MES (2000-2013 uniquement ; n = 168)			
	Tendances		Ruptures		Tendances		Ruptures	
	Symbole	Pente (µg/kg MS/an)	Type	Date	Symbole	Pente (µg/kg MS/an)	Type	Date
Benzo(a)anthracène	→				↘	-21,7 (MK)	Inversion ↘↗	05/08/2008
Benzo(a)pyrène	→				↘	-27,0 (MK)	Inversion ↗↘	24/11/2003
Benzo(b)fluoranthène	→				↘	-24,1 (MK)	Inversion ↗↘	29/10/2004
Benzo(k)fluoranthène	→				↘	-14,7 (MK)	Inversion ↗↘	29/10/2004
Benzo(ghi)pérylène	→				↘	-16,5 (MK)	Inversion ↗↘	22/03/2004
Fluoranthène	→				↘	-66,6 (MK)	Inversion ↗↘	24/11/2003
Indéno(123cd)pyrène	→				↘	-45,1 (MK)	Inversion ↘↗	14/05/2008
Phénanthrène	→				↘	-24,5 (MK)	Inversion →↗	18/03/2008
Pyrène	→				↘	-53,8 (MK)	Inversion ↗↘	29/10/2004

Pour les trois stations étudiées, aucune tendance significative n'est identifiée pour aucun des HAP sur les données sédiment. Seuls quelques changements de moyenne sont identifiés pour les stations de Sarreinsming et de Sierck. Cette absence de tendance significative est retrouvée dans les données MES pour 4 HAP étudiés au niveau de la station de Liverdun : benzo(a)pyrène ; benzo(b)fluoranthène ; benzo(k)fluoranthène et benzo(g,h,i)pérylène.

En revanche, les données MES de tous les autres HAP de la station de Liverdun et les données MES de tous les HAP des stations de Sarreinsming et de Sierck permettent à HYPE d'identifier une tendance significative à la baisse. De plus, ces résultats sur les tendances au niveau de la chronique entière sont assortis de ruptures (changements de moyenne et/ou inversions de tendance) qui ne sont pas identifiées pour les données de sédiments. Le fait que le suivi MES comporte davantage de données et permet donc une étude plus fine des tendances est probablement à l'origine de cet écart entre les résultats, à l'image de ce qui a été observé pour les résultats obtenus pour les métaux.

Ces études de cas sur les données métaux et HAP obtenues à la fois à l'aide d'un suivi des sédiments et d'un suivi des MES permettent de comparer des tendances calculées par un même outil statistique sur une même période. Ainsi, l'étude des données obtenues sur les métaux a montré que sur une période suffisamment longue (20 ans), il était possible d'identifier des tendances significatives dans les MES sans que ces tendances ne soient forcément observées dans les données de sédiments. De même, les données sur les HAP (chroniques entre 13 et 20 ans) ne montrent aucune tendance significative sur les sédiments, mais plusieurs tendances significatives et ruptures dans les chroniques sont observées dans les données MES.

La fréquence mensuelle du suivi des MES permet d'agréger plus rapidement un grand nombre de données qu'un suivi annuel des sédiments : le suivi est donc plus fin et permet d'identifier davantage de tendances significatives et de ruptures dans les chroniques sur une même période. Il est également rappelé que le prélèvement de MES permet de cibler spécifiquement les fractions particulaires les plus fines et ainsi de s'affranchir partiellement de la variabilité naturelle des particules [5], opérant ainsi une « normalisation opérationnelle » par la granulométrie.

4.2.3 Exploitation de jeux de données MES à fréquence de prélèvement variable

L'une des principales observations résultant de l'étude présentée dans la section précédente est le fait qu'en raison d'un nombre de données plus important, il est possible d'identifier davantage de tendances et de ruptures dans les chroniques de données MES que dans les jeux de données sédiment. La question de savoir si des tendances significatives peuvent être observées dans des données MES obtenues avec d'autres fréquences de prélèvement a donc été posée.

L'étude des tendances observées sur les données MES avec une fréquence de prélèvement variable est axée sur deux principaux questionnements.

- 1) Deux jeux de données de taille équivalente mais portant sur deux matrices différentes (données sédiment et données MES avec prélèvement annuel) donnent-ils, sur une même période, des résultats similaires en termes de tendances temporelles ?
- 2) Est-il possible d'identifier, sur les jeux de données MES dégradés, une « fréquence minimale de prélèvement » à partir de laquelle un nombre significatif de tendances temporelles est observé ?

De nouvelles comparaisons entre les deux types de jeux de données (sédiment et MES) ont ainsi été effectuées, mais cette fois-ci en « dégradant » volontairement les jeux de données MES. Il s'agit de retirer volontairement certaines données du jeu complet et d'introduire ces chroniques « dégradées » dans HYPE.

Trois catégories de jeux de données MES « dégradés » ont été générées :

- des jeux bimestriels : ils correspondent à une fréquence de prélèvement de MES d'une fois tous les deux mois (6 fois par an) ; deux jeux de données ont été générés (l'un correspondant aux mois impairs et l'autre correspondant aux mois pairs) ;
- des jeux trimestriels : ils correspondent à une fréquence de prélèvement de MES d'une fois tous les trois mois (4 fois par an) ; trois jeux de données ont été générés (le premier commençant en janvier de la première année, le deuxième en février et le troisième en mars) ;
- des jeux annuels : ils correspondent à une fréquence de prélèvement de MES d'une fois par an ; la date de prélèvement conservée chaque année est choisie de sorte à être la plus proche de la date à laquelle a été effectué le prélèvement de sédiment (correspondant normalement à la période d'étiage).

Etude des données métaux

Trois stations ont été retenues pour l'étude des données métaux :

- les stations de Gamsheim et de Rhinau ont été étudiées sur la période 2007-2013 ;
- la station de Sierck a été étudiée sur la période 1994-2013.

Les Tableau 24, Tableau 25 et Tableau 26 synthétisent les résultats fournis par HYPE en termes de tendances temporelles pour tous les jeux de données (sédiment, MES complet et MES dégradés) sur les trois stations. Lorsqu'une tendance à la hausse ou à la baisse est identifiée par HYPE, la pente de la tendance est exprimée en %/an en divisant la pente fournie par HYPE (en mg/kg MS/an) par la valeur moyenne de la chronique afin d'assurer une meilleure comparabilité des résultats.

Les tendances estimées visuellement sont également indiquées pour le jeu de données sédiments et le jeu complet de données MES.

Une cellule jaune avec le symbole « → » indique une absence de tendance significative, une cellule verte indique une tendance à la baisse et une cellule rouge indique une tendance à la hausse sur la période considérée. La pente correspondante calculée par HYPE est indiquée.

Une cellule grisée indique que HYPE n'a pu appliquer aucun des deux tests d'estimation des tendances (test de Mann-Kendall ou régression linéaire), les conditions d'application de ces tests n'étant pas réunies.

Tableau 24 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de métaux dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Rhinau sur la période 2007-2013

Métal	Données sédiment (annuel)		Données MES (complet ; 12 fois/an)		Données MES (bimestriel ; 6 fois/an)		Données MES (trimestriel ; 4 fois/an)			Données MES (annuel)
	Visuel	HYPE	Visuel	HYPE	Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars	
As	→	→	→	→	→	→	→	→	→	
Cd										
Cr	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
Cu	→		→	→	→	→	→	→	→	→
Hg	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
Ni	→	→	→	-2%	→	-3%	-4%	→	→	→
Pb	→	→	↘ léger	-3%	-3%	→	-6%	→	→	
Zn	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→

Tableau 25 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de métaux dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Gamsheim sur la période 2007-2013 (MK : pente selon Mann-Kendall ; RL : pente selon régression linéaire)

Métal	Données sédiment (annuel)		Données MES (complet ; 12 fois/an)		Données MES (bimestriel ; 6 fois/an)		Données MES (trimestriel ; 4 fois/an)			Données MES (annuel)
	Visuel	HYPE	Visuel	HYPE	Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars	
As	↗	→	→	→	→	→	→	→	→	
Cd										
Cr	→	→	→	→	→	→	→	-4%	→	
Cu	↗	→	→	→	→	→	→	-5% (MK) -6% (RL)	→	
Hg	↗	→	→	→	→	→	→	→	5%	
Ni	↗	→	→	-2%	→	→	→	-2%	→	
Pb	→		→	-4%	→	-4%	→	-4%	→	
Zn	↗	→	→	→	→	→	→	→	→	

Tableau 26 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de métaux dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Sierck sur la période 1993-2014

Métal	Données sédiment (annuel)		Données MES (complet ; 12 fois/an)		Données MES (bimestriel ; 6 fois/an)		Données MES (trimestriel ; 4 fois/an)			Données MES (annuel)
	Visuel	HYPE	Visuel	HYPE	Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars	
As	↘ léger	→	→	1%	1%	1%	→	1%	→	→
Cd	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
Cr	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
Cu	→	→	↗	4%	4%	5%	5%	3%	5%	4%
Hg	→	-3%	→	-2%	-3%	-2%	-1%	-3%	-3%	-5%
Ni	↘	-4%	↘	-1%	-1%	-2%	-2%	-1%	-1%	-1%
Pb	↘	→	↘	-5%	-5%	-5%	-5%	-4%	-5%	-5%
Zn	→	→	↘	-4%	-4%	-4%	-3%	-4%	-4%	-4%

Les stations de Rhinau et de Gamsheim ont fait l'objet d'un suivi sur une même période (2007-2013, soit 7 ans) et présentent des résultats similaires. De manière générale, HYPE n'identifie pas de tendance significative sur les données sédiment ou MES étudiées. Ainsi, sur une courte période, il semble que la fréquence de prélèvement des MES n'ait globalement pas d'influence significative sur les résultats de l'étude des tendances temporelles sur ces deux stations.

On observe toutefois quelques tendances significatives sur certains jeux de données MES « dégradés » : c'est notamment le cas du jeu de données trimestriel débutant en février 2007 pour la station de Gamsheim, pour quatre métaux (Cu, Cr, Ni et Pb). Cela peut s'expliquer par le fait que les valeurs obtenues en février 2007 et en mai 2007 sont parmi les plus élevées de la chronique complète. Ces valeurs plus élevées, situées au début de la chronique dégradée, combinées avec des valeurs plus faibles sur le reste de la chronique, peuvent ainsi faire apparaître des tendances significatives. Le cas du cuivre est détaillé sur la Figure 10.

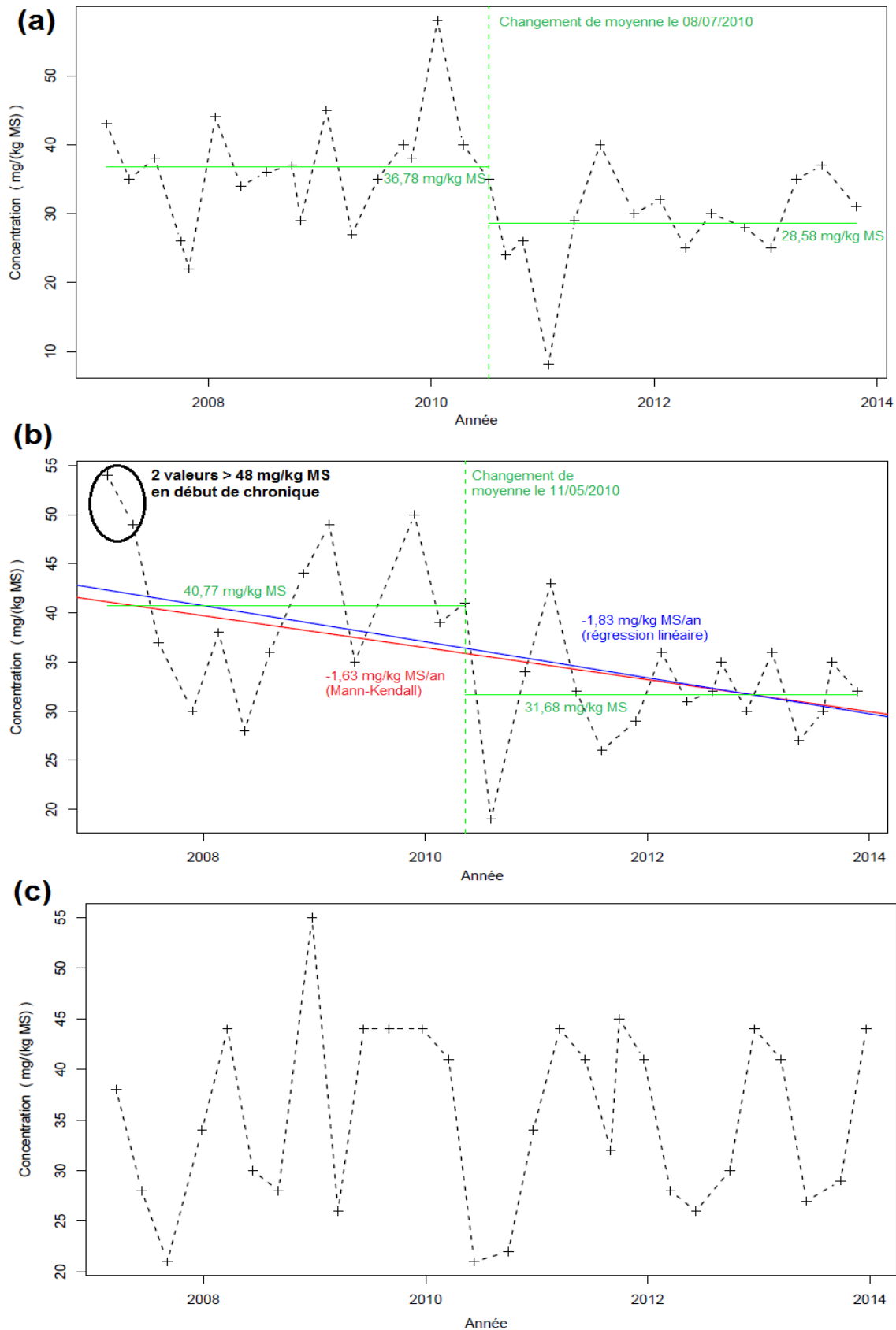


Figure 10 : Représentation graphique des tendances identifiées par HYPE pour le cuivre sur les jeux de données MES « dégradés » avec prélèvement trimestriel (4 fois par an sur la période 2007-2013, n = 32) à la station de Gambsheim - (a) : début de la chronique en janvier 2007 ; (b) : début en février 2007 ; (c) : début en mars 2007.

La station de Sierck a fait l'objet d'un suivi plus long (1994-2013, soit 20 ans) que les stations de Gamsheim et de Rhinau (7 ans). Pour cette station :

- pour quatre éléments sur les huit étudiés, les résultats obtenus sur tous les jeux de données (sédiment, MES complet et MES dégradés) sont similaires : le cadmium et le chrome ne montrent aucune tendance significative, et le mercure et le nickel présentent une tendance à la baisse ;
- pour trois autres éléments (cuivre, plomb et zinc), une tendance significative est systématiquement observée sur les données MES mais n'est pas retrouvée dans les données sédiment ;
- enfin, le cas de l'arsenic est plus délicat à trancher ; certains jeux de données MES montrent une tendance à la hausse qui n'est pas observée dans les données sédiment, mais cette tendance, lorsqu'elle existe, est faiblement marquée.

Ainsi, si sur une courte période d'étude (7 ans), les résultats obtenus en termes de tendances temporelles semblent concorder entre les données sédiment et les données MES, une étude sur une période plus longue (20 ans) montre que le suivi des MES permet d'identifier des tendances significatives qui ne sont pas retrouvées dans les sédiments, même lorsque le suivi des MES est réalisé avec une fréquence de prélèvement bimestrielle ou trimestrielle.

De même, pour des jeux de données de taille similaire mais portant sur des matrices différentes (jeu de données sédiment et jeu de données MES avec prélèvement annuel), avec des dates de prélèvement judicieusement choisies (correspondant à l'étiage), des différences en termes de tendances temporelles peuvent survenir lorsque la période d'étude est suffisamment longue : les données de MES peuvent permettre d'identifier des tendances significatives qui ne sont pas observées dans les données de sédiment.

Comme indiqué à plusieurs reprises dans ce rapport, le prélèvement de MES privilégie les particules les plus fines et ce faisant peut être assimilé à une « normalisation opérationnelle » (non numérique). Il serait donc intéressant de pouvoir comparer, sur de longues périodes, les résultats fournis par HYPE sur des chroniques de données de métaux dans les sédiments normalisées par l'aluminium ou le fer et des chroniques de données de métaux dans les MES. Cela permettrait de définir si les différences observées dans les tendances calculées sur les données sédiment et MES sur le cuivre, le plomb et le zinc pour la station de Sierck (cf. Tableau 26) sont levées grâce à la normalisation. Un tel exercice de normalisation est possible uniquement sur la période 2007-2013. Les résultats sont présentés dans le Tableau 27. Les résultats sont cette fois-ci globalement concordants entre données sédiment et données MES pour 5 substances (arsenic, cadmium, chrome, cuivre et zinc) et contradictoires pour 2 substances (mercure et nickel), le cas du plomb restant difficile à trancher. Il reste difficile de tirer des conclusions définitives à partir de ce simple cas car la période d'étude est trop réduite.

Tableau 27 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données sédiment (données non-normalisées et normalisées) et MES (non-normalisées avec différentes fréquences de prélèvement) pour les métaux à la station de Sierck sur la période 2007-2013 (MK : tendance selon test de Mann-Kendall ; RL = tendance selon régression linéaire)

Métal	Données sédiment (1 fois/an)			Données MES (12 fois/an)	Données MES bimestriel (6 fois/an)		Données MES trimestriel (4 fois/an)			Données MES annuel
	Non-normalisé	Normalisé par Al	Normalisé par Fe		Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars	
As	→	→	→	→	→	→	→	→	→	
Cd		→	→	→	→	→	→	→	-8% (MK) -11% (RL)	→
Cr	→	-11%	→	→	→	→	→	→	→	
Cu	→	→	→	→	→	→	→	→	→	
Hg			→	10%	10%	9%	9%	9%	11%	→
Ni	→	→		-3%	-2%	-3%	-4%	-2%	-3%	→
Pb	→	→	→	-4%	-4%	-5%	-4%	→	→	→
Zn		→		→	→	→	→	→	→	

Etude des données HAP

Les données MES sur les HAP ont été étudiées sur trois stations :

- les stations de Sarreinsming et de Sierck sur la période 2001-2013 ;
- la station de Liverdun sur la période 1994-2013.

