# **SOMMAIRE**

2.1. Présentation de la méthode de dosage microcoulométrique       5         2.1.1. Principe de la méthode d'analyse       5         2.1.2. Vérification et calibrage de la méthode microcoulométrique       6         2.2. Méthode de dosage des AOX dans l'eau       7         2.3. Méthode de dosage des EOX dans les sédiments       9         2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques       10         3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS       11         3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau       11         3.1.1. Site d'étude       11         3.1.2. Dosages dans l'eau       12         3.1.2.1. Résultats       12         Le Ton       12         La Chiers       15         3.1. 3. Dosage dans les sédiments       16         3.1. 3. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1. 3. Site d'étude       21         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2. Résultats       21         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25	1. INTRODUCTION	1
2.1.1. Principe de la méthode d'analyse 2.1.2. Vérification et calibrage de la méthode microcoulométrique 2.2. Méthode de dosage des AOX dans l'eau 2.3. Méthode de dosage des AOX dans les sédiments 2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques  3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS  3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau 3.1.1. Site d'étude 3.1.2. Dosages dans l'eau 3.1.2.1. Résultats Le Ton La Chiers La Meuse 3.1.2.2. Conclusions  3.1.3. Dosage dans les sédiments 3.1.3.1. Résultats Le Ton La Chiers La Meuse 3.1.3.2. Conclusions  3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX 3.2.1. Site d'étude 3.2.2. Résultats La Moselle La Meurthe La Meuse La Chiers La Meuse La Chiers	2. METHODOLOGIE DU DOSAGE MICROCOULOMETRIQUE	5
2.1.2. Vérification et calibrage de la méthode microcoulométrique  2.2. Méthode de dosage des AOX dans l'eau  2.3. Méthode de dosage des AOX dans les sédiments  2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques  3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS  3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau  3.1.1. Site d'étude  3.1.2. Dosages dans l'eau  3.1.2.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.2.2. Conclusions  3.1.3. Dosage dans les sédiments  3.1.3. Dosage dans les sédiments  3.1.3. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.3.1. Résultats  16  3.1.3. Dosage dans les sédiments  3.1.3. Dosage dans les nédiments  3.1.3. Dosage dans les nédiments  3.1.3. Dosage dans les nédiments  3.1.3. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.3. Site d'étude  3.2.2. Résultats  La Moselle  La Moselle  La Meurthe  La Meuse  La Meuse  La Chiers  25  25	2.1. Présentation de la méthode de dosage microcoulométrique	5
2.2. Méthode de dosage des AOX dans l'eau       7         2.3. Méthode de dosage des AOX dans les sédiments       9         2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques       10         3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS       11         3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau       11         3.1.1. Site d'étude       11         3.1.2. Dosages dans l'eau       12         3.1.2.1. Résultats       12         Le Ton       12         La Chiers       15         La Meuse       15         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3. Résultats       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1. Site d'étude       21         3.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Chiers       25	2.1.1. Principe de la méthode d'analyse	5
2.3. Méthode de dosage des AOX dans les sédiments 2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques  3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS  3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau  3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau  3.1. Dosages dans l'eau  3.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1. 2. Conclusions  3.1. 3. Dosage dans les sédiments  3.1. 3. Nesultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1. Afésultats  16  3. Le Ton  16  3. La Chiers  La Meuse  3. La Meuse  4. A Moselle  La Moselle  La Meuse  La Chiers  25  La Meuse  La Chiers	2.1.2. Vérification et calibrage de la méthode microcoulométrique	6
2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques       10         3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS       11         3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau       11         3.1.1. Site d'étude       11         3.1.2. Dosages dans l'eau       12         3.1.2.1. Résultats       12         Le Ton       12         La Chiers       15         La Meuse       15         3.1.2. Conclusions       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25	<u> </u>	7
3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau  3.1.1. Site d'étude  3.1.2. Dosages dans l'eau  3.1.2.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.2.2. Conclusions  3.1.3.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.3.1. Résultats  16  3.1.3.1. Résultats  16  3.1.3.2. Conclusions  3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX  3.2.1. Site d'étude  3.2.2. Résultats  La Moselle  La Meuse  La Meuse  La Meuse  3.2.2. Résultats  La Moselle  La Meuse  La Chiers		9
3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau       11         3.1.1. Site d'étude       11         3.1.2. Dosages dans l'eau       12         3.1.2.1. Résultats       12         Le Ton       12         La Chiers       15         La Meuse       15         3.1.2.2. Conclusions       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25	2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques	10
3.1.1. Site d'étude       11         3.1.2. Dosages dans l'eau       12         3.1.2.1. Résultats       12         Le Ton       12         La Chiers       15         La Meuse       15         3.1.2.2. Conclusions       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25	3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS	11
3.1.2. Dosages dans l'eau  3.1.2.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.2.2. Conclusions  3.1.3. Dosage dans les sédiments  3.1.3.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  16  La Chiers  18  La Meuse  3.1.3.2. Conclusions  3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX  3.2.1. Site d'étude  3.2.2. Résultats  La Moselle  La Meurthe  La Meuse  La Meuse  La Meurthe  La Meuse  La Meuse  La Meuse  La Meurthe  La Meuse	3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau	11
3.1.2.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.2.2. Conclusions  3.1.3.1. Dosage dans les sédiments  3.1.3.1. Résultats  Le Ton  La Chiers  La Meuse  3.1.3.2. Conclusions  3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX  3.2.1. Site d'étude  3.2.2. Résultats  La Moselle  La Meurthe  La Meuse  La Chiers  25	3.1.1. Site d'étude	11
Le Ton       12         La Chiers       15         La Meuse       15         3.1.2.2. Conclusions       16         3.1.3.1. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25	_	12
La Chiers       15         La Meuse       15         3.1.2.2. Conclusions       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		12
La Meuse       15         3.1.2.2. Conclusions       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		12
3.1.2.2. Conclusions       16         3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		15
3.1.3. Dosage dans les sédiments       16         3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		15
3.1.3.1. Résultats       16         Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		16
Le Ton       16         La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25	_	16
La Chiers       18         La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		
La Meuse       18         3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		
3.1.3.2. Conclusions       20         3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		
3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX       21         3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		
3.2.1. Site d'étude       21         3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		
3.2.2. Résultats       21         La Moselle       23         La Meurthe       23         La Meuse       25         La Chiers       25		
La Moselle23La Meurthe23La Meuse25La Chiers25		
La Meurthe 23 La Meuse 25 La Chiers 25		
La Meuse 25 La Chiers 25		
La Chiers 25		
		25
		26

ETUDE DE LA CAPACITE BIOACCUMULATRICE	
4.1. Description de l'usine de pâte à papier	
4.2. Première expérience d'accumulation	
4.2.1. Matériel et méthodes	
4.2.1.1. Site d'étude	
4.2.1.2. Ramassage et conditionnement des animaux	
4.2.1.3. Transfert des animaux	
4.2.1.4. Prélèvements	
4.2.1.5. Analyses	
4.2.2. Résultats	
4.2.2.1. Qualité de l'eau	
4.2.2.2. Organo-halogénés	
4.2.3. Conclusions	
4.3. Deuxième expérience d'accumulation	
4.3.1. Matériel et méthodes	
4.3.1.1. Site d'étude	
4.3.1.2. Ramassage et conditionnement des animaux	
4.3.1.3. Transfert des animaux	
4.3.1.4. Prélèvements	
4.3.1.5. Analyses	
4.3.2. Résultats	
4.3.2.1. Qualité de l'eau	
4.3.2.2. Organo-halogénés	
4.3.3. Conclusions	

# 1. INTRODUCTION

Les composés organo-halogénés sont des molécules organiques dont un ou plusieurs atomes d'hydrogène ont été substitués par un ou plusieurs atomes halogénés : chlore (Cl), brome (Br), iode (I) ou fluor (F). Le DDT, les PCBs, les dibenzo-p-dioxines, les trihalométhanes et les chlorophénols sont des exemples de composés organo-halogénés fréquemment cités dans les listes prioritaires (Asplund, 1992). Ils entrent dans l'environnement, et plus particulièrement dans le milieu aquatique par deux voies : naturelle et anthropique.

La production naturelle de composés organo-halogénés a longtemps été sousestimée, voire ignorée par les chercheurs, et ce n'est que depuis quelques années que les travaux se sont portés sur ce sujet. Ainsi, en 1968, Fowden écrit que "les données actuelles suggèrent que la présence de molécules organiques comportant des liaisons covalentes avec des halogènes dans les organismes vivants est très rare " (Fowden, 1968 in Gribble, 1994). De nos jours plus de 2000 molécules organo-halogénées, essentiellement organo-chlorées, synthétisées par des organismes marins, insectes, bactéries, champignons et mammifères ont pu être mises en évidence (NCASI, 1992; Gribble, 1994). Le tableau I résume les principales étapes de découvertes de composés organohalogénés.

Tableau I : Principales étapes de découverte d'organo-halogénés naturels (Gribble, 1994).

Année	Auteurs	Contenu de l'étude
1968	Fowden	30 organo-chlorés produits naturellement
1971	Turner	70 molécules contenant du chlore synthétisées par les champignons
1973	Siuda & DeBernardis	200 organo-halogénés de sources variées (150 organo- chlorés, 50 organo-bromés)
1983	Turner & Aldridge	80 molécules contenant du chlore synthétisées par les champignons
1986	Engvild	130 organo-chlorés de plantes supérieures
1992	Gribble	611 organo-halogénés de sources variées isolées entre 1980 et 1991

L'éventail des composés organo-halogénés d'origine naturelle est très vaste, allant de molécules dont la structure est simple, telle que le chloroforme, à des molécules complexes telles que les maytansanoïdes (Asplund, 1992). Leurs concentrations dans

l'environnement peuvent être supérieures aux quantités explicables par les activités anthropiques (Asplund & Grimwall, 1991). Ainsi, la production naturelle de chlorométhane par les océans est estimée à 5 millions de tonnes par an (Rasmusen, 1980 in NCASI, 1992).

Des études menées sur des lacs suédois, loin de toute source de pollution anthropique montrent des concentrations en AOX pouvant atteindre 185  $\mu$ g Cl/l, teneurs semblables à celles observées dans le Rhin (Asplund & Grimwall, 1991). Cependant, selon Hoekstra et de Leer (1994), même dans une rivière fortement chargée en AOX par les effluents anthropiques, telle que le Rhin, 30 à 70% des AOX seraient d'origine naturelle.

Ces affirmations sont renforcées par le fait que de fortes concentrations en AOX ont été observées dans des acides fulviques d'eaux souterraines, datées de plus de 5000 ans (Asplund *et al.*, 1989), démontrant que les phénomènes de biohalogénations naturels existent depuis fort longtemps.

Même si la part de molécules organo-halogénées d'origine naturelle semble prendre une part de plus en plus importante dans l'estimation de la contamination du milieu aquatique par les AOX, les rejets d'origine anthropique restent importants, et prédominants dans les régions fortement peuplées et industrialisées.

Les rejets de composés organo-halogénés d'origine anthropique peuvent être divisés en deux catégories:

- ceux contenant des organo-halogénés synthétisés intentionnellement tels que les PCB, les pesticides organo-chlorés, dont la production est désormais intérdite, mais qui par leur caractère rémanant persistent dans le milieu aquatique,
- et ceux contenant des organo-halogénés synthétisés suite à l'utilisation de molécules halogénées dans des conditions particulières, tels que la potabilisation de l'eau (Rock, 1974), la désinfection des aéroréfrigérants (Garric, 1980; Duvivier, 1993), l'épuration des eaux urbaines (Klopp & Kornatzki, 1987) et le blanchiment de la pâte à papier au chlore (Remberger *et al.*, 1991; Koistinen, 1992; Paasivirta *et al.*, 1992).

Parmi ces sources anthropiques, les effluents d'usines de pâte à papier prennent une place prépondérante. Ainsi, en Finlande, la plus grande quantité d'organo-halogénés présente dans les eaux de surface a son origine dans les effluents d'usines de pâte à papier blanchissant au chlore (Jokela *et al.*, 1992). Une étude menée sur la rivière Ruhr en Allemagne, a montré que 1/3 de la charge en AOX provient des rejets d'une unique usine de pâte à papier (Klopp & Kornatzki, 1987).

Les effluents d'usine de pâte à papier blanchissant au chlore sont très complexes et seuls 10 à 15 %, soit environ 300 molécules ont pu être identifiées à ce jour (Bonsor, 1990). Le tableau II regroupe quelques unes de ces molécules.

Tableau II : Exemples de molécules organo-halogénées présentes dans les effluents d'usines de pâte à papier blanchissant au chlore.

Molécule	Auteur
Chlorophénols	
Chloroguaiacols	Paasivirta <i>et al.</i> , 1985
Cholorocatechols	
Thiophénes chlorés	Remberger et al., 1991
Benzo-1,2 Quinones chlorés	Lunde <i>et al.</i> , 1991
PCDBT (Polychlorinated dibenzothiophenes)	Sinkkonen et al., 1992
PCDD (Polychlorinated dibenzo-p-dioxins)	Halonen et al., 1993, Rajan et al., 1994
PCDF (Polychlorinated dibenzofurans)	
Monoterpénes chlorés	Stuthridge, 1993
Acides chlorolignosulfoniques	van Loon & Boon, 1993

L'intérêt croissant que l'on porte à cette famille de composés chimiques est dû au fait que beaucoup d'entre eux, difficilement dégradables, se sont révélés bioaccumulables (Frakes & Zeeman, 1993) et toxiques (Wrisberg & v.d.Gaag, 1992). De nombreux travaux sur les poissons ont notamment mis en évidence des malformations du squelette et d'importants changements métaboliques chez des individus exposés à des effluents d'usines de pâte à papier blanchie au chlore (McMaster et al., 1991; Lindesjöö & Thulin, 1992). Plus de la moitié des molécules de la liste prioritaire de l'Agence pour la protection de l'environnement des Etats-Unis (US EPA), et 92 des 129 molécules de la liste I du 4 Mai 1976 ("liste noire") de la CEE sont des composés organo-halogénés. Afin de pallier les difficultés analytiques de l'identification et de la quantification individuelle de ces molécules dont seules 10 à 25% ont pu être identifiés avec certitude (Quentin, 1984), plusieurs paramètres de groupe ont été établis.

La méthode dite des "organo-halogénés adsorbables" (AOX) est largement employée pour la quantification totale de ces molécules dans l'eau et les sédiments. D'autre part, les organo-halogénés extractibles (EOX) permettent de doser les molécules organo-halogénés présentes dans les organismes vivants.

Le but du présent travail est de rendre compte de la contamination actuelle du bassin Ton-Chiers-Meuse par les AOX, en étudiant l'importance relative des différentes sources potentielles au moyen d'un suivi mensuel durant 18 mois de la concentration en AOX dans l'eau. La réalisation de profils longitudinaux de la concentration en AOX sur quatre cours d'eau à permis de mettre en évidence certaine source de contamination ponctuelles. D'autre part, l'analyse des sédiments et des organismes aquatiques, notamment au niveau de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt (Belgique) à permis de montrer le pouvoir accumulateur de ces deux compartiments vis à vis des molécules organo-halogénés.

# 2. METHODOLOGIE DU DOSAGE MICROCOULOMETRIQUE

Afin de pallier les difficultés analytiques de l'identification et de la quantification individuelle des molécules organo-halogénées, plusieurs paramètres de groupes ont été établis, parmi lesquels le dosage des organo-halogénés totaux par microcoulométrie est largement employé.

# 2.1. Présentation de la méthode du dosage microcoulométrique

La première approche de détermination de organo-halogénés totaux dans l'eau est celle de la méthode du chlore organique total (TOCl), développée par Kühn et Sontheimer (1973, 1975).

#### 2.1.1. Principe de la méthode d'analyse

Les différents composés organo-halogénés, R-X (R = partie organique ; X = Cl, Br, I) contenus dans l'échantillon réagissent avec l'oxygène à haute température ( $850^{\circ}C$  -  $950^{\circ}C$ ), selon la réaction

$$R - X + O_2 ---> CO_2 + H_2O + HX$$

L'ajout d'un gaz inerte (azote) permet de diminuer la pression partielle de l'oxygène et de déplacer l'équilibre

$$2HX + \frac{1}{2}O_2 \le X_2 + H_2O$$

vers la gauche. Les acides formés HX passent dans la cellule de titrage où ils sont détectés par un couple d'électrodes (référence Hg2SO4; mesure Ag) plongés dans une solution électrolyte à base d'acide acétique et comportant une concentration déterminée en Ag+. L'introduction des HX dans la cellule entraîne la précipitation de AgX

$$HX + Ag^+ \longrightarrow AgX + H^+$$

La diminution des Ag+ dans l'électrolyte est compensée par une oxydation anionique de l'électrode d'argent. La quantité d'électricité nécessaire pour cette oxydation est proportionnelle à la quantité d'ions Ag+ et donc à la quantité d'halogénures présente.

Le principe de dosage est le même quel que soit le milieu dans lequel il est effectué, la différence principale réside dans la préparation de l'échantillon.

# 2.1.2. <u>Vérification et calibrage de la méthode microcoulométrique</u>

Avant chaque série d'analyses, il est important de vérifier l'état de la solution d'électrolyte et des électrodes, au moyen d'une solution étalon d'acide chlorhydrique 0.1 M. Pour cela, on injecte plusieurs volumes de la solution étalon directement dans la cellule de titrage. Les résultats d'une telle vérification sont présentés dans le tableau III et la figure 1.