Comme pour les métaux, les pentes des tendances temporelles obtenues par HYPE sur les différents jeux de données (sédiment, MES complet et MES dégradés) sont présentées dans les Tableau 28, Tableau 29 et Tableau 30 pour les stations de Sarreinsming, Sierck et Liverdun, respectivement. Le code couleur, les symboles et le mode de calcul de la pente sont identiques à ceux adoptés pour les métaux.

Lorsqu'une tendance à la hausse ou à la baisse est identifiée par HYPE, la pente de la tendance est exprimée, en **%/an**, en divisant la pente fournie par HYPE (en mg/kg MS/an) par la valeur moyenne de la chronique afin d'assurer une meilleure comparabilité des résultats.

Les tendances estimées visuellement sont également indiquées pour le jeu de données sédiments et le jeu complet de données MES.

Une cellule jaune avec le symbole « → » indique une absence de tendance significative et une cellule verte indique une tendance significative à la baisse. La pente correspondante calculée par HYPE est indiquée.

Tableau 28 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de HAP dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Sarreinsming sur la période 2001-2013

HAP	Données sédiment (annuel)		Données MES (complet ; 12 fois/an)		Données MES (bimestriel ; 6 fois/an)		Données MES (trimestriel ; 4 fois/an)			Données MES (annuel)
	Visuel	HYPE	Visuel	HYPE	Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars	
Benzo(a)anthracène	↘	→	↘ en deux plateaux	-5%	-5%	-5%	-7%	→	-4%	→
Benzo(a)pyrène	↘	→	↘ en deux plateaux	-3%	-4%	→	-5%	→	→	→
Benzo(b)fluoranthène	→	→	↘ en deux plateaux	-4%	-5%	→	-5%	→	→	→
Benzo(k)fluoranthène	→	→	↘ en deux plateaux	-4%	-5%	-4%	-6%	→	→	→
Benzo(ghi)pérylène	→	→	↘ en deux plateaux	-4%	-6%	→	-7%	→	→	→
Fluoranthène	→	→	↘ en deux plateaux	-6%	-7%	-5%	-6%	-7%	-4%	-7%
Indéno(123cd)pyrène	↘	→	↘ en deux plateaux	-8%	-9%	-7%	-12%	-6%	-6%	-8%
Phénanthrène	↘	→	↘ en deux plateaux	-7%	-8%	-7%	-6%	-9%	-6%	-8%
Pyrène	↘	→	↘ en deux plateaux	-6%	-6%	-7%	-9%	-7%	→	→

Tableau 29 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de HAP dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Sierck sur la période 2001-2013

HAP	Données sédiment (annuel)		Données MES (complet ; 12 fois/an)		Données MES (bimestriel ; 6 fois/an)		Données MES (trimestriel ; 4 fois/an)			Données MES (annuel)
	Visuel	HYPE	Visuel	HYPE	Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars	
Benzo(a)anthracène	→	→	→	-3%	-3%	→	-2%	→	-3%	-4%
Benzo(a)pyrène	→	→	→	-3%	-2%	→	-3%	-2%	→	→
Benzo(b)fluoranthène	→	→	→	-2%	-3%	→	-2%	→	→	→
Benzo(k)fluoranthène	→	→	→	-3%	-3%	→	-2%	→	→	→
Benzo(ghi)pérylène	→	→	→	-3%	-5%	→	-4%	→	→	→
Fluoranthène	→	→	↘	-3%	-3%	-2%	-3%	-2%	→	-5%
Indéno(123cd)pyrène	→	→	↘	-6%	-8%	-4%	-8%	→	-6%	-6%
Phénanthrène	→	→	↘	-3%	-2%	-2%	-2%	-2%	-3%	-7%
Pyrène	→	→	↘	-4%	-3%	-3%	-3%	-2%	-4%	-6%

Tableau 30 : Pente des tendances temporelles fournies par HYPE sur les jeux de données de HAP dans les sédiments et les MES (jeux complet et dégradés) à la station de Liverdun sur la période 1994-2013

HAP	Données sédiment (annuel)		Données MES (complet ; 12 fois/an)		Données MES (bimestriel ; 6 fois/an)		Données MES (trimestriel ; 4 fois/an)			Données MES (annuel)	
	Visuel	HYPE	Visuel	HYPE	Début en janvier	Début en février	Début en janvier	Début en février	Début en mars		
Benzo(a)anthracène	→	→	→	-2%	-7%	→	→	→	→	→	-5%
Benzo(a)pyrène	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
Benzo(b)fluoranthène	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→	→
Benzo(k)fluoranthène	→	→	→	→	-3%	→	→	→	→	→	→
Benzo(ghi)pérylène	→	→	→	→	-3%	→	→	→	→	→	→
Fluoranthène	→	→	→	-2%	-5%	→	-3%	→	→	→	→
Indéno(123cd)pyrène	→	→	→	-3%	-6%	→	-5%	→	-3%	→	→
Phénanthrène	→	→	↘	-5%	-7%	-3%	-3%	-5%	-6%	-6%	-6%
Pyrène	→	→	↘	-4%	-8%	→	-4%	→	-5%	→	-9%

Le cas de la station de Sarreinsming est une bonne illustration de l'observation formulée en 4.2.2 selon laquelle, sur une période donnée, un accroissement de la fréquence de prélèvement (et donc du nombre de données) permet d'identifier davantage de tendances significatives. En effet, sur les chroniques présentant moins de données (données sédimentaires et données MES avec prélèvement annuel ou trimestriel), peu de tendances significatives sont identifiées. En revanche, lorsque la fréquence de prélèvement est supérieure ou égale à 6 prélèvements par an, HYPE identifie quasiment systématiquement une tendance significative à la baisse pour tous les HAP étudiés (voire avec 4 prélèvements par an pour le jeu de données commençant en janvier 2001).

La station de Sierck présente des résultats similaires, mais avec une tendance moins marquée. Cela peut être dû au fait que les tendances temporelles, lorsqu'elles sont significatives, présentent des pentes moins importantes que celles observées sur la station de Sarreinsming. Sur cette station, pour quatre HAP (fluoranthène, indéno(1,2,3-cd)pyrène, phénanthrène et pyrène) sur neuf, une tendance à la baisse est identifiée dans quasiment tous les jeux de données MES (complets et dégradés), mais n'apparaît pas dans les données sédiment. Pour les cinq autres HAP, ces tendances commencent à apparaître sur les jeux MES à partir d'une fréquence de 4 fois/an.

Enfin, pour la station de Liverdun, qui présente des chroniques plus longues (1994-2013, soit 20 ans), il est globalement plus difficile de conclure quant aux résultats :

- pour quatre HAP (benzo(a)pyrène, benzo(b)fluoranthène, benzo(k)fluoranthène et benzo(g,h,i)fluoranthène), les résultats entre jeux MES (complets et dégradés) et sédiment sont similaires et ne montrent quasiment aucune tendance significative ;
- pour deux HAP (phénanthrène et pyrène), les jeux MES (complets et dégradés) font quasi-systématiquement état de tendances significatives à la baisse qui ne sont pas observées sur les données sédiment ;
- pour les trois HAP restants, la tendance à la baisse dans les données MES n'apparaît réellement qu'avec une fréquence de prélèvement élevée (6 fois/an avec début en janvier 1994 ou 12 fois/an), et n'est pas observée dans les données sédiment.

Pour ces trois stations, aucune tendance significative n'est identifiée sur le jeu de données sédiment. En revanche, sur un jeu de données MES portant sur la même période, avec une fréquence de prélèvement identique et des dates de prélèvement judicieusement choisies (correspondant à l'étiage), des tendances significatives à la baisse, dont la plupart avec une pente supérieure à 5% en valeur absolue, sont identifiées pour certains HAP. Ainsi, même avec une fréquence de prélèvement de MES réduite, il est possible d'identifier des tendances à la baisse (sous réserve que la date de prélèvement ait été judicieusement choisie).

Bilan sur l'étude des jeux de données MES à fréquence de prélèvement variable

Les résultats obtenus dans le cadre de l'étude des tendances temporelles calculées à partir de jeux de données avec une fréquence de prélèvement variable permettent d'apporter de premiers éléments vis-à-vis des deux principaux questionnements indiqués en début de section :

- 1) Sur des périodes suffisamment longues (environ 20 ans), des divergences dans les tendances temporelles calculées sur les jeux de données sédiment et MES « dégradé » avec un seul prélèvement annuel peuvent apparaître. Notamment, des tendances significatives peuvent être observées sur les données MES (obtenues par centrifugation) sans être détectées par les données sédiment. Cette conclusion est valable pour les micropolluants organiques comme pour les métaux.
- 2) La fréquence minimale de prélèvement de MES (obtenues par centrifugation) à partir de laquelle des tendances significatives sont quasi-systématiquement observées varie en fonction du jeu de données étudié. Cependant, l'étude a montré qu'il n'est pas nécessaire de maintenir une fréquence de prélèvement mensuelle pour observer des tendances. Une fréquence de prélèvement annuelle peut même suffire dans certains cas (sous réserve d'un choix judicieux de la date de prélèvement, ici correspondant à l'étiage).

Ces résultats demandent à être approfondis étant donné qu'ils ont été obtenus sur un nombre réduit de jeux de données. Cependant, ils permettent d'avoir un aperçu des informations qui peuvent être apportées par un suivi des MES.

Les données MES de l'AERM sont des données obtenues après centrifugation (prélèvement ponctuel). Il est également possible de prélever les MES au moyen de pièges à particules, qui permettent d'intégrer la contamination sur des périodes connues de plusieurs semaines. De premiers travaux sur les pièges à particules ont été menés par AQUAREF afin d'identifier les perspectives d'utilisation de ces dispositifs dans le cadre de la surveillance de la contamination chimique des milieux aquatiques [16].

La mise en place d'un réseau de suivi MES apparaît donc comme une piste intéressante à exploiter par les AE pour le suivi des tendances de l'état des masses d'eau, en complément du suivi sur sédiment existant. Les résultats présentés dans le présent rapport indiquent qu'une fréquence de prélèvement trimestrielle ou même annuelle peut permettre d'identifier des tendances significatives. Par ailleurs, il est rappelé que le prélèvement de MES permet de réaliser une « normalisation opérationnelle » par la granulométrie en ciblant les particules fines.

La mise en place d'un tel réseau, même à petite échelle, a un certain coût financier et nécessite de mobiliser des ressources supplémentaires (formation au déploiement et à la récupération des dispositifs, déplacements sur le terrain...). Toutefois, les données pouvant être apportées par ce type de surveillance peuvent représenter une piste intéressante pour compléter et affiner l'exploitation des données sédiment acquises par les AE au cours des programmes de surveillance dans une perspective d'établissement des tendances d'évolution de la contamination. Des travaux de cette nature ont par exemple été réalisés par l'OSR sur le bassin du Rhône [11].

4.3 BILAN SUR L'ETUDE DES TENDANCES TEMPORELLES

L'applicabilité d'une première proposition de méthodologie d'évaluation des tendances temporelles a été testée et démontrée sur des données « réelles » issues de la surveillance des contaminants dans les sédiments et les MES dans les cours d'eau pratiquée par les Agences de l'Eau.

Après une étude préliminaire, les données mises en forme peuvent être exploitées par l'outil statistique HYPE. L'application de cette méthodologie sur les données fournies par l'AEAP, sur des données non-normalisées et normalisées portant sur des micropolluants organiques et sur des métaux dans les sédiments, a permis d'exposer différentes voies possibles pour la normalisation des données. Cela a également permis d'identifier les principaux verrous pour une estimation fiable des tendances temporelles dans les sédiments, à savoir la longueur des chroniques, la fréquence de prélèvement et la régularité du suivi des paramètres normalisateurs.

Cette méthodologie a ensuite été appliquée à des jeux de données (sur métaux et HAP) fournis par l'AERM et portant à la fois sur des données de sédiment et des données de MES. Ces deux suivis ont ainsi pu être comparés (sur des données non normalisées uniquement) en testant également l'impact de la fréquence de prélèvement des MES. Le suivi mensuel des MES permettant d'agréger plus de données que le suivi des sédiments sur une même période, l'étude des tendances sur les MES identifie davantage de tendances et de ruptures dans les chroniques. De plus, des tendances peuvent être observées dans des chroniques de MES suffisamment longues avec une fréquence de prélèvement équivalente au suivi des sédiments (1 fois/an) sans être retrouvées dans ce dernier. Ceci souligne l'intérêt des dispositifs de type piège à particules afin de compléter et d'affiner le suivi des sédiments, notamment dans une perspective d'évaluation des tendances.

Les différentes études de cas présentées dans ce rapport permettent de formuler des recommandations quant à l'obtention de jeux de données permettant une évaluation des tendances suffisamment robuste.

- Construire des chroniques longues de contaminants, qui s'étalent au moins sur 10 ans avec une fréquence minimale d'un prélèvement par an pour les sédiments.
- Assurer au maximum la continuité dans les méthodes analytiques afin de disposer de données comparables d'année en année et assurer la traçabilité des modifications des méthodes analytiques afin de faciliter l'identification de tout changement pouvant influencer sur l'étude des tendances (changement de LQ notamment). Cette recommandation est partagée par l'OSR qui préconise la constitution d'« *archives analytiques* » concernant les protocoles analytiques mis en œuvre [17].
- Effectuer un suivi régulier des paramètres normalisateurs afin de permettre une meilleure exploitation des données, notamment :
 - Al et Fe pour les métaux (normalisation géochimique) ;
 - COT pour les micropolluants organiques ;
 - granulométrie pour les métaux et les micropolluants organiques.

Cette recommandation est partagée par le CEREMA Nord-Picardie qui préconise que « *le dosage du carbone organique et de l'aluminium [puisse] être réalisé systématiquement chaque année* » [13]. L'OSR recommande également que « *des paramètres complémentaires comme le carbone organique et la distribution granulométrique (taille des particules) [soient] systématiquement mesurés* » [17].

En août 2017, les AE ont été sollicitées via un questionnaire envoyé par AQUAREF (cf. Annexe 1) afin de connaître leur retour sur la méthodologie d'évaluation des tendances temporelles proposée par AQUAREF (présentée via un rapport d'étape comprenant les

sections 1 à 4.2.2 du présent rapport). Ce questionnaire a été réalisé en parallèle des discussions directes avec les AE sur le sujet. Dans l'ensemble, le retour des AE est positif (cf. Annexe 2 pour une synthèse des résultats). Le logigramme méthodologique pour l'établissement des tendances temporelles (cf. Figure 2) a été globalement apprécié. L'inclusion d'une étape d'étude préliminaire des données est notamment un point important pour les AE qui ont parfois noté un effet laboratoire important sur les données, d'où le besoin de valider ces données avant exploitation.

L'essentiel à retenir :

- ❖ AQUAREF propose une méthodologie pour l'évaluation des tendances temporelles dans les sédiments basée sur le logiciel HYPE.
- ❖ Cette méthodologie requiert des jeux de données de qualité suffisante pour être appliquée de façon robuste :
 - Les jeux de données doivent comporter au moins 10 données ;
 - Les jeux de données doivent comporter peu de lacunes ;
 - La continuité et la traçabilité des méthodes analytiques doivent être assurées ;
 - Il est préférable de disposer de paramètres normalisateurs pour effectuer une étude des tendances (cf. Tableau 1)
- ❖ Cette méthodologie a été appliquée sur des données de surveillance DCE fournies par deux AE et portant à la fois sur des sédiments et des MES (obtenues par prélèvement ponctuel par centrifugation).
- ❖ Les jeux de données MES (prélèvement mensuel) présentant plus de données que les jeux de données sédiment (prélèvement annuel), il est possible d'identifier davantage de tendances et de ruptures dans les chroniques.
- ❖ Le caractère intégrateur des sédiments par rapport aux MES obtenues par centrifugation peut également influencer les différences observées dans les tendances, mais cela est beaucoup plus difficile à confirmer ou infirmer.
- ❖ Même si l'on réduit la fréquence de prélèvement des MES (fréquence trimestrielle, bimestrielle voire annuelle), il est possible d'observer des tendances qui ne sont pas observées dans les données de sédiment.
- ❖ L'échantillonnage des MES cible préférentiellement les particules fines, et peut donc agir comme une « normalisation opérationnelle » (non numérique), ce qui souligne l'intérêt d'un suivi des MES en complément du suivi des sédiments.

5. ETUDE DES DISTRIBUTIONS SPATIALES DES CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS

5.1 ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

5.1.1 Introduction

Le questionnaire envoyé aux AE en août 2017 (cf. Annexe 1) et les discussions avec les AE avaient également pour but d'identifier les besoins et les demandes des AE concernant l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments, aspect qui n'avait jusqu'ici pas fait l'objet d'une étude approfondie dans le cadre des travaux d'AQUAREF.

Peu de demandes spécifiques concernant l'évaluation des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments ont été adressées (cf. Annexe 2 pour une synthèse des résultats). En revanche, à l'image de ce qui a été fait pour les tendances temporelles, les AE sont demandeuses d'une méthodologie qui permettraient d'exploiter au mieux les données sédimentaires dont elles disposent sur le plan spatial.

Dans un premier temps, une étude bibliographique a donc été menée afin d'obtenir un aperçu des différentes pratiques et pistes d'étude possibles pour une détermination des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments. L'objectif est de dégager des éléments méthodologiques génériques afin d'établir, à terme, une méthodologie pouvant être également résumée sous forme de logigramme.

Cette étude bibliographique porte à la fois :

- sur des rapports issus d'études coordonnées par différentes institutions publiques françaises ;
- sur des publications dans des journaux à comité de lecture.