Il apparaît que le titrage microcoulométrique permet une grande exactitude et fiabilité des résultats. Lorsque les valeurs observées s'écartent trop des valeurs théoriques, il convient de changer la solution d'électrolyte et/ou de nettoyer la cellule et les électrodes.

D'autre part, il est nécessaire de vérifier l'efficacité de l'adsorption du charbon actif. Pour cela il convient de tester l'adsorption et la contamination du charbon actif à l'aide d'une solution de p-chlorophénol à 1 mg/l de chlore lié organiquement. A partir de cette solution mère, on prépare des solutions étalons de 1, 5, 10, 20 et 25  $\mu$ g/l de Cl dans de l'eau nanopure que l'on dose. Les résultats sont regroupés dans le tableau IV.

Tableau IV : Vérification de capacité d'adsorption de p-chlorophénol sur le charbon actif.

μg Cl	nombre d'essais	moyenne µg Cl dosé	% de recouvrement	Intervalle de recouvrement
1	3	1.15	115	98-135
5	5	5.06	101.6	97.8-105.7
10	6	9.96	99.6	97.8-102.5
20	4	19.68	98.4	95.9-102.8
25	2	24.55	98.2	96.5-99.9

Selon Stevens et al. (1985), le % de recouvrement varie selon la nature des molécules, et notamment en fonction du nombre et de la nature des substituants

halogénés. Le tableau V reprend les résultats obtenus par Puyker & Savoir (1988, in Duvivier, 1993).

Tableau V : Exemples de rendement du dosage d'organo-halogénés (Puyker & Savoir, 1988 in Duvivier, 1993).

Molécules	Rendement de recouvrement
3,5 - Dichlorophénol	101
2,4 - Dichloronitrotoluène	99
2,4 - Dichloroaniline	103
Tétrachlorométhane	84
Iodométhane	66
Iodoforme	66
Hexachlorobenzène	101
Dibromométhane	52

# 2.2. Méthode de dosage des AOX dans l'eau

La méthode de dosage des AOX dans l'eau appliquée dans cette étude est basée sur les normes DIN 38409-14 (1985) et ISO 9562 (1989).

L'eau est prélevée à environ 20 cm sous la surface dans des bouteilles en verre préalablement rincées dans de l'eau déminéralisée. Le chlore libre éventuellement présent dans le prélèvement est consommé par ajout de quelques ml de sulfite de sodium 0.2 M, afin d'éviter une surestimation de la concentration en AOX. L'échantillon est ensuite acidifié à pH 1.5-2 par ajout d'acide nitrique concentré (HNO3 69%) pour favoriser l'adsorption ultérieure des molécules organo-halogénées sur le charbon actif. Les échantillons sont conservés à l'obscurité en chambre froide (4°C) et analysés dans les 3 jours suivant le prélèvement.

Lors des premiers essais, trois replicats de chaque prélèvement sont réalisés. Cependant, la répétition du dosage est telle que pour la suite de l'étude, deux sous-échantillons sont suffisants.

Chaque prélèvement est divisé en deux sous-échantillons de 100 ml dans des erlenmeyers en verre, rincés à l'eau déminéralisée et séchés à l'étuve à 105°C. 5 ml de

nitrate de sodium 0.2~M et 50~mg de charbon actif en poudre (indice d'iode > 1050~mg/g et valeur à blanc  $< 0.4~\mu g$  Cl/50 mg) sont ajoutés à l'échantillon, puis celui-ci est placé sur table d'agitation à 400~tours/min pendant au moins une heure. La suspension est ensuite filtrée par aspiration sur une membrane en polycarbonate (diamètre de pore  $0.4~\mu m$ , faible teneur en chlorures), puis rincé avec environ 25~ml d'une solution de nitrate de sodium 0.04~M afin de déplacer les chlorures ayant pu être adsorbés sur le charbon actif. Le filtre et le charbon sont alors transférés dans une nacelle en quartz, puis introduits dans un tube de minéralisation pour être incinérés à  $950~^{\circ}C$  sous flux d'oxygène pour être titrés selon la méthode décrite dans le chapitre § 2.~Le résultat du dosage est exprimé en  $\mu g$  de chlore lié organiquement par litre d'eau ( $\mu g$  Cl/1).

La méthode des AOX est une méthode fiable et précise qui permet de doser plus de 95% des molécules organo-halogénées présentes dans les eaux de surface (Sontheimer & Schnitzler, 1982) avec un taux de recouvrement d'au moins 90%, variant en fonction de la nature et du degré de substitution par les halogènes (Stevens *et al.*, 1985).

# Précautions à prendre

Afin de s'assurer de l'efficacité de l'adsorption des molécules organo-halogénées sur le charbon actif, plusieurs dilutions d'un même échantillon sont réalisées, permettant d'éviter de possibles biais lors du dosage. Ceux-ci peuvent notamment apparaître dans deux cas :

- lorsque la concentration en chlorures (Cl-) est supérieure à 1 g/l, car ceux-ci ne peuvent plus être entièrement déplacés lors de l'étape de rinçage au nitrate de sodium, entraînant ainsi une surestimation de la concentration en AOX,
- lorsque la concentration en carbone organique dissous (COD) est supérieure à 10 mg/l, car celui ci est en compétition d'adsorption avec les molécules organo-halogénés et entraîne ainsi une surestimation de la concentration en AOX.

L'hypothèse d'une possible surestimation de la concentration en AOX par le chlorure inorganique présent dans les cellules microbiennes à été émise par Salkinoja-Salonen (1991, in Asplund, 1992). Selon Asplund (1992), les surestimation de la concentration en AOX ainsi engendrées sont négligeables pour les eaux oligotrophes ([AOX] engendrée 400 ng Cl/l) mais pourraient poser un problème dans les eaux fortement eutrophes ([AOX] engendrée 40 µg Cl/l).

La limite de détection donnée par le constructeur est de 2  $\mu$ g Cl/l, soit 0.2  $\mu$ g Cl par échantillon de 100 ml. Etant donné la variabilité de la contamination du charbon actif et des filtres, une limite de 5  $\mu$ g Cl/l nous paraît plus correcte.

# 2.3. Méthode de dosage des AOX dans les sédiments

La méthode de dosage des AOX dans les sédiments est basée sur la norme DIN 38414-18 (1989).

Le sédiment est prélevé à l'aide d'une cuillère en inox de manière à ne récupérer que la couche supérieure. L'échantillon est tamisé sur un tamis de 2 mm de trame pour éliminer les brindilles, cailloux,... puis mis à sécher à l'étuve à 105 °C. Une fois sec, le sédiment est broyé dans un mortier en porcelaine, et tamisé sur un tamis de 0.1 mm de trame. Ceci permet d'homogénéiser l'échantillon, tout en augmentant la surface d'adsorption spécifique (Hoffman *et al.*, 1988).

Deux sous-échantillons de chaque prélèvement sont réalisés. Pour cela 50 à 100 mg de sédiment sec et broyé sont placés dans un erlenmeyer en verre auquel on ajoute 10 ml de nitrate de sodium 0.2 M et 20 mg de charbon actif en poudre (indice d'iode > 1050 mg/g et valeur à blanc < 0.16  $\mu g/20$  mg). Le tout est mis à agiter pendant au moins une heure à 400 tours/min sur une table d'agitation. Après filtration par aspiration sur une membrane en polycarbonate (diamètre de pore 0.4  $\mu m$ , faible teneur en chlorures), l'échantillon est dosé par microcoulométrie selon le même principe que l'eau.

Les résultats sont exprimés en µg de chlore lié organiquement par g de sédiment sec (µg Cl/g). Parallèlement au dosage des AOX, une fraction du sédiment sec est calcinée à 500°C pour mesurer la teneur en matière organique de celui-ci, et ainsi pouvoir exprimer la teneur en AOX par rapport à la masse de matière organique (µg Cl/g M.O.).

La fiabilité et l'efficacité de l'adsorption et du dosage sont vérifiés par ajoutsdosés de p-chlorophénol.

La limite de détection est légèrement plus faible que pour le dosage des AOX dans l'eau, étant donné la plus petite quantité de charbon actif utilisée.

# 2.4. Méthode de dosage des EOX dans les organismes aquatiques

Il n'existe actuellement pas de norme concernant le dosage des composés organohalogénés dans les organismes vivants. Ces molécules étant, pour la plupart, fortement lipophiles, elles s'accumulent préférentiellement dans les graisses des organismes. Pour pouvoir les doser, une étape préalable d'extraction à l'aide d'un mélange de solvants polaires et apolaires est nécessaire. Deux méthodes, basées sur celle décrite par Martinsen *et al.* (1988) et modifiées par Mäkelä *et al.* (1992) et Pellinen *et al.* (1994) ont été utilisées. Le détail de ces méthodes est expliqué dans les paragraphes se rapportant à la bioaccumulation, aux chapitres § 4.2 et 4.3.

Les résultats de l'analyse peuvent être exprimés de trois manières, par rapport au poids frais (µg Cl/g PF.), par rapport au poids sec (µg Cl/g PS) et par rapport aux matières grasses (µg Cl/g MG.).

La limite de détection du constructeur pour le dosage des EOX est de 5 ng d'halogène.

# 3. ETUDE DE LA CONTAMINATION DE L'EAU ET DES SEDIMENTS

# 3.1. Suivi de la concentration en AOX dans l'eau et les sédiments

# 3.1.1. Site d'étude

Huit stations réparties sur trois cours d'eau du nord-est de la France ont été sélectionnées, notamment en raison de l'existence d'une usine de pâte à papier blanchissant au chlore, située sur le Ton au niveau de la ville de Harnoncourt (Belgique). La figure 2 présente le site d'étude et la localisation des stations, basées sur les stations du RNB:

#### - sur le Ton :

- "Ton-amont", située au niveau de la ville de Virton (Belgique), à environ 2 Km en amont des rejets de l'usine de pâte à papier,
- "Ecouviez" (N° National 115775), située à environ 3 Km à l'aval des rejets de l'usine de pâte à papier,

#### - sur la Chiers:

- "Charency" (N° National 115750), située en amont de la confluence avec le Ton,
- "Carignan" (N° National 116000), située en aval de la confluence avec le Ton,

#### - sur la Meuse:

- "Bras/Meuse" (N° National 112000), située en amont de la confluence avec la Chiers,
- "Nouzonville" ( $N^{\circ}$  National 119000), située en aval de la confluence avec la Chiers,
- "Ham/Meuse" (N° National 123000),
- "Givet" (N° National 124000).

Toutes ces stations ont été prospectées à une fréquence mensuelle de mai 1993 à novembre 1994.

# 3.1.2. Dosages dans l'eau

#### 3.1.2.1. Résultats

Le tableau VI regroupe les résultats des dosages d'AOX effectués sur les prélèvements d'eau des 8 stations de l'étude au cours de 18 mois, de mai 1993 à novembre 1994. Les figures 3 à 10 présentent l'évolution des concentrations en AOX au niveau de chaque station.

#### Le Ton

Les figures 3 et 4 montrent l'évolution des concentrations en AOX au niveau des stations "Ton-amont " et "Ecouviez ", situées sur le Ton, respectivement en amont et en aval du rejet de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt.

Les concentrations rencontrées au niveau de la station "Ton-amont" sont relativement stables au cours du temps, avec cependant des teneurs légèrement plus élevées durant les mois de juillet à novembre 1993. La concentration moyenne est de  $14.9~\mu g$  Cl/l avec un minimum de  $6.4~\mu g$  Cl/l (avril 1994) et un maximum de  $30.8~\mu g$  Cl/l (août 1993).

Les rejets de l'usine de pâte à papier se traduisent par une augmentation importante de la concentration en AOX au niveau de la station "Ecouviez", atteignant un maximum de 802.2 µg Cl/l au mois de mars 1994, soit 55 fois plus qu'en amont. La fermeture de l'usine, entre juillet 1993 et février 1994 se traduit par une diminution nette de la concentration en AOX, passant de 479.6 µg Cl/l (juin 1993) à 40.6 µg Cl/l (juillet 1993). Cependant, durant les cinq premiers mois suivant la fermeture (juillet à novembre 1993), les teneurs rencontrées à l'aval des rejets restent supérieures à celles de l'amont, et ce n'est que à partir des crues de l'hiver 1994 que les concentrations deviennent à peu près égales à celles de l'amont. La reprise de l'activité de l'usine au mois de mars 1994 se caractérise par un pic ponctuel d'AOX (802.2 µg Cl/l) puis une augmentation progressive de 158.5 µg Cl/l à 325.0 µg Cl/l d'avril à novembre 1994 (le facteur de pollution entre l'amont et l'aval passe de 21 à 27).

#### La Chiers

Les figures 5 et 6 montrent l'évolution de la concentration en AOX dans l'eau de la Chiers au niveau des stations "Charency" et "Carignan", situées respectivement en amont et en aval de la confluence avec le Ton.

Les teneurs en AOX au niveau de la station "Charency" sont relativement stables au cours du temps, avec une concentration moyenne de  $18.1 \,\mu g$  Cl/l, un minimum de  $9.84 \,\mu g$  Cl/l (février 1994) et un maximum de  $28.7 \,\mu g$  Cl/l (juillet 1993).

Au niveau de la station "Carignan" on observe une évolution semblable à celle de la station "Ecouviez", à savoir une diminution importante de la concentration en AOX durant les mois de fermeture de l'usine de pâte à papier de juillet 1993 à février 1994. Cependant, les teneurs restent toujours supérieures à celles rencontrées à la station "Charency", avec une concentration moyenne de 59.3 μg Cl/l. La reprise de l'activité de l'usine de pâte à papier se traduit par un pic ponctuel important au mois de mars 1994 (83.5 μg Cl/l), puis une augmentation progressive d'avril à novembre 1994, passant ainsi de 36.2 μg Cl/l à 102.5 μg Cl/l.

#### La Meuse

Les figures 7, 8, 9, et 10 présentent l'évolution de la concentration en AOX au niveau des quatre stations d'étude situées sur la Meuse.

Il apparaît que la concentration moyenne au cours des 18 mois augmente de l'amont ver l'aval, passant de 19.3  $\mu$ g Cl/l au niveau de "Bras/Meuse", à 36.8  $\mu$ g Cl/l au niveau de "Givet". Les concentrations varient peu au niveau de l'amont (écart-type de 7.0  $\mu$ g Cl/l), alors qu'elles varient beaucoup plus à l'aval (23.9  $\mu$ g Cl/l).

Contrairement aux stations "Ecouviez" et "Carignan", la période de non activité de l'usine de pâte à papier ne se traduit pas par une diminution importante de la concentration en AOX au niveau de la station "Nouzonville". Une augmentation des teneurs est observée début mars 1994, passant de 8.8 µg Cl/l à 24.7 µg Cl/l, correspondant à la reprise de l'activité de l'usine, mais aussi à la fin des crues de l'hiver 1993-94.

Un pic important de la concentration en AOX est observé en novembre 1993, au niveau de toutes les station de la Meuse, avec un maximum de  $110.3~\mu g$  Cl/l, correspondant au début des crues.

#### 3.1.2.2. Conclusion

Globalement il apparaît au vu des résultats des 18 mois de l'étude que les stations situées en amont des trois cours d'eau, à savoir "Ton-amont", "Charency" et "Bras/Meuse", présentent une concentration moyenne en AOX inférieure à 25.0 µg Cl/l, valeur limite RIWA A. Toutes les autres stations et notamment "Ecouviez" et "Carignan" présentent des fortes teneurs en AOX, avec une moyenne supérieure à 25.0 µg Cl/l, voir 50.0 µg Cl/l, directement liées aux rejets de composés organo-halogénés de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt.

# 3.1.3. <u>Dosage dans les sédiments</u>

#### 3.1.3.1. Résultats

Etant donné que la nature du sédiment, et plus particulièrement le rapport "matière organique/matière minérale" varie beaucoup au cours du temps et en fonction des stations, il nous a paru intéressant de déterminer le pourcentage de matière organique de chaque échantillon (Tableau VIII). Les résultats du dosage des AOX dans les sédiments des 8 stations au cours des 18 mois de l'étude sont ainsi exprimés par rapport au poids sec (Tableau VII) et par rapport au poids de matière organique (Tableau IX). En raison des fortes crues survenues lors de l'hiver 1993-1994, les stations n'ont pas pu être échantillonnées durant les mois de octobre, novembre et décembre 1993.

Les figures 11 à 18 montrent l'évolution des concentrations en AOX au niveau de chaque station.

#### Le Ton

Les figures 11 et 12 montrent l'évolution de la teneur en AOX dans les sédiments au niveau des stations "Ton-amont" et "Ecouviez", situées respectivement en amont et en aval des rejets de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt.

Les concentrations en AOX au niveau de "Ton-amont" varient peu au cours du temps avec une moyenne de  $16.1\pm6.8~\mu g$  Cl/g de poids sec, soit  $293.2\pm76.2~\mu g$  Cl/g de matière organique.