5.1.2 Résultats de l'étude bibliographique

Le Tableau 31 indique, pour chaque publication, différents critères de description des études réalisées :

- *le périmètre et le type de l'étude* : milieu étudié, nombre de sites étudiés, période d'étude, substances suivies, fréquence et type d'échantillonnage ;
- *les informations sur le prétraitement et la minéralisation éventuelle des échantillons* ;
- *la présence ou non d'opérations de normalisation des résultats* ;
- *le mode de représentation spatiale* : cartes, représentations graphiques (histogramme, nuage de points, etc.), représentations schématiques ;
- *les descripteurs choisis pour indiquer les niveaux de contamination* : valeurs moyennes, valeurs médianes, valeurs maximales, etc. ;
- *le mode d'élaboration des classes de concentration* (dans le cas de représentation par cartes).

Parmi les publications retenues, 4 sont des rapports d'études coordonnées par des instituts publics (lignes en jaune) et 20 sont des publications académiques (lignes en

vert). Les publications dans des journaux à comité de lecture concernent généralement des zones d'étude plus restreintes (lacs, estuaires, cours d'eau...) que les études coordonnées par les instituts publics, lesquelles s'intéressent à la contamination à une échelle régionale. Cette différence d'échelle peut impacter sur la méthodologie adoptée. Cependant, dans le cas de ces études à large échelle, les stations n'ont pas forcément fait l'objet d'un prélèvement chaque année.

Tableau 31 : Synthèse bibliographique concernant l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments (références classées par type de document et par ordre chronologique décroissant)

Lignes en jaune : études d'instituts publics ; lignes en vert : publications académiques

ETUDE	Milieu	Mode de prélèvement	Echantillonnage - Fréquence - Période - Nombre de sites/stations	Substances	Prétraitement	Normalisation	Représentation spatiale	Descripteur utilisé	Elaboration des classes de concentration
CEREMA, 2017* [18]	Continental	Surface	1 fois/an 2000-2014 84 stations	Métaux PCB	N/A	Calcul de facteurs d'enrichissement (fer) (métaux) Fond géochimique déterminé d'après Sterckemann <i>et al.</i> , 2006 [19]	Carte avec représentation ponctuelle	Moyennes	Amplitude fixe ou seuils réglementaires
Projet SPAL, 2014* [20]	Continental	Surface	1 fois/an 1981-2013 491 stations	Métaux	N/A	Calcul de facteurs d'enrichissement (aluminium) Fond géochimique déterminé sur une station (carotte sédimentaire)	Carte avec représentation ponctuelle	Moyennes	Méthode des effectifs progressifs
Rapport DRIEE, 2013* [21]	Continental	Surface	1 fois/an 2008-2011 120 sites	Métaux HAP PCB	N/A	Non	Carte avec représentation ponctuelle	Moyennes annuelles	Selon seuils de qualité RCQS (Canada)
Rapport DREAL Rhône-Alpes, 2013* [22]	Continental	Surface	1 fois/an 2006-2011 395 sites	Métaux PCB HAP	N/A	Non	Carte avec représentation ponctuelle	Maxima	Quantiles

ETUDE	Milieu	Mode de prélèvement	Echantillonnage - Fréquence - Période - Nombre de sites	Substances	Prétraitement	Normalisation	Représentation spatiale	Descripteur utilisé	Elaboration des classes de concentration
Guo <i>et al.</i> , 2016 [23]	Continental	Surface et Carottage	1 seul prélèvement 112 sites (surface) 28 sites (carottage)	Carbazoles	Lyophilisation Extraction par solvant	Non	Carte avec représentation surfacique	Moyennes	Non renseigné
Liu <i>et al.</i> , 2016 [24]	Littoral	Surface	2 prélèvements (été et hiver 2011) 16 sites	Métaux	Séchage Broyage Tamisage <96 µm Minéralisation HNO ₃	COT Granulométrie	Carte avec représentation surfacique	Moyennes	Non renseigné
Peng <i>et al.</i> , 2016 [25]	Continental Littoral	Surface et Carottage	1 seul prélèvement 27 sites (surface) 2 sites (carottage)	Parabènes Divers organiques	Lyophilisation SPE / Extraction par solvant	Non	ACP pour discriminer les différentes catégories de site	Non pertinent	Non pertinent
Wang <i>et al.</i> , 2016 [26]	Littoral Marin	Surface	1 seul prélèvement 77 sites	HAP	Lyophilisation Tamisage Extraction Soxhlet	Non	Carte avec représentation surfacique	Moyennes	Non renseigné
Wu <i>et al.</i> , 2016 [27]*	Continental Littoral Marin	Surface	1 seul prélèvement 29 sites	Organochlorés PCB	Lyophilisation Tamisage Extraction par solvant	Non	Graphique simple, avec en abscisses les sites descendant l'estuaire	Moyennes	Non pertinent

ETUDE	Milieu	Mode de prélèvement	Echantillonnage - Fréquence - Période - Nombre de sites	Substances	Prétraitement	Normalisation	Représentation spatiale	Descripteur utilisé	Elaboration des classes de concentration
Niu <i>et al.</i> , 2015 [28]	Continental	Surface	1 seul prélèvement 59 sites	Métaux	Séchage Broyage	Non	Carte avec représentation surfacique	Moyennes	Non renseigné
van Metre <i>et al.</i> , 2015 [29]	Continental	Carottage	1981-2010 7 sites	PCDD PCDF Radionucléides	Séchage Extraction par solvant (PCDD et PCDF)	COT	Histogramme : - Abscisse : Substances - Ordonnée : % du total - Barres : Sites	Moyennes	Non pertinent
Yuan <i>et al.</i> , 2015 [30]	Littoral	Surface	1 seul prélèvement 60 sites	PCB Organochlorés	Lyophilisation Extraction Soxhlet	Non	Carte avec représentation surfacique	Moyennes	Non renseigné
Gevao <i>et al.</i> , 2014 [31]	Littoraux et marins	Surface Carottage	25 sites	PBDE	Extraction Soxhlet	COT	Carte avec histogrammes (1 barre pour somme PBDE)	Moyennes	Non pertinent
Mil-Homens <i>et al.</i> , 2014 [32]	Continental	Surface	1 prélèvement en 2002 + 1 archive sédimentaire 1977 19 sites	Métaux	Tamisage <2 mm Séchage 60°C Broyage Minéralisation eau régale	Al	Pas de représentation graphique particulière	N/A	Non pertinent
Zhao <i>et al.</i> , 2014 [33]	Continental	Surface	3 prélèvements (avril 2007, août 2007, janvier 2018) 14 sites	HAP	Lyophilisation Extraction Soxhlet	Non	Histogrammes : - Abscisses : Site - Ordonnées : % de HAP totaux - Barres : Substances	Moyennes	Non pertinent

ETUDE	Milieu	Mode de prélèvement	Echantillonnage - Fréquence - Période - Nombre de sites	Substances	Prétraitement	Normalisation	Représentation spatiale	Descripteur utilisé	Elaboration des classes de concentration
Liao <i>et al.</i> , 2013 [34]	Continental et littoral	Surface Carottage	1998-2012 47 sites (surface) 34 sites (carottage)	Parabènes Divers organiques	Non renseigné	Non	Pas de représentation spatiale particulière	Moyennes	Non pertinent
Marvin <i>et al.</i> , 2013 [35]	Continental	Pièges à sédiment	avril-novembre 2010 9 sites	PBDE	Non renseigné	Non	Carte avec histogrammes (1 barre par substance et année)	Moyennes	Non pertinent
Desmet <i>et al.</i> , 2012* [36]	Continental	Carottage	4 sites	PCB	Tamissage <2 mm Broyage	COT	Représentation schématique d'amont en aval	Moyennes	Non pertinent
Maggi <i>et al.</i> , 2012 [37]	Littoral	Surface	octobre-novembre 2005 69 sites	Métaux PCB Organochlorés Organoétains HAP PCDD/PCDF	Minéralisation totale (métaux)	Non	Carte avec représentation ponctuelle	Moyennes	Selon valeurs réglementaires nationales (Italie)
Woods <i>et al.</i> , 2012 [38]	Continental	Surface	hiver 2005 77 sites	Métaux	Lyophilisation Tamissage <63 µm Minéralisation totale (acide)	Al, Fe, Li, Ti et <63 µm	Cartes avec représentations surfacique et ponctuelle	Moyennes	Amplitude fixe
Choi <i>et al.</i> , 2011 [39]	Littoral	Surface	1 fois/an (2001-2007) 25 sites	PCB Organochlorés HAP TBT PCDD/F	Lyophilisation	Non	Dendrogramme (<i>cluster analysis</i>)	N/A	Non pertinent

ETUDE	Milieu	Mode de prélèvement	Echantillonnage - Fréquence - Période - Nombre de sites	Substances	Prétraitement	Normalisation	Représentation spatiale	Descripteur utilisé	Elaboration des classes de concentration
Guo <i>et al.</i> , 2011 [40]	Continental	Surface	2005 : 1 prélèvement en août et 1 prélèvement en décembre 14 sites	Hydrocarbures	Lyophilisation Broyage Tamisage	Non	Histogramme pour chaque date : - Abscisse : Sites - Ordonnée : % d'hydrocarbures totaux - Barres : Substances	Moyennes	Non pertinent
Vinas <i>et al.</i> , 2010 [41]	Littoral	Surface	2003 : mars et septembre 2004 : février et septembre 2005 : février 36 sites	HAP	Lyophilisation	COT	Histogramme pour chaque station : - Abscisse : Substances - Ordonnée : Concentration - Barres : Dates	Non renseigné	Non pertinent
Muir <i>et al.</i> , 2009 [42]	Continental	Carottage	1998-2005 50 sites	Métaux	Lyophilisation Minéralisation eau régale	Non	Nuage de points : - Abscisse : Latitude - Ordonnée : Flux	Flux	Non pertinent

5.2 EXEMPLES D'ETUDE DES DISTRIBUTIONS SPATIALES DES CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS

Dans cette section, plusieurs études parmi celles listées dans le Tableau 31 (signalées par un astérisque dans la première colonne du tableau) sont détaillées à titre d'exemples dans les sections suivantes. Ces exemples ont été choisis de sorte à illustrer un large panel des modes d'exploitation et de représentation disponibles. Les deux premières études présentées concernent des zones d'étude relativement restreintes (cours d'eau notamment) tandis que les quatre suivantes sont des études à l'échelle régionale.

5.2.1 Représentation graphique simple de la répartition spatiale de la contamination des sédiments

Wu *et al.*, 2016 [27] ont coordonné une étude visant à étudier la répartition de la contamination en plusieurs micropolluants organiques (notamment des pesticides et des PCB) le long d'une rivière et dans un estuaire adjacent au niveau du détroit de Taiwan. L'étude porte sur 29 sites (8 sites le long de la rivière et 21 sites dans l'estuaire).

Les auteurs ont fait le choix de ne pas représenter la répartition spatiale de la contamination sur une carte mais sur un graphique en histogrammes portant les différents sites en abscisse et les concentrations observées en ordonnée (cf. Figure 11). Sur l'axe des abscisses, les sites sont ordonnés d'amont en aval pour les sites de rivière et en fonction de la distance à l'embouchure pour l'estuaire.

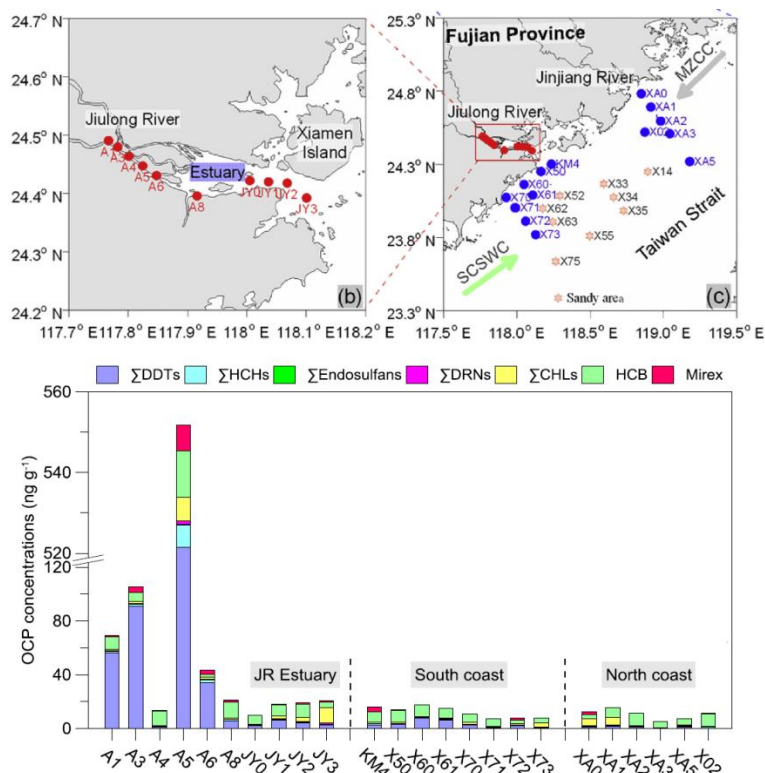


Figure 11 : Représentation de la répartition spatiale de plusieurs micropolluants organiques dans les sédiments de surface et le long d'une rivière et dans un estuaire adjacent (d'après Wu et al., 2016 [27])

Ce type de graphique permet de représenter de façon simple la contamination en micropolluants sur chacun des différents sites. En revanche, cette représentation ne

peut être appliquée dans le cadre d'études présentant un trop grand nombre de sites d'étude.

5.2.2 Etablissement d'un profil de contamination le long d'un linéaire de cours d'eau

En 2012, une étude a été menée pour construire des profils de concentration en PCB dans les sédiments en différents points de prélèvement du Rhône, en s'intéressant à la fois aux tendances temporelles et spatiales (Desmet *et al.*, 2012 [36]). Pour ce faire, des carottes de sédiment ont été prélevées et datées afin de déterminer la concentration en PCB sur différentes périodes. L'objectif était également d'identifier les sources de pollution pouvant rendre compte des tendances observées.

La méthodologie employée ne requiert pas de représentation sur une carte. Les résultats sont reportés sur des graphiques et la dimension spatiale de l'étude est prise en compte en représentant schématiquement les éléments du bassin pouvant avoir une influence sur la concentration en micropolluants dans le Rhône : affluents, aires urbaines, sites industriels (cf. Figure 12).

Ce type de représentation schématique est particulièrement adapté dans le cas où l'on s'intéresse à la contamination sur un linéaire de long cours d'eau (un autre exemple est donné dans le rapport du projet SPAL [20], cf. section 5.2.5). Il permet d'obtenir des informations à la fois sur l'état de la contamination et sur ses possibles origines. Cependant, il est difficilement envisageable pour une étude à plus large échelle (risque de surcharger les schémas) et est moins pertinent dans le cas de petits cours d'eau (où les sources de pollution peuvent être moins nombreuses et/ou plus diffuses). Par ailleurs, la dimension temporelle est ici obtenue à l'aide de carottage, une technique qui est peu employée dans le cadre des programmes de surveillance actuels.

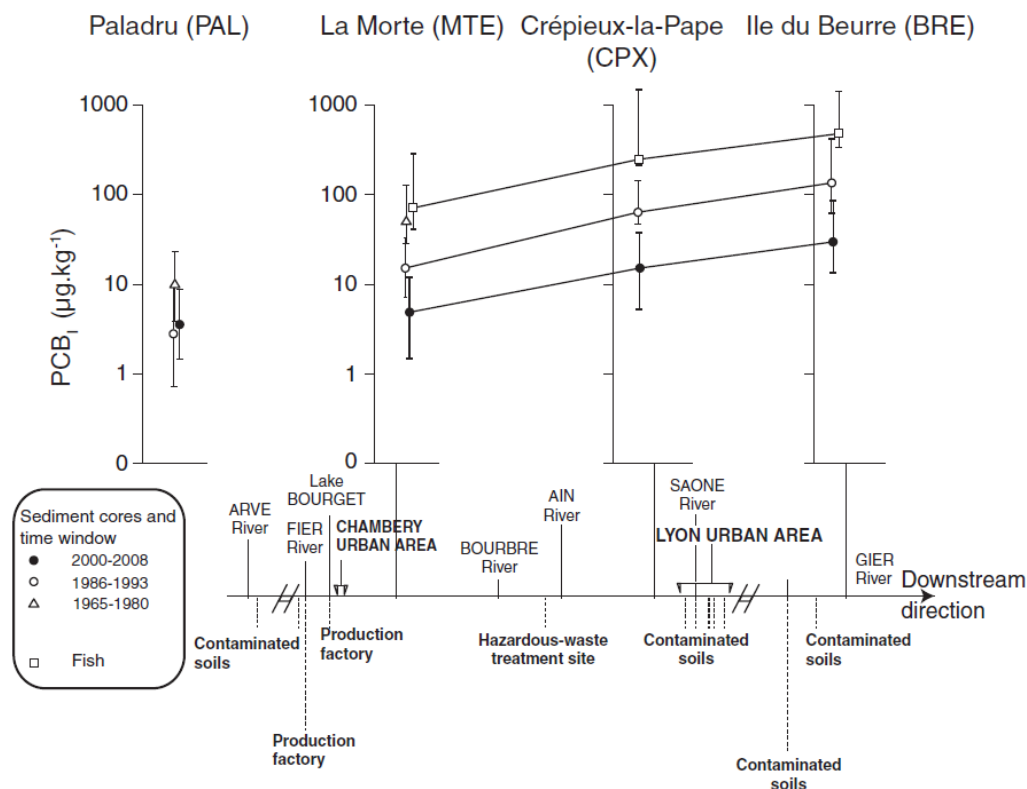


Figure 12 : Représentation schématique de la contamination en PCB des sédiments le long du Rhône (d'après Desmet *et al.*, 2012 [36])

5.2.3 Cartographie de la contamination des sédiments à l'échelle régionale

Une étude a été conduite par la Direction régionale de l'Environnement, de l'Aménagement et du Logement (DREAL) de la région Rhône-Alpes [22]. L'objectif de cette étude est d'exploiter, sur la période 2006-2011, les données issues de la surveillance des milieux aquatiques (données obtenues auprès de l'AERMC, de l'AELB et de la DREAL Rhône-Alpes) afin de fournir un panorama de la contamination spatiale des sédiments de la région Rhône-Alpes en métaux et en micropolluants organiques. Les données étudiées sont des données de sédiment de surface avec prélèvement annuel. Les valeurs observées sont mises en regard de seuils de référence (notamment TEC/PEC, seuils SEQ'Eau et PNEC) lorsque ces derniers sont disponibles.