Au niveau de la station "Ecouviez", la concentration en AOX varie plus fortement au cours de l'étude. La période de non activité de l'usine se traduit par une diminution de la teneur à partir du mois de juillet 1993, surtout visible si on exprime la concentration par rapport au poids de matière organique. La concentration passe de 3482.9 μg Cl/g M.O. (juin 1993) à 1170.5 μg Cl/g M.O. (juillet 1993), et avec un minimum de 316.9 μg Cl/g M.O. au mois de janvier 1994, à la fin des crues de l'hiver. A partir de mars 1994 (reprise de l'activité de l'usine), la concentration augmente progressivement jusqu'à 1461.5 μg Cl/g M.O. au mois d'octobre 1994, sans pourtant atteindre des valeurs semblables à celles rencontrées en juin 1993.

#### La Chiers

Les figures 13 et 14 montrent l'évolution de la concentration en AOX dans les sédiments aux stations "Charency" et "Carignan", situées respectivement en amont et en aval de la confluence avec le Ton.

La concentration moyenne en AOX augmente après la confluence avec le Ton, d'un facteur 1.26 si l'on considère le poids sec et d'un facteur 1.56 si l'on considère le poids de matière organique. La période de fermeture de l'usine se traduit par une très légère diminution de la teneur en AOX dans les sédiments au niveau de la station "Carignan", puis une légère augmentation à partir du mois de mars 1994, à la reprise de l'activité de l'usine.

#### La Meuse

Les figures 15 à 18 montrent l'évolution de la concentration en AOX au niveau des quatre stations de la Meuse. Si l'on considère les teneurs moyennes, exprimées en fonction du poids sec du sédiment, on observe de faibles variations pour les quatre stations, avec un minimum de  $28.4~\mu g$  Cl/g PS à "Bras/Meuse" et un maximum de  $34.2~\mu g$  Cl/g PS à "Givet". Si l'on exprime les concentrations moyennes en fonction du

poids de matière organique, on observe des différence importantes, avec toujours un minimum de 243.9  $\mu$ g Cl/g M.O. à "Bras/Meuse", mais un maximum de 621.9  $\mu$ g Cl/g M.O. au niveau de "Nouzonville". De même, les deux stations aval, "Ham/Meuse" et "Givet", qui présentaient une faible différence de concentration en fonction du poids sec (respectivement 29.6 et 34.2  $\mu$ g Cl/g PS) n'ont pas la même nature de sédiment, se traduisant par une différence des teneurs exprimées en fonction du poids de matière organique (respectivement 369.3 et 541.5  $\mu$ g Cl/g M.O.).

#### 3.1.3.2. Conclusion

De part leur nature et leur composition chimique, les AOX sont compris dans la partie organique des sédiments. La proportion de cette dernière varie beaucoup dans les sédiments en fonction du temps et de la station considéré. Lors de la comparaison des différents résultats, il est donc important de considérer les deux modes d'expression.

Tout comme pour les résultats obtenus pour l'eau (cf. § 3.1.2.), il apparaît que les stations situées en amont du Ton et de la Meuse présentent les concentrations en AOX les plus faibles, et ce quelle que soit l'unité d'expression. Cependant la nature du sédiment n'est pas la même au niveau des deux stations. Ainsi les concentrations en fonction du poids de matière organique sont semblables (respectivement 293.2 et 243.9 μg Cl/g M.O.), alors qu'un facteur de presque 2 les différencie si on exprime la concentration en poids sec de sédiment. Les concentrations les plus importantes sont rencontrées au niveau des stations situées à l'aval de l'usine de pâte à papier, avec un maximum de 50.9 μg Cl/g PS, soit 1365.2 μg Cl/g M.O., à "Ecouviez". Tout comme pour les deux points amont, une différence est observée entre les stations Carignan et Nouzonville si l'on considère les concentrations moyennes en fonction du poids sec (respectivement 52.1 et 30.6 μg Cl/g PS), mais plus si l'on considère les concentrations en fonction du poids de matière organique (respectivement 653.3 et 621.9 μg Cl/g M.O.).

# 3.2. Profils longitudinaux de la concentration en AOX

Les profils longitudinaux de la concentration en AOX ont été réalisés entre septembre 1993 et mars 1994, durant la période de fermeture de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt. Ils ont été réalisés dans le but de se familiariser avec la méthode des

AOX, tout en apportant des renseignements sur les sources ponctuelles de contamination des cours d'eau par les organo-halogénés.

# 3.2.1. Sites d'étude

Quatre cours d'eau du nord-est de la France (figure 19) ont été échantillonnés entre septembre 1993 et mars 1994. La prospection de 53 stations différentes (Tableau X), répartis sur la Moselle (16 stations sur 300 Km, prospectées le 07.10.1993) et son affluent majeur la Meurthe (11 stations sur 170 Km, prospectées le 07.02.1994), la Meuse (11 stations sur 250 Km, prospectées le 22.03.1994) et son affluent la Chiers (15 stations sur 110 Km, prospectées le 23.09.1993) a permis de réaliser les profils longitudinaux de la concentration en AOX de ces cours d'eau. Pour chaque cours d'eau, les prélèvements ont été réalisés le même jour, de l'amont vers l'aval. Etant donné que les conditions hydriques lors des différents échantillonnages n'étaient pas les mêmes, le calcul des charges en fonction du débit a été réalisé afin de pouvoir comparer les différents cours d'eau entre eux.

# 3.2.2. Résultats

Les tableaux XI à XIV présentent les concentrations en AOX, débits et charges des quatre cours d'eau au niveau des stations prospectées.

Les figures 20 à 23 présentent les profils longitudinaux de la concentration en AOX des quatre cours d'eau prospectés, ainsi que les teneurs en AOX de leurs principaux affluents juste avant la confluence. De plus le calcul de charge a été réalisé pour les stations dont le débit est connu.

#### La Moselle

La Moselle prend sa source dans le massif vosgien et traverse la Lorraine, région fortement peuplée et industrialisée, du sud au nord sur une distance d'environ 300 Km. Le profil longitudinal de la concentration en AOX est présenté en figure 20.

L'eau prélevée en tête de bassin, en amont de toute activité anthropique présente une concentration en AOX de 15.0 µg Cl/l. Un premier pic est observé à l'aval des villes d'Epinal et de Golbey, où la concentration atteint 50.6 µg Cl/l. Après une légère diminution, la concentration en AOX augmente après la confluence avec la Meurthe, passant de 15.8 µg Cl/l (Toul) à 42.3 µg Cl/l. Au niveau de Jouy-aux-Arches la concentration en AOX est multipliée par 2.7, pour atteindre le maximum observé sur tout le profil, de 116.2 µg Cl/l. A l'aval de la ville de Metz la concentration en AOX se stabilise autour de 60 µg Cl/l, diminuant légèrement jusqu'à la frontière allemande. L'évolution de la charge en AOX est semblable à celle de la concentration, avec un maximum de 23.25 g/s au niveau de Jouy-aux-Arches.

Les affluents de la Moselle prospectés présentent des concentrations en AOX de 25.1 µg Cl/l (Vologne), 98.6 µg Cl/l (Meurthe) et 66.9 µg Cl/l (Seille).

#### La Meurthe

La figure 21 présente le profil longitudinal de la concentration en AOX de la Meurthe, depuis la tête de bassin dans les Vosges, jusqu'à sa confluence avec la Moselle à l'aval de Nancy.

La première station prospectée se situe en amont de toute activité anthropique et présente une concentration en AOX de 6.8 µg Cl/l. Cette teneur augmente progressivement et est multipliée par 2.3, passant à 16.0 µg Cl/l à l'aval de St Dié des Vosges. Une augmentation très importante est observée au niveau de Dombasle où la concentration en AOX est multipliée par 6.2 pour atteindre un maximum de 86.4 µg Cl/l, après quoi elle diminue jusqu'à 70.5 µg Cl/l avant de confluer avec la Moselle. Le calcul de la charge pour les stations dont les données de débit sont disponibles montre une augmentation depuis la tête de bassin (0.026 g/s) jusqu'à la confluence avec la Moselle (8.56 g/s).

Les affluents de la Meurthe échantillonnés présentent des concentration en AOX de 10.4 µg Cl/l (Hure), 12.4 µg Cl/l (Vezouse) et 22.76 µg Cl/l (Mortagne).

#### La Meuse

Le profil longitudinal de la concentration en AOX de la Meuse depuis St Mihiel jusqu'à la frontière belge est présenté en figure 22.

De St Mihiel à Dun-sur-Meuse, la teneur en AOX est stable autour de 15  $\mu$ g Cl/l. A l'aval de la ville de Stenay la concentration est multipliée par 2.4 passant ainsi de 15 à 35  $\mu$ g Cl/l. La confluence avec la Chiers entre Mouzon et Bazeille-sur-Meuse, à un moment de l'année où l'usine de pâte à papier située sur le Ton, affluent de la Chiers est en production, se traduit par une augmentation de la concentration en AOX, atteignant un maximum de 45  $\mu$ g Cl/l avant de décroître progressivement jusqu'à Givet (25  $\mu$ g Cl/l). La charge en AOX suit une progression similaire à celle de la concentration sur la première partie du profil, mais continue à augmenter après la confluence avec la Chiers, ne diminuant que légèrement à partir de Revin.

#### La Chiers

La figure 23 montre le profil longitudinal de la concentration en AOX dans la Chiers, depuis la frontière luxembourgeoise jusqu'à la confluence avec la Meuse.

A l'aval de la ville de Longwy, la concentration en AOX est de 27.2  $\mu g$  Cl/l. Elle diminue rapidement pour atteindre un minimum de 13.5  $\mu g$  Cl/l au niveau de Montigny sur Chiers. Un pic important est observé à Longuyon où la concentration est multipliée par 2.7 et augmente jusqu'à 36.5  $\mu g$  Cl/l. La confluence avec le Ton n'est pas remarquée en raison de l'inactivité de l'usine de pâte à papier lors de la réalisation du profil. Cependant après la confluence, la concentration en AOX augmente progressivement jusqu'à la confluence avec la Meuse.

La Crusne, le Ton et l'Othain, principaux affluents de la Chiers présentent des concentrations en AOX, respectivement de 8.6, 35.2 et 30.6 µg Cl/l.

#### 3.3. <u>Discussion - Conclusions</u>

Le suivi de la contamination en AOX de l'eau au niveau de huit stations réparties sur le Ton (2 stations), la Chiers (2 stations) et la Meuse (4 stations) permet de distinguer trois groupes en fonction de la concentration moyenne en AOX sur les 18

mois de l'étude, et classés selon les valeurs-guides de la RIWA (RIWA, 1992). Un premier groupe comporte les trois stations situées en amont des cours d'eau étudiés, à savoir "Ton-amont", "Charency" et "Bras/Meuse", dont la concentration moyenne en AOX est inférieure à 25.0 µg Cl/l, valeur limite RIWA A, 'pour laquelle il est possible de produire une eau potable d'une qualité irréprochable par des méthodes simples'. Ces stations présentent également des variations temporelles relativement faibles. Un deuxième groupe comporte les trois autres stations de la Meuse ("Nouzonville", "Ham/Meuse" et "Givet"), pour lesquelles la concentration moyenne en AOX est supérieure à la valeur limite RIWA A, mais inférieure 50.0 µg Cl/l, valeur limite RIWA B, 'pour laquelle il est possible de produire de l'eau potable de qualité satisfaisante par la constitution de bassins de réserve et/ou l'application de techniques d'épuration avancées'. Enfin le dernier groupe est constitué par les deux stations "Ecouviez" et "Carignan", situées respectivement sur le Ton et la Chiers, et dont la concentration moyenne en AOX est supérieure à 50 µg Cl/l (respectivement 59.3 et 207.8 µg Cl/l). Cette distinction de groupes reste valable si l'on utilise la classification établie par Hoffmann (1986) sur les principales rivières de Bavière, comportant quatre classes présentées dans le tableau XV.

Tableau XV : Classification des stations en fonction de la concentration en [AOX]. (Hoffmann, 1986).

	[AOX] (µg Cl/l)	Signification	Stations concernées dans cette étude
_	2-5 Influence négligeable		
	5-20	Influence modérée	"Ton-amont", "Charency", "Bras/Meuse"
20-40 Influence significative		Influence significative	"Nouzonville", "Ham/Meuse", "Givet"
	> 40	Influence importante	"Carignan", "Ecouviez"

Lors de la période de non activité de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt, de juillet 1993 à fin février 1994, la concentration en AOX au niveau des stations "Ecouviez" et "Carignan" diminue fortement, tout en restant supérieure aux concentrations rencontrées aux stations amont (respectivement "Ton-amont" et "Charency"). L'hypothèse d'un phénomène d'accumulation-relarguage par les sédiments (Hoffmann *et al.*, 1988) est confirmée par les concentrations en AOX rencontrées dans les sédiments des station "Ecouviez" et "Carignan". En effet, celles-ci décroissent progressivement durant la période de fermeture de l'usine, puis augmentent à nouveau dès le mois de mars 1994. Les concentrations rencontrées dans les sédiments au niveau des stations amont, notamment au niveau de "Ton-amont" sont faibles mais non nulles.

Un profil longitudinal de la concentration en AOX représente une situation momentanée et ne peut pas être considéré comme représentatif d'un état de qualité général du cours d'eau considéré (Keller, 1989). Cependant, il permet une approche de la mise en évidence des sources ponctuelles de contamination, et la comparaison des différents cours d'eau.

On constate que les quatre cours d'eau étudiés, excepté la Meurthe amont, présentent des concentration en AOX supérieures à 10 µg Cl/l, souvent même supérieures à la valeur limite de la RIWA A de 25.0 µg Cl/l.

Les résultats obtenus en tête de bassin pour le Meurthe et la Moselle font apparaître des concentrations en AOX respectivement de 6.8 et 15.0 µg Cl/l en amont de toute activité anthropique. Selon la littérature ceci peut s'expliquer par deux raisons principales : par une production naturelle de composés organo-halogénés et par des dépôts atmosphériques humides suite à des transports de longue distance (Asplund, 1992). Les concentrations moyennes en AOX dans les précipitations ont été estimées à 15 μg Cl/l en Suède (Enell & Wennberg, 1991), à 7 μg Cl/l en Finlande (Jokela et al., 1992) et 20 µg Cl/l en Allemagne (Klopp & Kornatzki, 1987). Selon une étude menée sur le Rhin, les dépôts atmosphériques de composés organo-halogénés de faible poids moléculaire sur le bassin versant, représentent 40 tonnes par an. Cependant, compte tenu de la nature volatile de la majorité de ces molécules et les grands volumes d'eau du bassin versant, cette source n'apporte que 0.1 µg Cl/l à la contamination totale du Rhin par les AOX (Hoekstra & de Leer, 1994). Une autre source d'apports diffus est constituée par la chloration naturelle des acides humiques sous l'action de la peroxidase, pouvant entrainer la génération de molécules organo-halogénées (Asplund & Grimvall, 1991). Sous l'action de la pluie, ces composés sont lessivés du sol et transportés dans les eaux de surfaces, où ils contribuent à la contamination globale par les AOX. La production naturelle d'AOX dans les eaux de surface en Suède, loin de toute activité anthropique varie entre 10 et 190 µg Cl/l (Asplund & Grimvall, 1991).

La réalisation de profils longitudinaux a permis de mettre en évidence différents lieux de contamination anthropique par les AOX. De fortes augmentations de la teneur en AOX sont ainsi rencontrées à l'aval des grandes agglomérations munies de stations d'épuration, telles que St Dié des Vosges (27 500 habitants) sur la Meurthe, Epinal (70 000 habitants) et Nancy (330 000 habitants) sur la Moselle, où les concentrations en AOX sont multipliées par 2, voir plus entre l'amont et l'aval. Des phénomènes semblables ont été observés sur le Main, où la concentration en AOX passe d'environ 30 à plus de 250 µg Cl/l entre l'amont et l'aval de l'agglomération de Francfort avec 635 000 habitants (Keller, 1989).

Une autre source de composés organo-halogénés importante est constituée par les usines de pâte à papier, telles que celle de Harnoncourt sur le Ton. Cette usine produit de la pâte à papier blanchie au chlore à l'aide de Cl2 et ClO2. Les effluents, chargés en composés organo-halogénés sont déversés dans le Ton, affluent de la Chiers, elle même affluent de la Meuse. L'impact de ces effluents est visible sur les concentrations en AOX rencontrées au niveau de la station sur la Chiers, mais aussi sur le profil longitudinal de la Meuse. En effet, la concentration en AOX augmente fortement après la confluence avec la Chiers, mais le débit de la Meuse est telle que la dilution se fait rapidement.

Au vu de ces résultats, il apparaît que les composés organo-halogénés sont ubiquistes dans les cours d'eau et aux stations étudiées. Une concentration faible, mais non nulle d'AOX est observée en tête de bassin pour la Meurthe et la Moselle, qui s'accroît au fur et à mesure de l'écoulement du cours d'eau à travers de zones urbanisées et industrialisées, suite à trois principales sources d'organo-halogénés que sont :

- les effluents d'usines de pâte à papier blanchissant au chlore,
- les effluents de rejets urbains (stations d'épuration, potabilisation de l'eau),
- les apports diffus suite à une production naturelle et aux dépôts humides.

Le suivi de la pollution des cours d'eau au moyen de dosages d'échantillons ponctuels (profils longitudinaux), ou de suivis mensuels présentent l'avantage de donner des résultats directement utilisables pour le contrôle de certains usages de l'eau, tels que l'alimentation humaine. Ces façons de procéder posent cependant le problème de la représentativité de l'échantillonnage, suite à la grande variabilité spatiale et temporelle des concentrations dans l'eau.