Le rapport présente les résultats sous forme de cartes avec représentation ponctuelle (un point correspondant à une station ; une carte par substance). A partir des données obtenues, l'étude retient, pour chaque substance et chaque station, la concentration maximale observée sur la période 2006-2011. Les auteurs reconnaissent qu'il s'agit d'une approche « sévère » mais la retiennent au détriment de la valeur moyenne, car plusieurs stations étudiées n'ont été échantillonnées qu'une ou deux fois au cours de la période considérée, rendant la moyenne peu pertinente dans ces cas. Ces maxima sont ensuite répartis selon un système de 5 classes de concentrations définies à l'aide des premier et neuvième déciles et des premier et troisième quartiles. A chacune de ces classes correspond un code couleur, d'autant plus sombre que les concentrations sont élevées (cf. Figure 13 montrant l'exemple du cuivre).

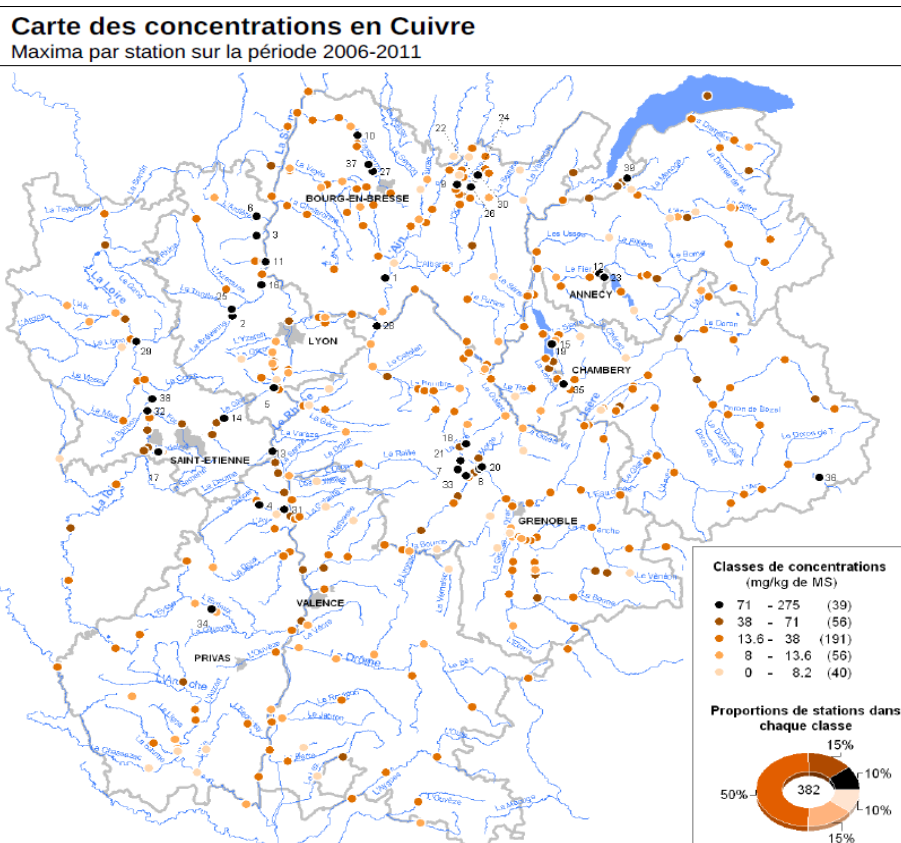


Figure 13 : Carte des concentrations maximales en cuivre observées dans les sédiments de la région Rhône-Alpes au cours de la période 2006-2011 (d'après Bourg, 2013 [22])

Par ailleurs, l'étude propose une méthodologie d'attribution de classes « multi-composés ». Cela permet de grouper les informations relatives à l'ensemble des

substances d'un même groupe et de donner un aperçu plus global de la contamination des sédiments tout en limitant le nombre de représentations (une seule carte pour plusieurs substances au lieu d'une carte par substance). Le rapport présente quatre différentes méthodologies d'attribution de classes pour quatre familles (métaux, HAP, PCB et autres composés organiques). La Figure 14 donne le schéma de la méthodologie appliquée pour la famille des métaux et la famille des HAP.

Chaque station se voit ainsi attribuer une classe numérotée de 0 à 3 (une classe pour chaque famille). Pour chaque station, la classe la plus déclassante (correspondant à la plus élevée) parmi les 4 familles est retenue et représentée sur une carte (cf. Figure 15).

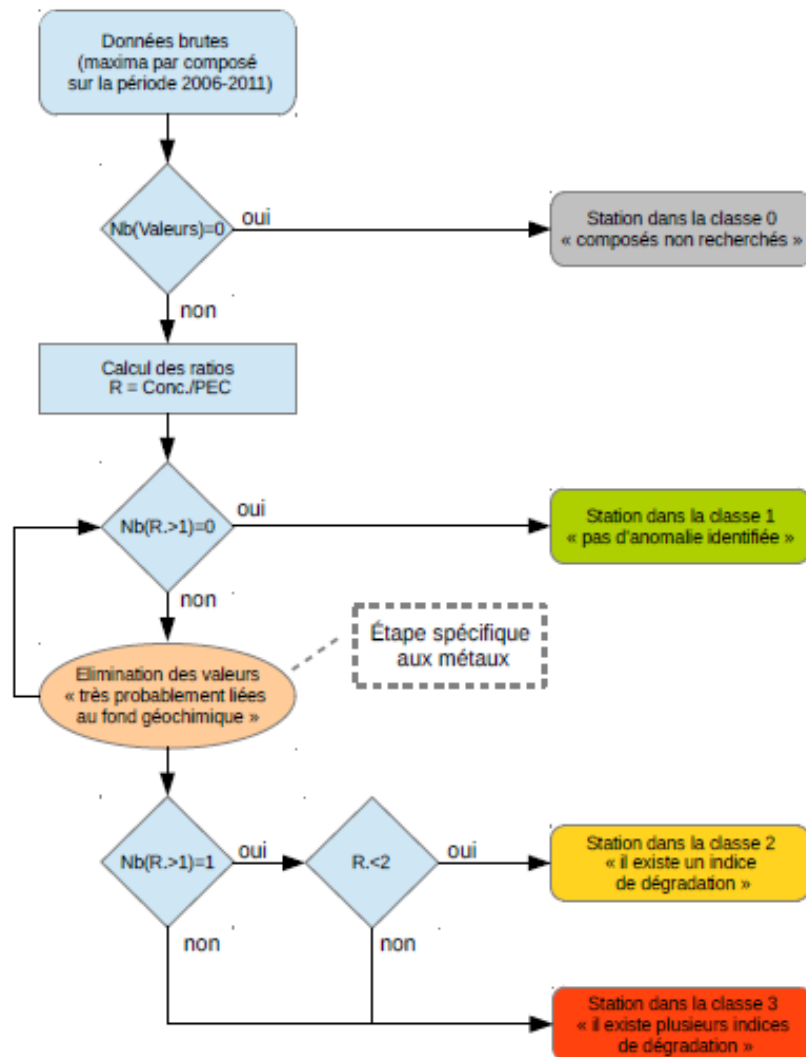


Figure 14 : Logigramme méthodologique pour l'attribution d'un indice multi-contaminants (cas des métaux et des HAP) (d'après Bourg, 2013 [22])

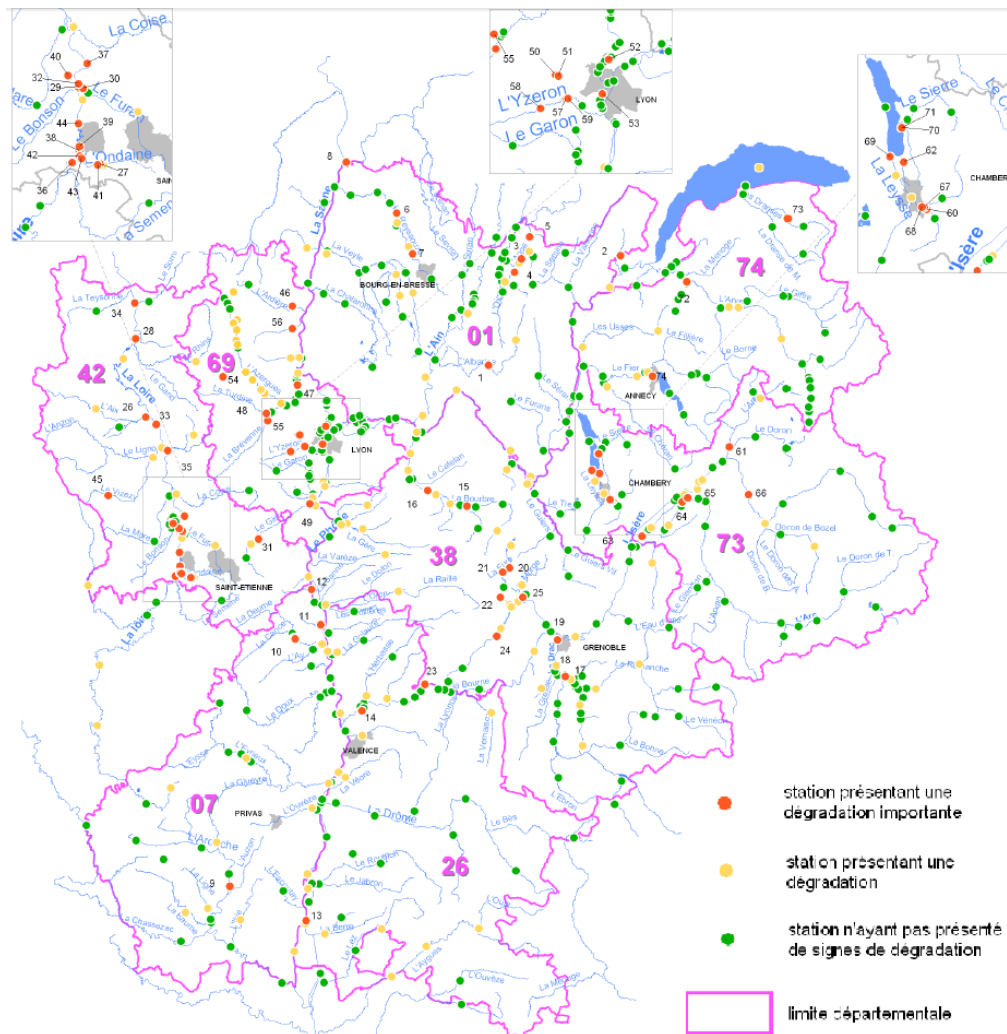


Figure 15 : Carte de la contamination des sédiments de la région Rhône-Alpes par des micropolluants organiques et inorganiques d'après le calcul d'indices « poly-contaminants » (d'après Bourg, 2013 [22])

Le code couleur pour les classes est identique à celui de la figure 11, seule la classe 0 n'est pas représentée.

L'étude présente certaines limites soulignées par les auteurs eux-mêmes. Notamment, les données représentées sur les cartes (exemple de la Figure 13) sont des données non normalisées, ce qui rend plus délicate la comparaison entre les différentes stations car l'hétérogénéité des sédiments prélevés aux différentes stations peut avoir une grande influence sur la variabilité des résultats. Ainsi, si cette étude permet d'avoir un premier aperçu de la contamination des sédiments à l'échelle d'une région, l'interprétation des résultats obtenus doit être faite avec prudence.

5.2.4 Suivi de l'évolution temporelle de la contamination des milieux aquatiques à l'échelle régionale

La Direction Régionale et Interdépartementale de l'Environnement et de l'Energie (DRIEE) d'Île-de-France a dressé un état des lieux de la contamination des cours d'eau de la région d'Île-de-France en utilisant les données issues de la surveillance sur la période 2008-2011 [21]. L'étude porte à la fois sur la contamination des eaux superficielles, des sédiments et du biote ; concernant les sédiments, les substances étudiées comprennent notamment les métaux, les HAP et les PCB.

Le rapport présente un état des lieux de la contamination à l'aide de cartes (cf. Figure 16 à titre d'exemple pour les métaux). Dans le cas des sédiments, les auteurs ont choisi de comparer les concentrations observées aux Recommandations Canadiennes pour la Qualité des Sédiments pour les métaux et les HAP et aux seuils écotoxicologiques OSPAR pour les PCB. Différentes classes de concentration (5 pour les métaux et les HAP et 2 pour les PCB) associées à un code couleur sont élaborées sur la base de ces valeurs de référence. Pour chaque station étudiée et pour chaque année, la contamination de la station (valeur moyenne annuelle) est évaluée au regard de ces seuils : au niveau de chaque station, chaque petite case coloriée indique le niveau de contamination pour les années 2008 à 2011 (une case par année, donc 4 cases par station).

Ainsi, le rapport de la DRIEE propose d'indiquer l'évolution de la contamination des sédiments à l'échelle de la région sur quatre années plutôt que de ne retenir qu'une seule valeur pour l'ensemble de la période considérée.



Figure 16 : Carte des concentrations en métaux dans les sédiments de la région Île-de-France sur la période 2008-2011 (d'après Lavielle, 2013 [21])

La méthodologie choisie par cette étude a l'avantage de coupler une approche spatiale (représentation à l'aide de cartes) et une approche temporelle (représentation de la contamination sur quatre années successives). Il s'agit donc là d'un exemple de représentation spatio-temporelle de la contamination des sédiments. Cependant, il se pose rapidement un problème de visibilité. En effet, les cartes sont rapidement surchargées de petites cases coloriées parfois très différentes d'une année sur l'autre et sur des sites voisins, ce qui rend l'exploitation des résultats difficile. Par ailleurs, comme dans le cas précédent, les données représentées sont des données non normalisées (nécessaire pour pouvoir comparer les concentrations observées aux valeurs de référence) : la comparaison d'un point de vue spatial comme temporel doit donc être faite avec prudence. Le rapport indique ainsi que les travaux d'estimation des fonds géochimiques locaux doivent être intensifiés afin de pouvoir prendre en compte cette donnée et ainsi préciser l'état des lieux de la contamination des bassins.

5.2.5 Exploitation de données sédiments issues de la surveillance à l'échelle d'un bassin

Depuis 2016, le Cerema (Centre d'études et d'expertise sur les risques, l'environnement, la mobilité et l'aménagement) Nord-Picardie exploite les données sur les sédiments de l'AEAP afin de fournir un état des lieux de la contamination des sédiments [18]. L'étude est focalisée sur les métaux et les PCB et est menée sur 84 stations du bassin Artois-Picardie. Elle s'attache à l'évaluation des tendances temporelles et à l'étude des contaminations au niveau spatial. Plusieurs axes d'études sont abordés et seuls quelques-uns sont décrits dans cette section.

Eu égard au grand nombre de stations traitées, l'étude prend soin d'effectuer une analyse en composantes principales (ACP). Cette technique permet de différencier plusieurs groupes de stations en fonction des contaminations observées et ainsi d'avoir un premier aperçu global de la contamination à l'échelle du bassin. Des comparaisons sont ensuite établies entre les concentrations observées sur les différentes stations et des valeurs de référence (TEC/PEC, seuils réglementaires flamands et PNEC notamment) afin de caractériser la contamination métallique des sédiments : ces valeurs de références servent à établir des classes de concentration. La contamination est également établie en termes de facteurs d'enrichissement (FE) calculés par rapport au fer selon la méthodologie décrite en 5.3.2 (Equation 1) et les valeurs de FE sont également réparties en 3 classes d'amplitude fixe (cf. Figure 17).

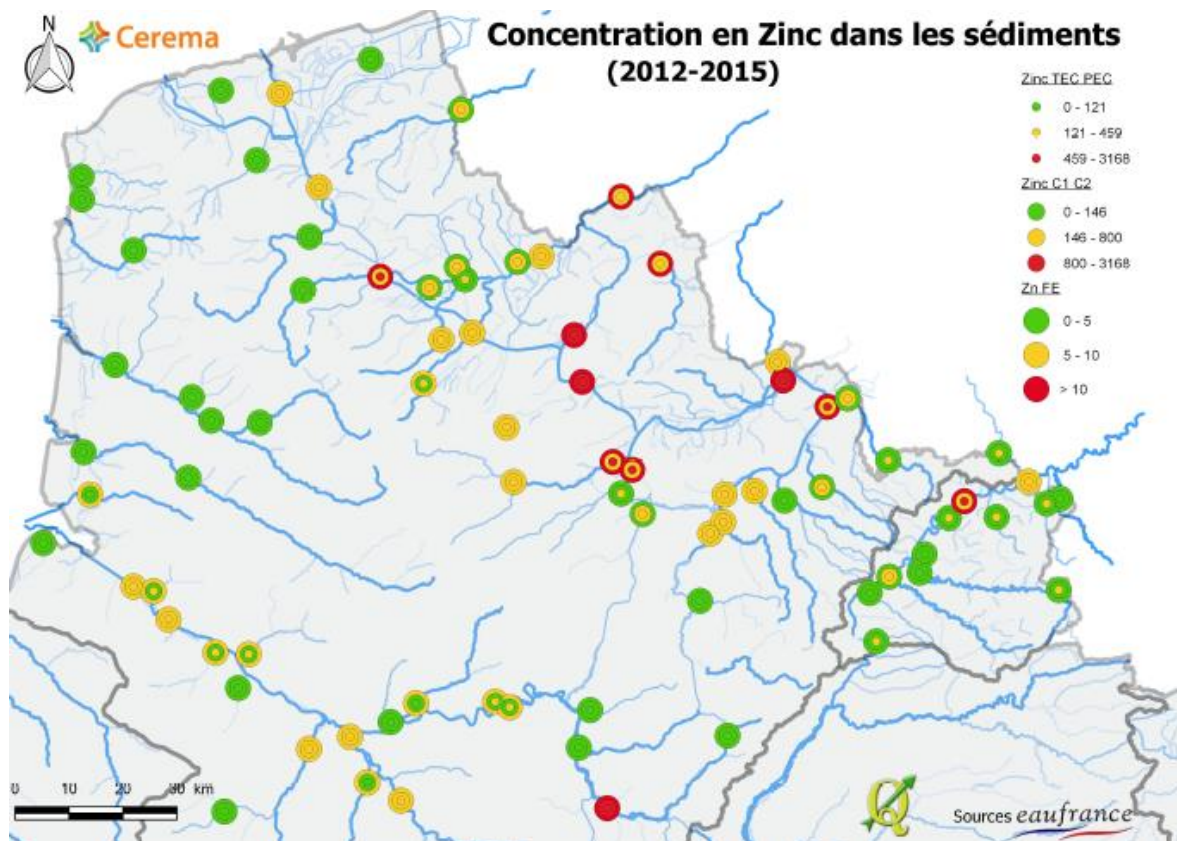


Figure 17 : Représentation de la contamination en zinc des sédiments du bassin Artois-Picardie (d'après Prygiel, 2017 [18]).

Les petits cercles comparent la concentration brute aux TEC/PEC, les cercles intermédiaires comparent la concentration brute aux seuils réglementaires flamands et les grands cercles indiquent la valeur du facteur d'enrichissement.

La représentation choisie ici cumule pour chaque station trois marqueurs ponctuels pour chaque approche de la contamination (en fonction des TEC/PEC, en fonction des seuils flamands et en fonction du facteur d'enrichissement), en associant à chaque marqueur une taille différente. Cette représentation est utile pour établir si les trois approches de classification de la contamination fournissent des résultats similaires. En revanche, il y a un risque de perdre en visibilité et en simplicité de lecture, notamment si les stations sont nombreuses et si les résultats de ces trois approches diffèrent grandement entre les stations et pour une même station.

Afin de représenter la distribution spatiale de la contamination métallique des sédiments, l'étude propose de calculer un « indice métaux » : sur chaque station, pour chaque métal, un score de 0 à 2 est attribué en comparant la valeur moyenne sur une période donnée à des seuils réglementaires (seuils réglementaires flamands dans le cas présent), et le score total de la station est la somme des scores obtenus pour chaque métal (ainsi, pour huit métaux, le score varie entre 0 et 16). On peut ainsi représenter les résultats obtenus sur une carte avec un code couleur (cf. Figure 18).

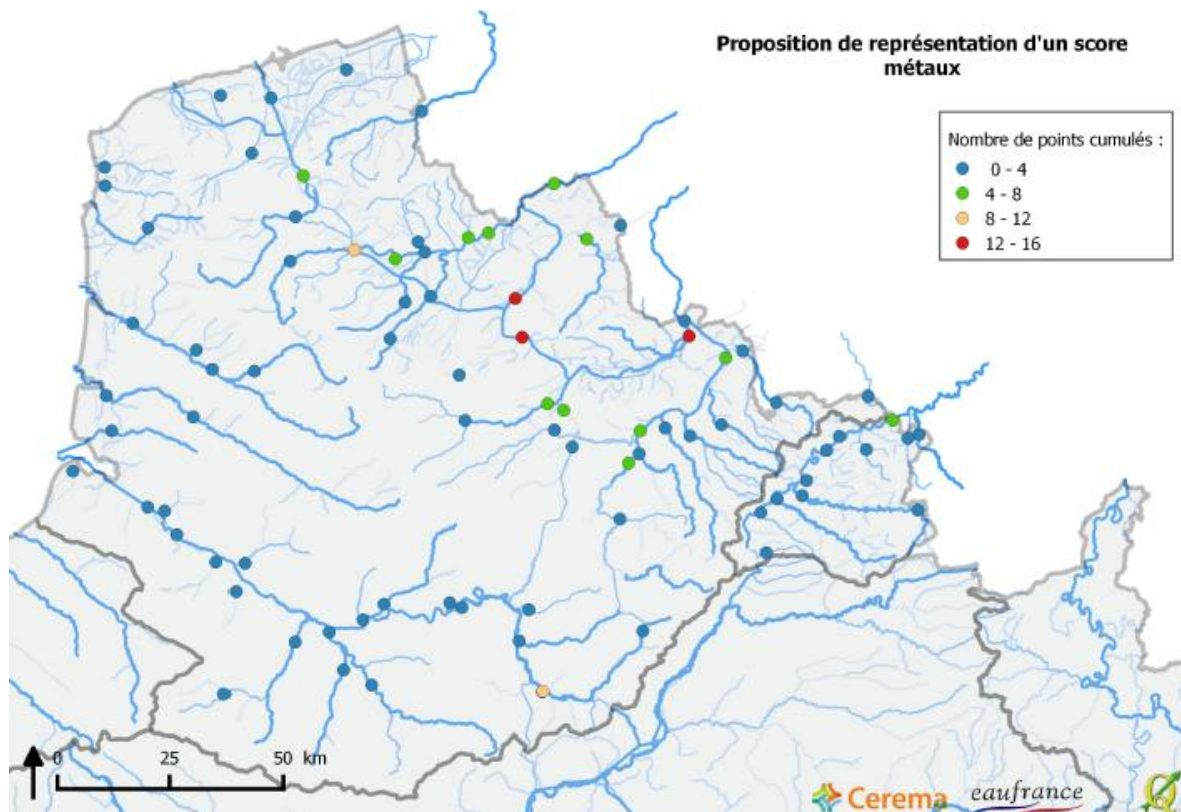


Figure 18 : Carte de la contamination métallique des sédiments du bassin Artois-Picardie déterminée à l'aide de scores « multi-contaminants » (d'après Prygiel, 2017 [18])

Par ailleurs, l'étude du Cerema s'intéresse également au suivi de la contamination le long d'un cours d'eau, en sélectionnant des stations situées en amont et en aval d'un cours d'eau et en comparant les concentrations observées à ces stations à des seuils réglementaires. Les facteurs d'enrichissement (calculés par rapport au fer) sont également calculés. L'objectif est de parvenir à mettre en relation les contaminations observées avec de possibles sources de pollution comme des sites sidérurgiques. En revanche, cette étude n'a pas fait l'objet d'une représentation schématique ou cartographique particulière.

5.2.6 Analyse spatiale approfondie de la contamination métallique des sédiments à l'échelle d'un bassin

Le projet SPAL (*Spatial Analyses of the Loire*) est coordonné par le GÉHCO de l'Université François Rabelais de Tours [20]. Il a pour but de cartographier la contamination du bassin de la Loire, au niveau local et au niveau régional, et d'identifier les principaux facteurs de contamination pour rendre compte de la distribution spatiale des contaminants. Pour ce faire, les informations fournies par différentes bases de données sont mises en relation. Seuls les éléments trace métalliques ont été étudiés.

Dans le cadre de ce projet, de nombreux aspects de l'étude des distributions spatiales des contaminants métalliques dans les sédiments ont été passés en revue de manière critique. Les auteurs, qui choisissent de représenter les résultats à l'aide de cartes, posent notamment la question du choix du type d'implantation (mode de représentation sur une carte) : surfacique (la surface entre deux stations est associée à une couleur correspondant à la valeur de la station aval), linéaire (le long du cours d'eau) ou ponctuelle (indication de la valeur à la station). Le mode d'implantation ponctuel est privilégié car il ne requiert pas d'hypothèses sur le mode de transport ou la zone d'influence de la contamination.

Le rapport aborde également la question de l'élaboration des classes de concentration et choisit de travailler selon une méthode dite par effectifs progressifs (cf. Figure 19) qui produit 4 classes de concentrations où sont réparties les valeurs moyennes des résultats observés. Cette méthodologie n'utilise donc pas de seuils de référence pour la comparaison des données, et peut ainsi être également appliquée à des données normalisées.

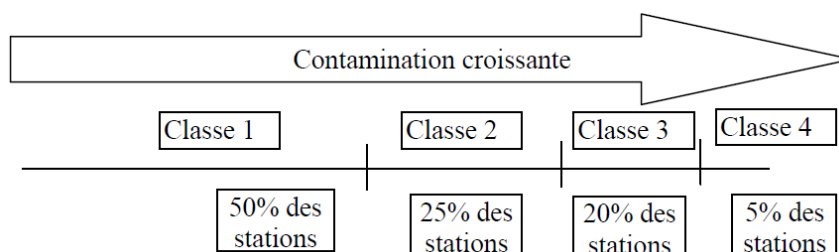


Figure 19 : Méthode d'élaboration des classes de concentration selon la technique des effectifs progressifs (d'après Castel et al., 2014 [20])

Il résulte de cette méthodologie des cartes telles que celle présentée sur la Figure 20.

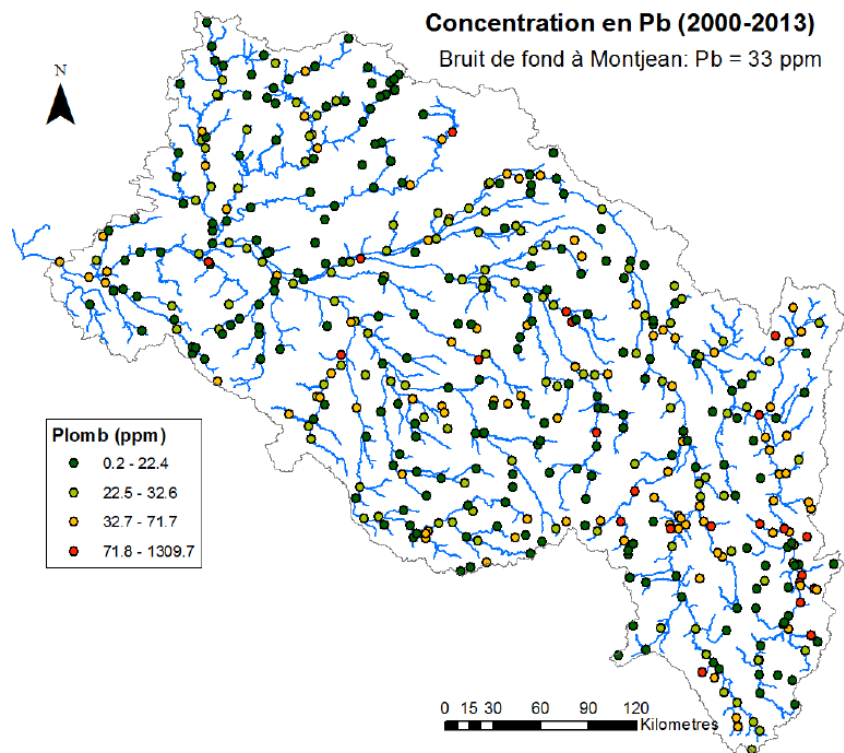


Figure 20 : Carte de la contamination en plomb des sédiments du bassin Loire-Bretagne sur la période 2000-2013, exprimée à l'aide des valeurs moyennes non-normalisées (d'après Castel et al., 2014 [20])

Centré sur les métaux, le rapport pose également la question de l'importance du fond géochimique, c'est-à-dire des concentrations naturelles en éléments métalliques dans les sédiments. Il propose ainsi de prendre en compte cette donnée lors de l'étude des distributions spatiales des contaminants métalliques dans les sédiments, en calculant par exemple des facteurs d'enrichissement (FE ; voir la section 5.3.2 pour la formule de calcul). Le bruit de fond géochimique est ici déterminé en utilisant les concentrations élémentaires mesurées en profondeur dans une carotte prélevée en aval du bassin versant. Les facteurs d'enrichissement (par rapport à la concentration en aluminium dans le cas présent) peuvent ainsi être représentés de manière ponctuelle sur une carte, à l'image des concentrations brutes (cf. Figure 21).

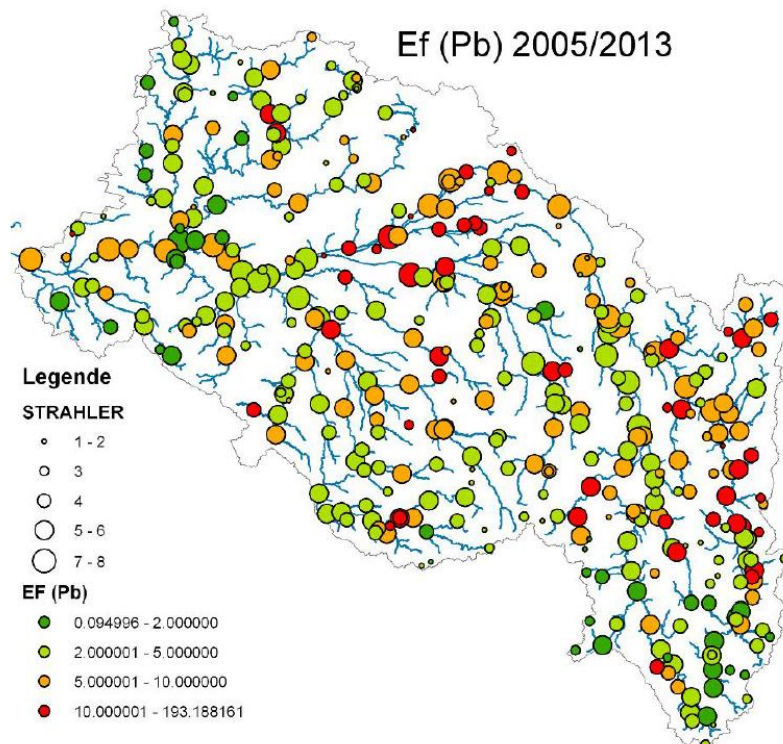


Figure 21 : Carte de la contamination en plomb des sédiments du bassin Loire-Bretagne sur la période 2005-2013, exprimée à l'aide des facteurs d'enrichissement par rapport à la concentration en aluminium (d'après Castel *et al.*, 2014 [20])

Enfin, le projet SPAL s'intéresse également au profil de contamination le long d'un linéaire de cours d'eau et à la mise en relation des pics de contamination avec de possibles sources de pollution situées en amont de ces pics. La représentation schématique obtenue est similaire à celle décrite en 5.2.3 dans l'étude de Desmet *et al.*, 2012 [35] (cf. Figure 22). La contamination y est représentée en termes de facteurs d'enrichissement calculés à partir des données disponibles. L'étude approfondit la question de l'origine des contaminations en croisant les informations issues de plusieurs bases de données afin de calculer des indicateurs relevant de différentes catégories de pollution (industrielle, minière, agricole et urbaine). L'objectif à terme est de construire une méthodologie statistique mettant en relation ces indicateurs et les valeurs des concentrations observées dans le cadre de la surveillance des milieux aquatiques.

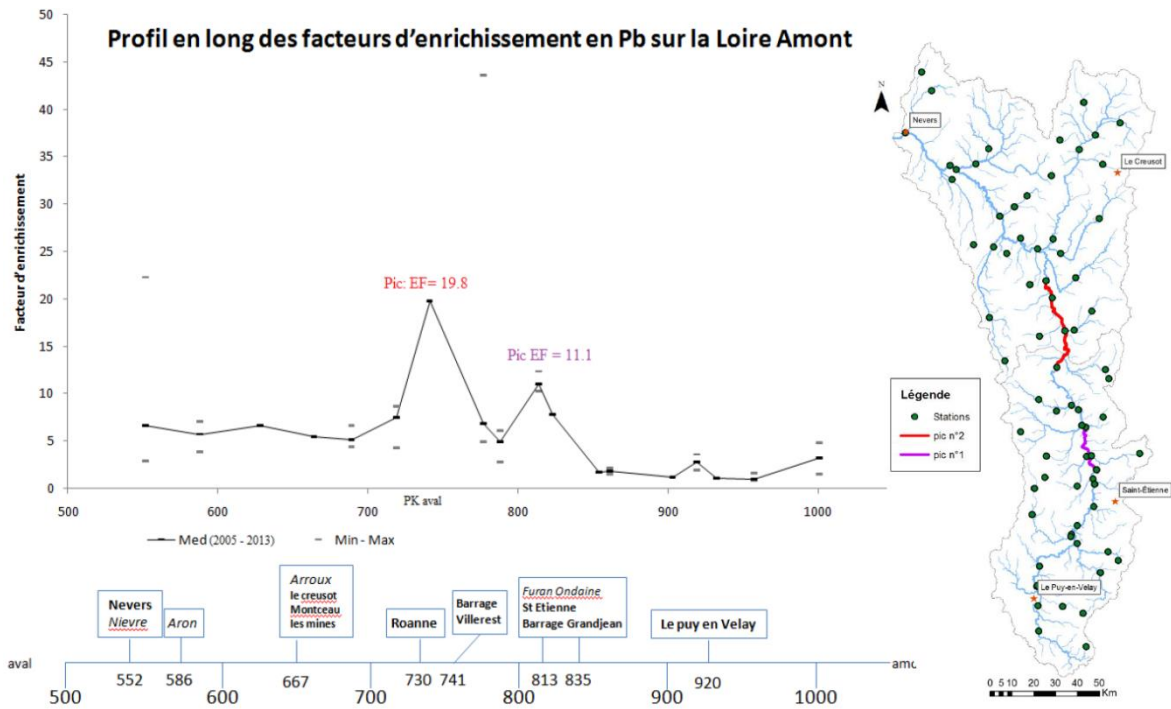


Figure 22 : Profil en long des facteurs d'enrichissement en plomb (moyenne sur la période 2005-2013) dans les sédiments le long de la Loire (d'après Castel et al., 2014 [20])

Cette étude bibliographique illustre la grande variété des pratiques envisageables pour l'établissement des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments. De manière générale, le choix du mode d'exploitation et de représentation des données est grandement conditionné par l'objectif et le périmètre de l'étude. De fait, chaque pratique citée dans le Tableau 31 sera plus ou moins adaptée ou pertinente à mettre en place en fonction de l'étude réalisée.

5.3 ÉLÉMENTS METHODOLOGIQUES POUR L'ETUDE DES DISTRIBUTIONS SPATIALES DES CONTAMINANTS DANS LES SEDIMENTS

A la suite de l'étude bibliographique présentée ci-dessus, AQUAREF propose des éléments méthodologiques permettant de guider une exploitation de données sédiment en termes de distributions spatiales. L'objectif à terme est de présenter une méthodologie détaillée comme cela a été fait pour les tendances temporelles.