Le suivi de la concentration en AOX dans les sédiments à permis de mettre en évidence un phénomène d'accumulation-relarguage de molécules organo-halogénés, notamment au niveau des stations situées à l'aval des rejets d'une usine de pâte à papier blanchissant au chlore. En raison de la forte variation de la nature et de la composition du sédiment en fonction du temps et de l'espace, il nous paraît important d'exprimer les concentrations en AOX dans ceux ci de deux manières : par rapport au poids sec et par rapport au poids de matière organique.

# 4. ETUDE DE LA CAPACITE BIOACCUMULATRICE

# 4.1. <u>Description de l'usine de pâte à papier</u>

L'usine de pâte à papier de Harnoncourt (anciennement CdA, Cellulose des Ardennes) est la seule usine de pâte à papier chimique de Belgique. Elle se situe dans la province du Luxembourg, près de la frontière franco-belge. Mise en service en 1964, sa capacité de production est d'environ 668 tonnes de pâte à papier par jour, soit 240 000 tonnes par an (Goris, 1989) Le procédé de production est connu sous le nom de procédé au sulfate, et la pâte est blanchie pour sa commercialisation. La matière première est le bois de feuillu (hêtre, charme, bouleau et chêne).

La pâte est blanchie en cinq séquences successives, qui sont :

Stade C/D : 75% Cl2 + +25% ClO2

Stade E1 : NaOH + O2

Stade D1 : ClO2

Stade E2 : NaOH + H2O2

Stade D2 : ClO2

Les effluents sont traités dans une station d'épuration propre à l'usine (environ 400 000 équivalents habitants) par le procédé des boues activées, avant d'être évacués dans le Ton.

# 4.2. Première expérience d'accumulation in situ

#### 4.2.1. Matériels et méthodes

#### 4.2.1.1. Site d'étude

Le site d'étude choisi se situe sur la rivière Ton au niveau de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt. Deux stations ont été sélectionnées en raison de leur situation géographique par rapport à l'endroit d'émission des rejets (figure 24). La station "Tonamont" se situe en Belgique, au niveau de la ville de Virton, à environ 2 Km en amont du rejet. La station "Ecouviez" se situe au même endroit que le point RNB (N° National 115775), à environ 3 Km en aval du rejet de l'usine.

#### 4.2.1.2. Ramassage et conditionnement des animaux

85 bivalves de la famille des Unionidés (*Anodonta anatinida*), de taille comprise entre 55 et 75 mm ont été ramassés au mois de février 1994 au niveau de "Ham/Meuse", dans le fleuve Meuse, à une profondeur d'environ 50 cm. Les individus sont rapportés au laboratoire dans des glacières contenant du sédiment et de l'eau du site de prélèvement. Au laboratoire, les individus sont lavés à l'aide d'une brosse sous l'eau courante afin d'éliminer toutes les saletés déposées sur la coquille. Les animaux sont mis à stabuler pendant 3 jours, sans être nourris, dans de l'eau de robinet déchlorée par passage sur charbon actif. L'eau déchlorée est changée tous les jours. Pendant ce temps, les animaux sont divisés en trois lots :

- un lot témoin de 5 individus et
- deux lots homogènes de 40 individus destinés à être transférés sur le site d'étude.
   Les 5 individus du lot témoin sont emballés dans du papier aluminium et congelés à -18°C jusqu'au moment de l'analyse.

#### 4.2.1.3. Transfert des animaux

Des cages en plastique de dimension 60x40x20 cm sont percées avec des trous de 2 cm de diamètre sur tout le 1/3 supérieur, ainsi que sur le couvercle (figure 25) afin que l'eau puisse circuler librement dans les cages. Une couche de 2 à 3 cm de sédiment de la station d'exposition est placée au fond de chaque cage, puis les 40 individus sont déposés sur celui-ci. Les cages fermées à l'aide de fil de fer sont fixées à deux piquets métalliques puis installées dans le courant de la rivière à une profondeur d'environ 50 cm (figure 26).

#### 4.2.1.4. Prélèvements

Des prélèvements sont effectués au bout de 6, 13, 20, 27, 46 et 75 jours d'exposition. Lors de chaque prospection, le dispositif entier est sorti de l'eau et nettoyé de manière à éliminer les brindilles et les feuilles mortes susceptibles de colmater les trous des cages. L'état de santé de tous les individus est vérifié et les animaux morts sont éliminés du lot. Cinq individus sont prélevés à chaque station et rapportés au laboratoire dans des bocaux en verre contenant de l'eau du site

De l'eau et du sédiment sont prélevés aux mêmes dates que les animaux. Le sédiment est prélevé dans la cage d'exposition à l'aide d'une cuillère en inox, en prenant soin de ne prélever que la couche superficielle, représentant les sédiments les plus récents.

#### 4.2.1.5. Analyses

Les échantillons d'eau et de sédiment sont conservés à l'obscurité en chambre froide et analysés dans les 3 jours suivant le prélèvement selon les méthodes décrites respectivement aux § 2.2. et § 2.3.

De retour au laboratoire, les anodontes sont mis à stabuler pendant 24 heures dans de l'eau déchlorée afin de purger leur tractus digestif, puis congelés dans du papier aluminium à -18°C jusqu'à l'analyse.

Les échantillons d'anodontes sont conservés au congélateur jusqu'à la fin de l'expérience et sont tous préparés en même temps. Ceci permet d'avoir des conditions d'expérimentation et d'extraction homogènes et de réduire ainsi le risque d'erreur dû à la manipulation. Le protocole de préparation et de dosage des EOX est basé sur celui décrit par Martinsen *et al.* (1988), modifié par Mäkelä *et al.* (1992).

Une fois décongelée, la partie molle des anodontes est détachée de la coquille et broyée à l'aide d'un robot ménager. Les broyats des 5 individus de chaque lot sont mélangés et homogénéisés, puis extraits en deux étapes à l'aide d'un mélange de solvants, cyclohehane-acétone (1:1; v:v). Pour cela 10 grammes de tissus frais sont prélevés dans un erlenmeyer en verre auquel on ajoute 30 ml de mélange de solvants avant de mettre à agiter sur table d'agitation pendant 18 heures. Le mélange est centrifugé et la phase organique est récupérée. Une deuxième extraction est réalisée avec 20 ml de mélange de solvant pendant 2 heures, et la phase organique est récupérée après centrifugation. Les extraits organiques sont mélangés, et lavés deux fois avec 50 ml d'une solution 0.1 M de (NH4)3PO4 x 0.9% NaNO3, afin d'éliminer les halogénures libres (Cl-, Br-, I-). Après élimination de la phase aqueuse, la phase organique est évaporée à sec sous vide, à l'aide d'un rotavapor Büchi. Le poids des lipides est mesuré. Les extraits lipidiques contenant les composés organo-halogénés sont remis en solution dans 2 ml de cyclohexane. Le dosage est effectué par injection de 8 à 15 μl de cette solution dans l'analyseur, puis dosage microcoulométrique.

Des blancs d'extraction sont réalisés pour toute série de 5 échantillons. L'étalonnage de l'appareil se fait à l'aide d'une solution de p-chlorophénol dans du cyclohexane.

#### 4.2.2. Résultats

Parallèlement aux dosages des composés organo-halogénés totaux dans l'eau, les sédiments et les organismes, la qualité générale de l'eau des deux stations a été déterminée.

# 4.2.2.1. Qualité de l'eau

Les mesures physico-chimiques et les dosages relatifs à la qualité générale de l'eau du Ton au niveau des deux stations d'étude a été réalisée aux mêmes dates que les prélèvements. Les résultats sont présentés dans le tableau XV.

Les rejets de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt se traduisent par une dégradation de la qualité générale de l'eau, et plus particulièrement par une augmentation de la conductivité, des matières en suspension, de la DBO5 et de la DCO. Un échauffement de l'eau est constaté, avec une différence de température moyenne de 2.7°C (la différence maximale observée est de 3.6°C). L'utilisation de chlore sous forme de Cl2 et ClO2 lors du blanchiment de la pâte à papier se traduit par une augmentation de la concentration moyenne en chlorures, qui passe de 11.14 à 35.51 mg/l. Lors de trois des prélèvements, une concentration en bromures supérieure à 1 mg/l est observée à la station aval.

La qualité générale de l'eau se dégrade donc suite au rejets des effluents de l'usine de pâte à papier de Harnoncourt. Il est important de noter cette différence entre les deux stations, qui pourrait se répercuter sur la physiologie des individus transplantés.

Il est à noter que durant les 75 jours d'exposition à l'eau du Ton, aucun individu n'est mort, ni à l'amont ni à l'aval des rejets. Cependant, une différence de comportement a été observée entre les individus des deux stations. Les anodontes de la station aval présentent des pieds beaucoup plus étirés dans le sédiment que les individus de la station amont.