5.3.1 Caractérisation et étude préliminaire des données

A l'image de ce qui a été décrit pour les tendances temporelles (cf. section 3.1), il est nécessaire de procéder à un examen préliminaire des données avant toute exploitation. Cela permet notamment de vérifier que la qualité des données est satisfaisante vis-à-vis du périmètre et des objectifs de l'étude.

Les principaux éléments à définir au préalable dans le cadre d'une étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments sont les suivants :

- Le *périmètre de l'étude*
 - o L'étude est-elle réalisée à l'échelle d'un cours d'eau (et ses éventuels affluents), d'un plan d'eau, d'un bassin versant ou d'un bassin hydrographique ?
 - o Combien de stations/sites d'étude sont compris dans l'étude ? Comment sont répartis ces sites sur la zone d'étude ? S'agit-il de stations appartenant aux réseaux de surveillance usuels ou de sites sélectionnés précisément pour cette étude ?

- La *période d'étude*. Ainsi que le montre l'étude bibliographique, la majorité des études de la contamination sur le plan spatial présentent une « synthèse » de la contamination sur une période donnée.
 - o L'étude porte-t-elle sur une année (« photographie » de la zone) ou sur une période de plusieurs années (« synthèse ») ?
 - o Combien de prélèvements de sédiment ont été effectués (nombre et fréquence sur la période) ? S'agit-il de prélèvements de sédiment de surface ou de carottage ?

- Les *substances suivies*
 - o Les polluants suivis sont-ils des micropolluants organiques ou inorganiques (métaux) ?
 - o Des paramètres normalisateurs ont-ils été suivis en même temps que les micropolluants ?
 - Aluminium ou fer pour les métaux.
 - Carbone organique ou perte au feu pour les micropolluants organiques.
 - Granulométrie.

A l'instar d'une étude des tendances temporelles, il est également important d'étudier la fréquence de quantification des données. Cela permet par exemple d'identifier des parties de la zone d'étude ou des paramètres pour lesquels la contamination est trop faible vis-à-vis des limites de quantification. Si une étude quantitative des résultats est prévue et que ces données non-quantifiées doivent être prises en compte, un choix doit être fait quant à la valeur numérique à attribuer aux données non-quantifiées. Une solution couramment utilisée consiste à remplacer les valeurs inférieures à la LQ par une valeur égale à LQ/2, comme recommandé dans la directive européenne 2009/90/CE [43] (dite directive QA/QC). D'autres solutions, comme le remplacement des valeurs inférieures à la LQ par la valeur de la LQ ou par 0 sont possibles. A ce stade, l'utilisation de LQ/2 apparaît comme un compromis acceptable.

Ensuite, un examen attentif des données peut également permettre d'identifier :

- des changements de prestataire ou de méthode analytique ;
- des valeurs aberrantes ;
- des erreurs de report de résultat, d'unité ou de code SANDRE.

Une étude préliminaire statistique des données doit également être menée en calculant les descripteurs statistiques usuels : moyenne, médiane, minimum, maximum et écart-type. Un écart important entre la moyenne et la médiane doit alerter sur la possible présence de valeurs extrêmes et inciter à conduire un test de détection des valeurs aberrantes (test de Grubbs, par exemple).

5.3.2 Exploitation des données

L'objectif de l'étude et la nature des données exploitées conditionnent grandement le choix du mode d'exploitation et de représentation des données, comme le montrent les exemples détaillés ci-dessus. Ainsi, l'établissement d'un profil de contamination le long d'un linéaire de cours d'eau requiert une approche différente de la cartographie de la contamination des sédiments à l'échelle régionale (c'est-à-dire potentiellement sur de nombreux cours d'eau). L'objectif de cette section est de donner quelques clés permettant d'orienter l'utilisateur quant au choix de l'approche à entreprendre, notamment dans le cas des études à l'échelle d'un bassin hydrographique.

Normalisation des données

Comme pour l'étude des tendances temporelles, la question de la normalisation des données doit être considérée. Si une opération de normalisation est effectuée dans le cadre d'une étude des distributions spatiales, elle doit être clairement décrite.

Les principales possibilités indiquées dans le Tableau 1 sont également valables pour l'étude des distributions spatiales : normalisation géochimique (Al ou Fe) pour les métaux, normalisation par la teneur en COT ou perte au feu pour les micropolluants organiques et normalisation par la granulométrie. La corrélation entre concentration en contaminant et paramètre normalisateur doit toujours être vérifiée. La méthode de normalisation employée dans le cadre de l'exploitation des données AEAP et AERM ci-dessus (division de la concentration en micropolluant par le paramètre normalisateur, cf. section 3.2) peut également être employée.

Dans le cadre d'une étude des distributions spatiales des métaux dans les sédiments, la prise en compte du fond géochimique et le calcul de facteurs d'enrichissement apparaissent comme une piste d'exploitation pertinente pour la normalisation des données. La formule du calcul du facteur d'enrichissement (FE) est donnée ci-dessous (exemple avec la concentration en aluminium comme paramètre normalisateur) [44] :

$$FE = \frac{\left(\frac{[M]}{[Al]}\right)_{éch}}{\left(\frac{[M]}{[Al]}\right)_{réf}} \text{ (Equation 1)}$$

où :

- [M] est la concentration en élément métallique étudié ;
- [Al] est la concentration en aluminium ;
- « éch » désigne l'échantillon étudié ;
- « réf » désigne les niveaux du fond géochimique, usuellement les teneurs de l'ère préindustrielle, déterminées par exemple à l'aide de carottes sédimentaires.

Les classes de répartition des valeurs des FE sont des classes d'amplitude fixées préalablement. Il n'existe pas de classification « universelle » concernant les FE mais la

plupart des publications emploient des classifications relativement similaires (cf. notamment Salomons & Forstner, 1984 [44]).

Cette opération peut être vue comme une « double normalisation » qui permet de s'affranchir de la variabilité due aux différents prélèvements effectués sur différents sites et de mieux prendre en compte le contexte géochimique duquel les sédiments prélevés sont issus, permettant une meilleure interprétation des résultats. En effet, si deux sites (1 et 2) présentent des concentrations normalisées similaires, cela ne signifie pas forcément que les niveaux d'enrichissement le sont : si le site 1 présente en réalité un fond géochimique plus élevé que le site 2, alors le site 2 est en réalité plus enrichi en contaminant que le site 1. La prise en compte du fond géochimique et le calcul des facteurs d'enrichissement permettent de prendre en compte cette disparité.

Si le fond géochimique est déterminé, la méthode de détermination doit être clairement indiquée. Certaines valeurs peuvent par exemple être trouvées dans la littérature [19]. De plus, il est nécessaire d'indiquer si l'on dispose de niveaux de référence pour tous les sites considérés, pour une partie d'entre eux ou si une seule valeur de fond est utilisée pour l'ensemble du bassin (exemple du projet SPAL [20]).

Dans tous les cas (étude des contaminants métalliques ou organiques), la méthode de normalisation doit le cas échéant être clairement indiquée.

Hierarchisation des sites

Préalablement à la représentation proprement dite des données, il est recommandé de procéder à une hiérarchisation des sites en fonction de leurs niveaux de contamination.

L'AEAP a réalisé un travail de hiérarchisation de ses différentes stations en exploitant les données de contamination des sédiments obtenues en 2007 et en 2011. Sur la base de descripteurs statistiques usuels (moyenne, médiane et percentiles), trois scores sont attribués à chaque station pour les deux années :

- un score pour les résultats obtenus sur les métaux ;
- un score pour les résultats obtenus sur les contaminants organiques ;
- un score global prenant en compte toutes les substances.

Les stations sont ensuite classées en fonction de ces différents scores pour identifier les stations les plus polluées (cf. Figure 23).

Métaux				Organiques hors TBT					
N°	STATION DE MESURE	2007	2011	Global	N°	STATION DE MESURE	2007	2011	Global
083000	LE CANAL DE LENS À HARNES (62)	13	11	24	037000	LA SCARPE CANALISÉE À BREBIÈRES (62)	3	2	5
051000	L'ESPIERRE À WATTRELOS (59)	11	13	24	083000	LE CANAL DE LENS À HARNES (62)	1	4	5
086000	LA MARQUE À WASQUEHAL (59)	12	10	22	002100	LA FLAMENNE À MAUBEUGE (59)	1	3	4
041000	LA SCARPE CANALISÉE À NIVELLE (59)	8	14	22	079000	LA DEULE CANAL À DON (59)	3	0	3
059000	LA LYS CANALISÉE À WERVICQ (59)	11	9	20	023000	L'ERCLIN À IWUY (59)	2	1	3
037000	LA SCARPE CANALISÉE À BREBIÈRES (62)	9	9	18	051000	L'ESPIERRE À WATTRELOS (59)	1	2	3
063900	LE CANAL D'AIRE À LA BASSÉE À AIRE SUR LA LYS (62)	9	8	17	086000	LA MARQUE À WASQUEHAL (59)	0	2	2
002100	LA FLAMENNE À MAUBEUGE (59)	9	7	16	063900	LE CANAL D'AIRE À LA BASSÉE À AIRE SUR LA LYS (62)	1	1	2
079000	LA DEULE CANAL À DON (59)	7	7	14	012000	L'ESCAUT CANALISÉ À ESWARS (59)	2	1	3
119000	LA SOMME RIVIÈRE À OFFOY (80)	4	10	14	069000	LA CLARENCE À CHOCQUES (62)	2	0	2

Toutes substances				
N°	STATION DE MESURE	2007	2011	Global
083000	LE CANAL DE LENS À HARNES (62)	14	16	30
051000	L'ESPIERRE À WATTRELOS (59)	12	15	27
086000	LA MARQUE À WASQUEHAL (59)	12	12	24
041000	LA SCARPE CANALISÉE À NIVELLE (59)	9	14	23
037000	LA SCARPE CANALISÉE À BREBIÈRES (62)	12	11	23
059000	LA LYS CANALISÉE À WERVICQ (59)	11	11	22
002100	LA FLAMENNE À MAUBEUGE (59)	10	10	20
063900	LE CANAL D'AIRE À LA BASSÉE À AIRE SUR LA LYS (62)	10	9	19
079000	LA DEULE CANAL À DON (59)	10	7	17
012000	L'ESCAUT CANALISÉ À ESWARS (59)	10	6	16

Figure 23 : Exemple de classement de stations de l'AEAP en fonction de scores établis sur la base des données métaux et micropolluants organiques en 2007 et 2011 (d'après AEAP, communication directe)

Ce travail n'a cependant pas fait l'objet de publication de la part de l'AEAP. Ces tableaux ont été communiqués directement à AQUAREF par l'AEAP.

Un autre exemple de hiérarchisation des stations en fonction de leur niveau de contamination est proposé dans le rapport de l'OSR de Poulier *et al.* (2017) [11]. Dans ce rapport (basé sur les MES mais transposable aux sédiments de surface dans une certaine mesure), la méthode de classement des sites débute, pour chaque contaminant, par le calcul de la médiane et des premier et troisième quartiles des concentrations obtenues pour tous les sites confondus ($Médiane_{\text{tous_sites}}$; $Q1_{\text{tous_sites}}$ et $Q3_{\text{tous_sites}}$). Ces valeurs servent ensuite de bornes pour établir quatre classes de concentration permettant de classer les sites en fonction de la valeur médiane $Médiane_{\text{site}_i}$ obtenue pour le contaminant considéré. En fonction de la position de cette médiane vis-à-vis de ces classes de concentration, un score de 1 à 4 est attribué à la station. La méthodologie est résumée sur la Figure 24, où sont reportés quatre exemples de sites illustrant chaque score possible.

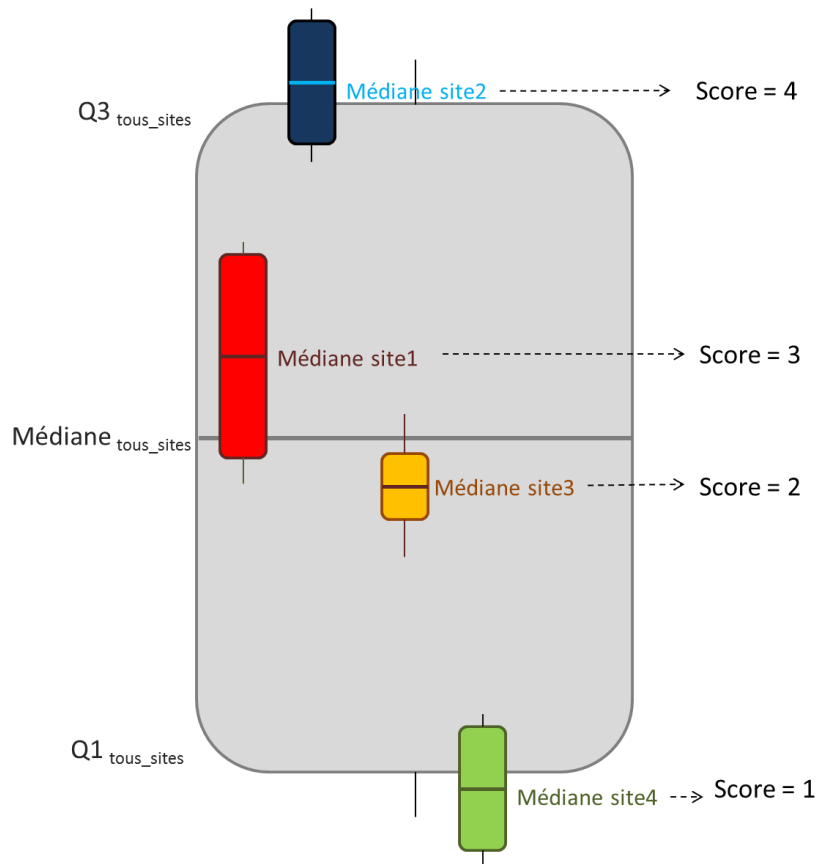


Figure 24 : Méthode de hiérarchisation des sites selon la médiane et les premier et troisième quartiles obtenus pour tous les sites étudiés (d'après Poulier et al., 2017 [11])

Bien que potentiellement assez lourde à mettre en œuvre dans le cas où un grand nombre de substances et/ou de stations sont suivies, cette méthode permet d'identifier rapidement, à l'aide d'un code couleur judicieusement choisi, les stations les plus contaminées (cf. Figure 25).

Famille	Substance	Arles	Jons	Saône	Gier
Mercure	Hg	3	1	4	4
PCBi	PCB101	3	2	3	4
	PCB118	3	1	3	4
	PCB138	3	2	3	4
	PCB180	3	2	3	4
	PCB153	3	2	3	4
HAP	2-Méthyl fluoranthène	3	2	4	4
	2-Méthyl naphthalène	1	1	3	4
	Anthanthrene	1	3	4	3
	Anthracène	3	2	3	4
	Benzo(a)Anthracène	2	2	4	4
	Benzo(a)Pyrène	2	2	4	4
	Benzo(b)Fluoranthène	2	2	4	4
	Benzo(ghi)Péridène	2	2	4	4
	Benzo(k)Fluoranthène	2	2	4	4
	Chrysène	2	2	3	4
	Dibenzo(ah)Anthracène	2	2	3	4
	Fluoranthène	2	2	4	4
	Indéno(123-cd)Pyrène	2	2	4	4
	Naphthalène	3	2	2	4
	Phénanthrène	2	2	3	4
Pyrène	2	2	3	4	
Glypho	AMPA	2	2	3	4
Phtalates	DEHP	1	4	3	
Radionucléides	Césium-137	3	2	3	

Figure 25 : Classement de quatre stations de l'Observatoire des Sédiments du Rhône sur la base de scores établis selon la méthode des descripteurs tous sites confondus (d'après Poulier et al., 2017 [11]).

Les sites du Gier et de la Saône apparaissent clairement comme les plus contaminés.

5.3.3 Représentation des données

Les différentes possibilités de représentation des données sont conditionnées par le type d'étude spatiale réalisée (notamment en ce qui concerne le périmètre d'étude) et par le mode d'exploitation des données choisi en fonction des objectifs de l'étude. La représentation des données doit permettre d'apporter une réponse synthétique et lisible à l'objectif affiché de l'étude.

La représentation des résultats sur une carte semble être l'option la plus pertinente dans le cadre d'une étude spatiale, *a fortiori* lorsque celle-ci concerne un grand nombre de sites répartis sur l'ensemble du périmètre d'étude. Ce type de représentation permet de rendre compte de façon lisible des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments ; il est également utile dans le cadre de résultats à communiquer à un public non-spécialiste. Toutefois, la représentation sous forme de carte nécessite de définir un certain nombre d'éléments :

- **Le type d'implantation** : on désigne par « implantation » la façon dont les résultats sont représentés sur une carte. Il existe trois types d'implantation (cf. Figure 26) :

- l'implantation ponctuelle consiste à représenter la contamination uniquement à la station ;
- l'implantation linéaire consiste à représenter les valeurs le long d'un linéaire de cours d'eau ; les valeurs entre deux sites de prélèvement sont donc interpolées selon une hypothèse de variation linéaire entre deux stations ;
- l'implantation surfacique consiste à représenter la contamination à l'aide de surfaces colorées entre deux stations, la couleur de la surface représentant la contamination à la station située en aval. Cette représentation dépend de la répartition des stations au sein du périmètre d'étude et peut amener à surestimer ou sous-estimer la contamination des sédiments entre deux stations.

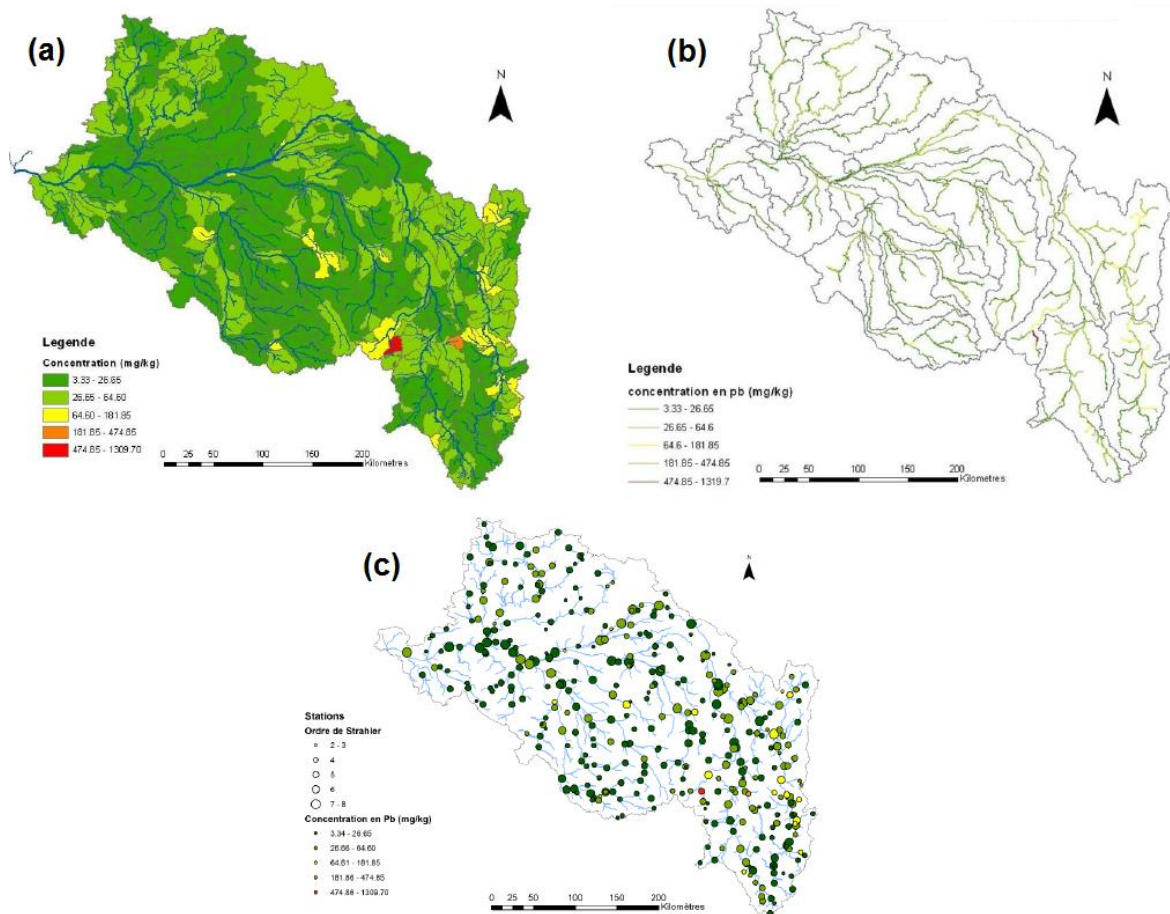


Figure 26 : Représentation de la contamination en plomb sur le bassin Loire-Bretagne avec une implantation surfacique (a), linéaire (b) ou ponctuelle (c) (d'après Castel et al., 2014 [20])

L'implantation ponctuelle est à privilégier car elle permet de retranscrire le plus fidèlement possible les résultats obtenus sans faire d'hypothèse sur l'évolution de la contamination entre deux sites de prélèvement.

- **Le descripteur de la contamination**, c'est-à-dire la grandeur statistique utilisée pour représenter les données (normalisées ou non).
 - Usuellement, la moyenne des concentrations observées sur la période est le descripteur choisi pour indiquer la contamination. Cependant, elle peut être peu pertinente lorsqu'il y a peu de valeurs à moyenner ou qu'il y a un trop grand nombre de données non quantifiées ;

- Le maximum observé sur la période peut être représenté afin d'identifier les valeurs les plus problématiques vis-à-vis de la contamination des milieux aquatiques, au risque de déclasser un grand nombre de sites si ce maximum est mis en regard de seuils de référence.
 - La médiane n'a pas été employée dans les études listées dans le Tableau 31. Toutefois, comme indiqué en 5.2.1, elle doit être calculée et peut être utilisée dans le cas d'une forte dispersion des données ou de la présence d'un grand nombre de valeurs extrêmes dans le jeu de données (la médiane étant moins tirée vers ces valeurs extrêmes que ne l'est la moyenne).
- **Les classes de concentration** : dans un souci de lisibilité, plutôt que d'indiquer une valeur numérique à chaque site, les valeurs à figurer sont réparties au sein de classes de concentration dont les bornes sont à définir. Il existe plusieurs méthodes pour cela :
- à partir de valeurs de référence :
 - en utilisant des valeurs réglementaires type PNEC ou TEC/PEC pour les métaux (à noter que la France n'a pas défini de NQE sédiment) ;
 - en utilisant une classification usuelle dans la littérature, par exemple pour les facteurs d'enrichissement (cf. notamment Salomons & Forstner, 1984 [44]) ;
 - à partir des données disponibles :
 - selon des classes d'amplitude fixée préalablement et laissée à la discrétion de l'utilisateur ;
 - selon la méthode dite des quantiles, où les bornes des classes de concentration sont des quantiles (quartiles, déciles, etc.) des valeurs observées ;
 - selon la méthode des effectifs progressifs où les classes sont élaborées de sorte à concerner une proportion prédéfinie de stations (ce nombre peut varier d'une classe à l'autre).

Un code couleur est généralement associé à ces classes de concentration. Ce code couleur doit être suffisamment clair (éviter d'utiliser des nuances trop proches d'une même couleur) et logique (préférer le vert ou le bleu pour les zones peu contaminées et le rouge ou le noir pour les zones très contaminées). Alternativement, si l'implantation ponctuelle est choisie, les classes de concentration peuvent être associées à la taille du marqueur, mais cette option est à éviter si les classes de concentration sont trop nombreuses, car il peut alors être difficile de distinguer deux marqueurs dont la taille est proche sans être identique.

De manière générale, il est préférable de ne pas multiplier les classes de concentration. Cinq classes de concentration apparaissent comme un maximum raisonnable permettant de bien différencier les valeurs observées.

Il est également possible de représenter sur une carte, à l'aide d'indicateurs précis, différents facteurs pouvant expliquer au moins partiellement les niveaux de contamination observées, comme les sites d'activité industrielle ou minière, par exemple.

Comme cela a été décrit dans l'étude bibliographique, il est également possible de décrire la contamination à l'échelle spatiale à l'aide de schémas. Ce type de représentation est particulièrement adapté pour représenter la contamination le long d'un linéaire de cours d'eau. Couplé à une représentation graphique des concentrations

observées sur les différents sites, il permet en effet d'indiquer de manière relativement claire les niveaux de contamination tout en permettant de les mettre en relation avec de possibles facteurs explicatifs, comme la présence d'activités polluantes ou la confluence avec un affluent.

En revanche, la représentation schématique ne peut réellement être employée pour des études sur des bassins versants concernant plusieurs cours d'eau, étant donné le risque de complexifier à outrance le schéma.

Enfin, dans le cadre d'études menées à plus petite échelle spatiale (moins d'une vingtaine de sites de prélèvement de sédiment), notamment d'un plan d'eau, d'un estuaire, d'une portion d'un linéaire de cours d'eau ou d'une quelconque combinaison de ces types de zone d'étude, il est possible de s'en tenir à une représentation graphique simple.

Quel que soit le mode de représentation choisi, il est essentiel de faire en sorte que ce dernier réponde le plus précisément possible aux objectifs affichés de l'étude et soit suffisamment clair pour donner à un observateur ne connaissant pas tous les tenants et les aboutissants de l'étude une image synthétique et compréhensible des résultats obtenus.

Note : Si l'étude des distributions spatiales porte sur un grand nombre de contaminants, afin d'éviter de multiplier les représentations graphiques, il peut être intéressant de considérer la représentation d'indices « multi-contaminants ». Cela permet en effet de condenser les informations relatives à plusieurs contaminants d'une même famille en une seule et même représentation. Plusieurs indices multi-contaminants ont été développés, en particulier pour les métaux (Dung *et al.*, 2013 [45] donnent quelques exemples de tels indices métaux).

5.3.4 Tableau récapitulatif

Le Tableau 32 résume les principales caractéristiques des différents éléments décrits précédemment et identifie leurs avantages, leurs inconvénients et leur adaptation à différents types d'études des distributions spatiales.

Il est en effet rappelé que les objectifs et le périmètre de l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments conditionnent grandement le choix des modalités les plus adaptées pour conduire cette étude. En conséquence, il n'existe pas de méthodologie « universelle » pour l'étude de ces distributions spatiales.

Tableau 32 : Bilan des recommandations pour l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments de surface

Elément	Recommandé pour...	Avantage(s)	Inconvénient(s)
Représentation sous forme de...			
... carte	Etudes à large échelle (bassin versant)	Représentation visuelle claire Permet de communiquer l'information de manière simple Permet de faire figurer des facteurs de contamination	Complexité de mise en œuvre
... schéma	Etude le long d'un linéaire de cours d'eau	Simplicité de lecture Permet de faire figurer des facteurs de contamination	Difficilement applicable pour des études à large échelle sur plusieurs cours d'eau
... graphique simple	Etude sur portion de cours d'eau ou plan d'eau (< 20 sites)	Simplicité de réalisation	Applicable seulement pour un nombre de sites peu élevé
Représentation de...			
... la moyenne sur la période	Etude sur période ≥ 4 ans	Simplicité de calcul Indicateur « classique »	Peu pertinent pour les périodes courtes Peu pertinent si beaucoup de valeurs non-quantifiées Influencée par des valeurs extrêmes
... le maximum sur la période	Etude sur période < 4 ans	Permet d'identifier facilement les sites les plus contaminés	Risque de déclassement d'un grand nombre de sites
... valeurs normalisées	Tous types d'étude	Permet de s'affranchir de la variabilité naturelle des sédiments Tient compte du contexte géochimique (métaux)	Impossibilité de comparer à des seuils réglementaires
Autres			
Hierarchisation des sites	Tous types d'étude	Permet d'identifier rapidement les sites les plus contaminés	Potentiellement lourd à mettre en place si étude à large échelle ou sur un grand nombre de substances
Utilisation d'indices multi-contaminants	Etudes portant sur un grand nombre de contaminants de même famille	Permet d'avoir un aperçu global de la contamination Limite le nombre de représentations (1 par famille au lieu de 1 par substance)	Risque de perte d'information Risque de surestimation de la pollution globale (ex : pollutions exceptionnelles par une seule substance)

Si représentation sous forme de carte :			
Elément	Recommandé pour...	Avantage(s)	Inconvénient(s)
Implantation...			
... linéaire	Etudes le long d'une portion de cours d'eau	Permet d'avoir un aperçu de la contamination sur l'ensemble du linéaire étudié	Suppose une évolution linéaire de la contamination entre deux stations
... surfacique	Etudes à l'échelle d'un plan d'eau	Permet d'avoir un aperçu de la contamination sur l'ensemble de la zone d'étude	Sensible à la répartition des stations sur la zone d'étude
... ponctuelle	Tous types d'étude, en particulier celle à large échelle (bassin versant)	Ne requiert pas d'hypothèse sur l'évolution de la contamination entre deux sites distincts	Information limitée à la station
Classes de concentration définies selon...			
... une amplitude fixe		Possibilité de définir librement des classes	Pertinent seulement si la gamme de valeurs est suffisamment large Problème de pertinence des bornes des classes (vis-à-vis de seuils réglementaires par exemple)
... seuils règlementaires	Etudes visant à établir la qualité des sédiments d'un point de vue règlementaire	Possibilité d'adapter les seuils utilisés en fonction des objectifs de l'étude (chimie ou écotoxicologie)	Les mêmes seuils n'existent pas forcément pour toutes les substances étudiées Impose de travailler avec des valeurs non-normalisées (sauf si seuils normalisés disponibles)
... méthode des quantiles	Tous types d'étude	Permet d'identifier rapidement les zones les plus contaminées	Ne permet pas de comparer à des seuils réglementaires
... méthode des effectifs progressifs	Tous types d'étude	Permet d'identifier rapidement les zones les plus contaminées	Ne permet pas de comparer à des seuils réglementaires

6. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

AQUAREF propose une méthodologie pour l'évaluation des tendances temporelles de contamination dans les sédiments qui s'appuie sur l'utilisation du logiciel HYPE. Après une étude préliminaire des données, les données validées sont introduites dans HYPE pour évaluer les tendances temporelles. L'applicabilité de cette méthodologie a été démontrée sur plusieurs jeux de données issus de la surveillance (sédiments de surface et MES) et fournis par les Agences de l'Eau.

L'étude des tendances temporelles a notamment permis d'explorer plusieurs pistes vis-à-vis de la normalisation des données. Les principaux paramètres normalisateurs dont AQUAREF recommande l'application sont :

- l'aluminium et le fer pour les métaux ;
- le COT et la perte au feu pour les micropolluants organiques ;
- la granulométrie (fractions fines), notamment pour les métaux mais également valable pour les micropolluants organiques.

L'intérêt de la normalisation pour la réduction de la variabilité des données a été démontré.

Par ailleurs, les études effectuées sur les données des AE ont permis d'identifier les principaux critères à respecter et les principaux verrous concernant les jeux de données pour assurer une évaluation pertinente des tendances temporelles. Il est impératif de disposer de chroniques longues comportant suffisamment de données (au moins 10) avec un suivi régulier (peu de lacunes). Cela s'applique aux chroniques de contaminants comme aux chroniques de paramètres normalisateurs. Il est également nécessaire d'assurer au maximum la continuité des méthodes analytiques et de pouvoir identifier les éventuels changements de méthode.

Enfin, l'étude des données MES fournies par l'AERM a permis de souligner l'intérêt du suivi des MES pour affiner le suivi des sédiments, notamment :

- en raison du grand nombre de données qui peut être généré tout au long de l'année ;
- parce que le suivi des MES cible les particules fines et effectue une « normalisation opérationnelle » au moment du prélèvement.

L'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments a également été traitée. Une étude bibliographique a été réalisée afin de recenser les différentes pistes d'exploitation des données. Le périmètre et les objectifs de l'étude conditionnant grandement la méthodologie à employer, un premier ensemble de recommandations est proposé en distinguant le type d'étude concerné. Pour chacune de ces recommandations, AQUAREF détaille les avantages et les inconvénients de chaque pratique en termes d'exploitation et de représentation des données de contamination des sédiments sur le plan spatial.

Parmi ces recommandations, AQUAREF souligne les plus importantes :

- procéder à une étude préliminaire des données, et notamment au calcul de la moyenne et de la médiane afin d'identifier d'éventuelles valeurs extrêmes ;
- calculer, pour les métaux, les facteurs d'enrichissement à l'aide des données de fond géochimique (si les données sont disponibles) ;

- procéder à une hiérarchisation des sites (ex : classement par calcul de scores) avant la représentation spatiale pour identifier rapidement les secteurs les plus contaminés ;
- représenter les résultats sous forme de cartes (études à échelle régionale) ou de schémas (études le long d'un cours d'eau) ;
- établir des classes de concentration, le cas échéant, à l'aide de la méthode des effectifs progressifs ou de la méthode des quantiles pour identifier rapidement les secteurs les plus contaminés ;
- recourir à des indices multi-contaminants si le nombre de substances étudiées est élevé et si les substances peuvent être regroupées en familles bien définies.

Ces recommandations AQUAREF visent à aider les Agences de l'Eau à valoriser leurs données de surveillance dans une perspective d'estimation des tendances des contaminants dans les sédiments, en lien avec les exigences réglementaires.

Les discussions avec les Agences de l'Eau ont permis de construire des échanges fructueux avec AQUAREF, ouvrant ainsi la voie à plusieurs pistes pour la poursuite des travaux d'AQUAREF. Au-delà de l'approfondissement des méthodologies présentées dans ce rapport, comme l'inclusion de l'étape de normalisation des données dans le logiciel HYPE ou l'exploitation de données issues de la surveillance sur le plan spatial, deux principales pistes paraissent se dégager :

- le couplage des deux approches temporelle et spatiale, pour disposer à terme d'un outil « spatio-temporel » permettant de visualiser clairement l'évolution temporelle de la contamination à l'échelle d'une zone d'étude comprenant plusieurs stations ;
- l'approfondissement des méthodologies permettant d'interpréter des tendances observées, question pas encore abordée dans le cadre des travaux d'AQUAREF.

7. BIBLIOGRAPHIE

- [1] CE., *Directive 2000/60/CE du Parlement Européen et du conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau*. Journal officiel des Communautés européennes, **2000**, p. 72.
- [2] CE., *Directive 2008/105/CE du Parlement Européen et du Conseil du 16 décembre 2008 établissant des normes de qualité environnementale dans le domaine de l'eau, modifiant et abrogeant les directives du Conseil 82/176/CEE, 83/513/CEE, 84/156/CEE, 84/491/CEE, 86/280/CEE et modifiant la directive 2000/60/CE*. Journal officiel de l'Union Européenne, **2008**, p. 14.
- [3] CE., *Directive 2013/39/UE du Parlement Européen et du Conseil du 12 août 2013 modifiant les directives 2000/60/CE et 2008/105/CE en ce qui concerne les substances prioritaires pour la politique dans le domaine de l'eau*. Journal officiel de l'Union Européenne, **2013**, p. 17.
- [4] CE., CMA. *Guidance on chemical monitoring of sediment and biota under the Water Framework Directive*. Common Implementation Strategy for the Water Framework Directive, Brussels, Belgium. **2010**, Guidance document n°25, p. 72.
- [5] Lionard, E., Coquery, M. et Dabrin, A., *Méthodologies d'évaluation de tendances spatiales et temporelles des teneurs en contaminants dans les sédiments*. Rapport AQUAREF **2015**, p. 68.
- [6] Lopez, B. et Leynet, A., *Evaluation des tendances d'évolution des concentrations en polluants dans les eaux souterraines*. ONEMA, **2011**, Rapport BRGM/RP-59931-FR, p. 38.
- [7] Croiset, N. et Lopez, B., *HYPE : Outil d'analyse statistique des séries temporelles d'évolution de la qualité des eaux souterraines - Manuel d'utilisation*. ONEMA, **2013**, Rapport BRGM/RP-65519-FR, p. 64.
- [8] AQUAREF, *Opérations d'analyse physico-chimique des eaux et des sédiments en milieu continental dans le cadre des programmes de surveillance DCE - Recommandations techniques*. **2016**, p. 36
- [9] OSPAR, *JAMP Guidelines for Monitoring Contaminants in Sediments*. **2011**, p. 113.
- [10] Ifremer, *Surveillance du Milieu Marin. Travaux du Réseau National d'Observation de la qualité du milieu marin*. RNO, **2005**, p. 52.
- [11] Poulhier, G., Miège, C., Le Bescond, C., Dabrin, A., Grisot, G., Gregson, M., Coquery, M., Lagouy, M., Thollet, F., Buffet, A., Dramais, G., Lepage, H., Gattacceca, J. et Gairoard, S., *Etat des lieux des contaminants prioritaires et émergents sur le bassin du Rhône*. Rapport OSR 2015-2017, décembre **2017**, p. 95.
- [12] Prygiel, E., *Valorisation des données sédimentaires en Nord-Picardie*. Rapport de 1^{ère} étape, CEREMA Nord-Picardie, septembre **2016**, p. 49.
- [13] Prygiel, E., *Valorisation des données sédimentaires en Nord-Picardie*. Note de synthèse, CEREMA Nord-Picardie, septembre **2016**, p. 10.
- [14] AFNOR, *Qualité de l'eau - Dosage de 33 éléments par spectroscopie d'émission atomique avec plasma couplé par induction*, NF EN ISO 11885, **1998**.
- [15] AFNOR, *Qualité de l'eau - Dosage des éléments traces par spectrométrie d'absorption atomique en four graphite*, NF EN ISO 15586, **2004**.

- [16] Lardy-Fontan, S., Guigues, N., Dabrin, A. et Masson, M., *Les pièges à sédiment et matières en suspension (MES) : Principes, état de l'art et perspectives pour la surveillance des milieux aquatiques*. Rapport AQUAREF 2016, p. 32.
- [17] Angot, H., Coquery, M., Le Coz, J., Launay, M., Radakovitch, O. et Gairoard, S., *Analyse des données de surveillance de l'Agence de l'Eau Rhône-Méditerranée-Corse pour le calcul de flux de contaminants*. Rapport OSR 2007-2013, 2014, p. 15.
- [18] Prygiel, E., *Concentrations en métaux et en PCB dans les sédiments du bassin Artois-Picardie - Exploitation de la base de données Agence de l'Eau Artois-Picardie*, CEREMA Nord-Picardie, 2017, p. 119.
- [19] Sterckeman, T., Douay, F., Baize, D., Fourrier, H., Proix, N. et Schwartz, C., *Trace elements in soil developed in sedimentary materials from Northern France*, Geoderma, 136, 2006, 912-929.
- [20] Castel, P-A., Curie F. et Grosbois, C., *Projet SPAL : SPatial Analyses of the Loire*, GÉHCO Université de Tours, 2014, p. 59.
- [21] Lavielle, J., *Etat de la contamination des eaux superficielles par les substances dangereuses en région Île-de-France*, DRIEE Île-de-France, 2013, p. 57.
- [22] Bourg, C., *Micropolluants dans les sédiments de la région Rhône-Alpes - Données cours d'eau et plans d'eau*, DREAL Rhône-Alpes, 2013, p. 84.
- [23] Guo, J., Li, Z., Ranasinghe, P., Bonina, S., Hosseini, S., Corcoran, M.B., Smalley, C., Rockne, K.J., Sturchio, N.C., Giesy, J.P. et Li, A., *Spatial and Temporal Trends of Polyhalogenated Carbazoles in Sediments of Upper Great Lakes : Insights into Their Origin*, Environmental Science and Technology, 51, 2017, pp. 89-97.
- [24] Liu, X., Jiang, X., Liu, Q., Teng, A. et Xu, W., *Distribution and pollution assessment of heavy metals in surface sediments in the central Bohai Sea, China: a case study*, Environmental Earth Sciences, 75, 2017, pp. 364-378.
- [25] Peng, X., Xiong, S., Ou, W., Wang, Z., Tan, J., Jin, J., Tang, C., Liu, J. et Fan, Y., *Persistence, temporal and spatial profiles of ultraviolet absorbents and phenolic personal care products in riverine and estuarine sediment of the Pearl River catchment, China*, Journal of Hazardous Materials, 323, 2017, pp. 139-146.
- [26] Wang, C., Zou, X., Gao, J., Zhao, Y., Yu, W., Li, Y. et Song, Q., *Pollution status of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface sediments from the Yangtze River Estuary and its adjacent coastal zone*, Chemosphere, 162, 2016, pp. 80-90.
- [27] Wu, Y., Wang, X., Ya, M., Li, Y. et Hong, H., *Distributions of organochlorine compounds in sediments from Jiulong River Estuary and adjacent Western Taiwan Strait: Implications of transport, sources and inventories*, Environmental Pollution, 219, 2016, pp. 519-527.
- [28] Niu, Y., Jiao, W., Yu, H., Niu, Y., Pang, Y., Xu, X. et Guo, X., *Spatial Evaluation of Heavy Metals Concentrations in the Surface Sediment of Taihu Lake*, International Journal of Environmental Research and Public Health, 12, 2015, pp. 15028-15039.
- [29] Van Metre, P.C., Babut, M., Mourier, B., Mahler, B.J., Roux, G. et Desmet, M., *Declining Dioxin Concentrations in the Rhone River Basin, France, Attest to the Effectiveness of Emissions Controls*, Environmental Science and Technology, 49, 2015, pp. 12723-12730.
- [30] Yuan, X., Yang, X., Na, G., Zhang, A., Mao, Y., Liu, G., Wang, L. et Li, X., *Polychlorinated biphenyls and organochlorine pesticides in surface sediments from the sand flats of Shuangtaizi Estuary, China: levels, distribution, and possible sources*, Environmental Science and Pollution Research, 22, 2015, pp. 14337-14348.

- [31] Gevao, B., Boyle, E.A., Aba, A.A., Carrasco, G.G., Ghabdan, A.N., Al-Shamroukh, D., Alshemmari, H. et Bahloul, M., *Polybrominated diphenyl ether concentrations in sediments from the Northern Arabian Gulf: Spatial and temporal trends*, *Science of the Total Environment*, 491-492, **2014**, pp. 148-153.
- [32] Mil-Homens, M., Stevens, R.L., Cato, I. et Abrantes, F., *Comparing spatial and temporal changes in metal trends (Cr, Ni, Pb and Zn) on the Portuguese shelf since the 1970s*, *Environmental Monitoring Assessment*, 186, **2014**, pp. 6327-6340.
- [33] Zhao, X., Ding, J. et You, H., *Spatial distribution and temporal trends of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in water and sediment from Songhua River, China*, *Environmental Geochemistry and Health*, 36, **2014**, pp. 131-143.
- [34] Liao, C., Lee, S., Moon, H-B., Yamashita, N. et Kannan, K., *Parabens in Sediment and Sewage Sludge from the United States, Japan, and Korea: Spatial Distribution and Temporal Trends*, *Environmental Science and Technology*, 47, **2013**, pp. 10895-10902.
- [35] Marvin, C., Waltho, J., Jia, J. et Burniston, D., *Spatial distributions and temporal trends in polybrominated diphenyl ethers in Detroit River suspended sediments*, *Chemosphere*, 91, **2013**, pp. 778-783.
- [36] Desmet, M., Mourier, B., Mahler, B.J., van Metre, P.C., Roux, G., Persat, H., Lefèvre, I., Peretti, A., Chapron, E., Simonneau, A., Miège, C. et Babut, M., *Spatial and temporal trends in PCBs in sediment along the lower Rhône River, France*, *Science of the Total Environment*, 433, **2012**, pp. 189-197.
- [37] Maggi, C., Ausili, A., Boscolo, R., Cacciatore, F., Bonometto, A., Cornello, M. et Berto, D., *Sediment and biota in trend monitoring of contaminants in transitional waters*, *Trends in Analytical Chemistry*, 36, **2012**, pp. 82-91.
- [38] Woods, A.M., Lloyd, J.M., Zong, Y., Brodie, C.R., *Spatial mapping of Pearl River Estuary surface sediment geochemistry: Influence of data analysis on environmental interpretation*, *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 115, **2012**, pp. 218-233.
- [39] Choi, H.G., Moon, H.B., Choi, M. et Yu, J., *Monitoring of organic contaminants in sediments from the Korean coast: Spatial distribution and temporal trends (2001-2007)*, *Marine Pollution Bulletin*, 62, **2011**, pp. 1352-1361.
- [40] Guo, W., He, M., Yang, Z., Lin, C. et Quan, X., *Characteristics of petroleum hydrocarbons in surficial sediments from the Songhuajiang River (China): spatial and temporal trends*, *Environmental Monitoring Assessment*, 178, **2011**, pp. 81-92.
- [41] Vinas, L., Franco, M.A., Soriano, J.A., Gonzalez, J.J., Pon, J. et Albaiges, J., *Sources and distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in sediments from the Spanish northern continental shelf. Assessment of spatial and temporal trends*, *Environmental Pollution*, 158, **2010**, pp. 1551-1560.
- [42] Muir, D.C.G., Wang, X., Yang, F., Nguyen, N., Jackson, T.A., Evans, M.S., Douglas, M., Köck, G., Lamoureux, S., Pienitz, R., Smol, J.P., Vincent, W.F. et Dastoor, A., *Spatial Trends and Historical Deposition of Mercury in Eastern and Northern Canada Inferred from Lake Sediment Cores*, *Environmental Science and Technology*, 43, **2009**, pp. 4802-4809.
- [43] C.E., *Directive 2009/90/CE de la Commission du 31 juillet 2009 établissant, conformément à la directive 2000/60/CE du Parlement européen et du Conseil, des spécifications techniques pour l'analyse chimique et la surveillance des masses d'eau*, *Journal officiel de l'Union européenne*, **2009**, p. 17.
- [44] Salomons, W. et Forstner, U., *Metals in the hydrocycle*, Springer Science & Business Media, **1984**, p. 267.

[45] Dung, T.T.T., Cappuyns, V., Swennen, R. et Phung, N.K., *From geochemical background determination to pollution assessment of heavy metals in sediments and soils*, *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, 12, 2013, pp. 335-353.

[46] Desmet, M., Mondamert, L. et Labanowski, J., *Projet Métorg - Les polluants métalliques et organiques dans les sédiments du bassin de la Loire : sources et évolution spatio-temporelle*, GÉHCO - Université de Tours et IC2MP - Université de Poitiers, 2015.

Annexe 1 : Questionnaire adressé aux AE



Questionnaire : Evaluation des tendances spatiales des concentrations en contaminants dans les sédiments

Anice YARI, Marina COQUERY et Aymeric DABRIN (Irstea, Lyon-Villeurbanne)

Août 2017

1. Introduction

La Directive Cadre sur l'Eau (DCE 2000/60/CE) et la directive fille NQE 2008/105/CE demandent aux Etats membres de procéder à l'évaluation des tendances des contaminants hydrophobes dans les sédiments continentaux. Depuis 2014, AQUAREF a consacré plusieurs études dans le but de développer une méthodologie robuste d'estimation des tendances temporelles et des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments. Après des travaux focalisés sur les tendances temporelles menés en 2015² et 2016³, AQUAREF souhaite compléter ces travaux en abordant la question de l'étude des distributions spatiales des contaminants dans les sédiments. A ce titre, AQUAREF souhaite solliciter les représentants des Agences de l'Eau afin de guider les réflexions à mener sur cette problématique et d'orienter ses recommandations opérationnelles.

2. Questionnaire

Nom et prénom :

Fonction :

Service :

Agence :

Adresse e-mail :

Téléphone :

² Eva Lionard, Aymeric Dabrin et Marina Coquery - Méthodologies d'évaluation de tendances spatiales et temporelles des teneurs en contaminants dans les sédiments - Rapport AQUAREF 2015 - 68 p.

³ Anice Yari, Aymeric Dabrin, Marina Coquery - Méthodologie d'évaluation des tendances temporelles et spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments - Proposition de méthodologie pour les tendances temporelles - Rapport AQUAREF 2016 - 59 p.

- 1) Avez-vous pris connaissance du rapport publié par AQUAREF début 2017 sur l'élaboration d'une méthodologie pour l'estimation des tendances temporelles des concentrations en contaminants dans les sédiments (rapport disponible en suivant [ce lien](#))⁴ ?
- Oui
 - Non, je n'ai pas eu le temps de le lire
 - Non, je ne suis pas intéressé(e) par ce rapport
 - Non, je ne savais pas que ce rapport avait été publié
 - Non, pour une autre raison (*précisez*)
- 2) Si vous avez pris connaissance de ce rapport, pourriez-vous indiquer :
- a) Vos commentaires et/ou questions vis-à-vis de la méthodologie employée et des résultats obtenus :

 - b) Votre avis sur le logigramme méthodologique présenté (Figure 2, page 20). Le trouvez-vous utile ? Suffisamment clair et/ou explicite?

 - c) Les questions auxquelles le rapport n'aurait pas répondu, partiellement ou totalement :
- 3) Quels sont, au sein de votre Agence, les besoins et/ou les interrogations spécifiques vis-à-vis de la problématique d'évaluation des tendances spatiales dans les sédiments ?

⁴ Référence complète du rapport : Anice Yari, Aymeric Dabrin, Marina Coquery - Méthodologie d'évaluation des tendances temporelles et spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments - Proposition de méthodologie pour les tendances temporelles - Rapport AQUAREF 2016 - 59 p.

4) Votre Agence a-t-elle d'ores et déjà coordonné, commandité ou participé à des études visant à établir la distribution des contaminations dans les sédiments à l'échelle du bassin ou d'une partie du bassin (cf. Annexe qui donne une liste d'exemples d'études) ?

Oui, de telles études ont été effectuées (*décrire brièvement les études et/ou indiquer les références des rapports*)

Non, mais de telles études sont en cours/prévues (*décrire brièvement les études*)

Non, il n'y a pas eu de telles études et nous n'en prévoyons pas

Je ne sais pas

5) Parmi les données sédimentaires dont dispose votre Agence, y a-t-il des données que vous considérez comme potentiellement pertinentes pour une exploitation en tendances spatiales ?

Oui (*décrire brièvement les données : aire géographique, nombre de stations, substances concernées, niveaux et origine des contaminations, etc.*)

Non

6) Y a-t-il d'autres questions ou commentaires dont vous souhaitez nous faire part ?

3. Retour des questionnaires et restitution des résultats

Les réponses à ce questionnaire doivent être renvoyées par e-mail **avant le 8 septembre 2017** à AQUAREF via :

Anice YARI
Correspondant AQUAREF pour Irstea
04 72 20 89 46
anice.yari@irstea.fr

N'hésitez pas à nous contacter via les coordonnées ci-dessus en cas de question.
N'hésitez pas à faire suivre ce questionnaire à vos collègues qui pourraient être intéressés.

Après étude des réponses, une session de restitution et de discussion par visioconférence sera organisée en fonction des disponibilités de chacun au cours de la deuxième quinzaine de septembre 2017.

ANNEXE : Exemples d'études de synthèse sur les distributions spatiales des contaminants dans les sédiments continentaux (France)

Micropolluants dans les sédiments de la région Rhône-Alpes. Données cours d'eau et plans d'eau. 2006-2011. Rapport DREAL Rhône-Alpes, 2013, 84 p. [\[lien\]](#)

Etat de la contamination des eaux superficielles par les substances dangereuses en région Île-de-France. Info'Toxiques n°3. Synthèse 2008-2011. Rapport DRIEE Île-de-France, 2013, 57 p. [\[lien\]](#)

Projet SPAL : *Spatial Analyses of the Loire*, Partie 1 : Présentation des bases de données utilisées et Méthodologie de l'analyse spatio-temporelle. GÉHCO – Université François-Rabelais (Tours), Agence de l'eau Loire-Bretagne 2014, 59 p.

Annexe 2 : Bilan des discussions réalisées avec les AE

Tableau 33 : Bilan des discussions réalisées avec les AE

Agence	AEAP	AERM	AELB	AESN
Retour sur le rapport d'étape (méthodologie tendances temporelles)	Positif, méthodologie claire Important de souligner le caractère essentiel de l'étude préliminaire des données Principal axe d'amélioration : automatisme de la méthode	Positif	Rapport bienvenu mais méthodologie complexe à mettre en œuvre à l'échelle d'un bassin entier	Positif, méthodologie claire
Besoins spécifiques vis-à-vis de l'aspect spatial ?	Méthodologie permettant de prioriser les stations les plus contaminées	Pas de besoin précis Méthodologie illustrative et compréhensible par tous	Satisfaire les exigences réglementaires DCE	Pas de besoin précis, le suivi spatial n'étant pas la priorité
Y a-t-il eu des études spatiales sur les sédiments coordonnées par l'AE ?	Stations classées par score selon contamination métaux et micropolluants organiques (en 2007 et 2011) Etude commandée auprès du CEREMA Nord-Picardie pour la valorisation des données sédimentaires (2017) [17]	Non	Projets MétOrg [46] et SPAL [20] avec l'Université de Tours (2014) Etude prévue sur archivage sédimentaire sur 14 sites (2018)	Etudes réalisées par le PIREN Seine
Autres commentaires	Intérêt pour études sur d'autres substances (ex : alkylphénols, PBDE, tributylétain, DEHP) Question de la remobilisation des sédiments => répercussions et lien avec qualité de l'eau et du biote (biodisponibilité)	Interrogations autour de la normalisation des données et de l'interprétation des tendances Intérêt pour un outil couplant les approches temporelle et spatiale	Intérêt pour la question de l'explication des tendances observées Plusieurs questions sur la représentativité du sédiment prélevé et des données exploitées Evocation de l'intérêt de l'archivage sédimentaire	Observation d'un « effet laboratoire » impliquant un pré-traitement des données avant exploitation