# 4.2.2.2. Organo-halogénés

# AOX dans l'eau

Les résultats du dosage des AOX dans l'eau sont présentés dans le tableau XVI. La figure 27 montre l'évolution des concentrations au cours de l'étude pour les deux stations.

La concentration en AOX au niveau de la station amont est relativement stable et faible, avec une teneur moyenne de 9.4  $\mu$ g Cl/l. De légères variations sont observées au cours du temps, dont la cause principale est le changement de débit observé durant l'expérience.

Au niveau de la station aval, on constate une très forte augmentation de la concentration en AOX au cours des 20 premiers jours, celle ci passant de 164.8  $\mu$ g Cl/l à 988.9  $\mu$ g Cl/l, avant de diminuer fortement jusqu'au 34ème jour (123.5  $\mu$ g Cl/l), puis plus progressivement jusqu'à la fin de la durée d'exposition.

# AOX dans les sédiments

Le tableau XVII présente les résultats du dosage des AOX dans les sédiments, exprimés en fonction du poids sec de sédiment et en fonction du poids de matière organique. Les figures 28 et 29 montrent l'évolution des concentrations au cours de l'étude.

Si l'on considère la concentration en AOX en fonction du poids sec de sédiment (figure 28), on observe que les deux stations présentent des variations importantes, avec des teneurs supérieures à l'aval . De fortes variations sont observées dans la nature du sédiment (% de matière organique) entre les deux stations, mais aussi au cours du temps pour une même station. Pour cette raison la concentration en AOX est également

exprimée en fonction du poids de matière organique (figure 29). La station amont présente lors une concentration en AOX dans le sédiment relativement stable, avec une légère augmentation lors des premiers jours. Au niveau de la station aval, on note une forte augmentation de la concentration au cours des 6 premiers jours, passant de 693.4 à 980.3 µg Cl/g M.O., puis une diminution progressive jusqu'à 583.7 µg Cl/g M.O.

# EOX dans les anodontes

Le tableau XVIII présente les caractéristiques principales des anodontes au niveau des deux stations d'exposition ainsi que les résultats des dosages d'EOX pour les lots de 5 individus. Les figures 30 à 32 montrent l'évolution des concentrations en EOX, respectivement en fonction du poids frais, du poids sec et du poids de matières grasses.

Il apparaît que, quelle que soit la manière dont on exprime les résultats, les concentrations en EOX sont plus élevées chez les individus exposés aux effluents de l'usine de pâte à papier, avec une augmentation importante au cours des premiers jours d'exposition. Etant donné que les composés organo-halogénés sont pour la plupart des molécules lipophiles, elles s'accumulent préférentiellement dans les parties grasses des individus. Il est donc plus logique d'exprimer leur concentration en fonction du poids de matières grasses.

Au niveau de la station amont, considérée comme station de référence en raison des faibles teneurs en AOX dans l'eau et les sédiments, la concentration en EOX varie peu au cours du temps d'exposition, avec une concentration moyenne de 229.5  $\mu$ g Cl/g MG. La concentration en EOX dans les individus transplantés à l'aval de l'usine augmente fortement durant les 20 premiers jours d'exposition, allant jusqu'à 1058.9  $\mu$ g Cl/g MG., avant de diminuer et de se stabiliser vers 860  $\mu$ g Cl/g MG.

#### 4.2.3. Conclusions

L'usine de pâte papier de Harnoncourt a été fermée de début juillet 1993 à fin février 1994. Durant cette période, les rejets d'organo-halogénés par l'usine étaient nuls, se traduisant d'une part, par des concentrations en AOX faibles dans l'eau, et d'autre

part, par une décontamination des sédiments à l'aval des rejets (cf. § 3). L'étude d'accumulation a débuté au moment où la production de l'usine reprenait ; la vidange et la remise en fonctionnement de la chaîne de production et de la station d'épuration peuvent expliquer la forte augmentation des concentrations en AOX observées au début de l'expérience. Cette forte augmentation se traduit par une accumulation rapide des organo-halogénés dans les sédiments et les anodontes situés à l'aval, et par conséquent exposés aux effluents. Le maximum d'accumulation dans les sédiments est observé au bout de 6 jours, alors que dans les anodontes, ce maximum n'est observé qu'à 20 jours, au moment où la concentration en AOX dans l'eau commence déjà à décroître. De plus, il semble que la décontamination des sédiments se fasse plus rapidement lorsque la concentration en AOX diminue dans l'eau, alors que dans les anodontes, la teneur en EOX semble se stabiliser.

Lors de cette première expérience d'accumulation des organo-halogénés, plusieurs facteurs font que l'exploitation des résultats est délicate :

- la concentration en AOX au niveau de la station aval varie énormément (de 78.4 à 988.9 μg Cl/l) au cours de l'expérience,
- les intervalles de prélèvement sont tels que les éventuelles variations journalières de la concentration en AOX dans l'eau ne sont pas prises en compte, car rien ne laisse supposer que durant les périodes entre les dernières prélèvements la concentration n'est pas plus élevée,
- le dosage des EOX est effectué sur des pools de 5 individus dont les parties molles sont homogénéisées, et ne fait donc pas ressortir une éventuelle différence interindividuelle.

# 4.3. Deuxième expérience d'accumulation

# 4.3.1. Matériel et méthodes

# 4.3.1.1. Site d'étude

Le site d'étude est localisé au même endroit que lors de la première expérience d'accumulation, et comporte trois stations. Une "station amont ", considérée comme station de référence est située sur le Ton, à environ 2 Km en amont du rejet de l'usine de pâte à papier. Les deux autres stations sont situées à environ 3 et 5 Km en aval de ces rejets, respectivement sur le Ton (station "Ecouviez ") et la Chiers (station "Chiers "), après confluence de cette dernière avec le Ton (figure 33).

## 4.3.1.2. Ramassage et conditionnement des animaux

Des bivalves de la famille des Unionidées sont ramassés début octobre dans le canal de l'est au niveau de Bras/Meuse, lors du chaumage du canal. Les individus sont rapportés au laboratoire dans des glacières contenant de l'eau du site. Au laboratoire les animaux sont nettoyés sous l'eau courante à l'aide d'une brosse afin d'éliminer toutes les saletés accumulées sur les coquilles, puis mis à stabuler, sans être nourris, pendant 3 jours dans de l'eau de ville déchlorée par passage sur charbon actif ([AOX] < 5  $\mu$ g Cl/l). L'eau est changée tous les jours. Pendant ce temps, les animaux sont répartis en quatre lots de taille homogène (de 55 à 75 mm) :

- un lot témoin de quatre individus,
- un lot de 10 individus destinés à être transférés à la station amont,
- deux lots de 40 individus destinés à être transférés aux stations aval.

#### 4.3.1.3. Transfert des animaux

Les trois lots d'individus sont placés dans des cages en plastique similaires à celles utilisées dans la première expérience, puis fixés dans le cours d'eau. La nature des berges et la profondeur du cours d'eau au niveau de la station "Chiers" ne permet pas la fixation des piquets dans le cours de la rivière. Les piquets sont fixés dans la berge et

la cage est descendue dans l'eau à une profondeur d'environ 50 cm (la cage repose au fond) à l'aide de fil de fer.

#### 4.3.1.4. Prélèvements

Des prélèvements d'individus sont réalisés au bout de 4, 7, 11, 14, 18, 21, 25 et 28 jours au niveau des deux stations aval. Etant donné les résultats obtenus au niveau de la station amont lors de la première expérience, deux prélèvements au bout de 14 et 28 jours nous ont semblé suffisant au niveau de cette station. A chaque prospection, la cage est sortie de l'eau et nettoyée. L'état de santé des individus est vérifié et les individus morts sont éliminés du lot. Quatre individus de chaque lot sont prélevés et ramenés au laboratoire dans des bocaux en verre contenant de l'eau du site.

Du sédiment est prélevé dans les cages d'exposition au bout de 7, 14, 21 et 28 jours d'exposition (14 et 28 jours pour la station amont) à l'aide d'une cuillère en inox, en prenant soin de ne prélever que la couche superficielle.

Deux préleveurs automatiques d'eau sont installés au niveau des deux stations aval. La fréquence de prélèvement est de un flacon de 500 ml par huit heures, rempli par quatre pompages successifs de 125 ml espacés de 2 heures. Les flacons sont prélevés aux mêmes dates que les individus. Des tests réalisés avant l'expérience ont montré que la concentration en AOX ne varie pas si le dosage est fait dans les cinq jours suivant l'échantillonnage.

## 4.3.1.5. Analyses

Les échantillons d'eau et de sédiment sont conservés à l'obscurité en chambre froide et analysés dans les 3 jours suivant le prélèvement selon les méthodes décrites respectivement en § 2.2 et § 2.3.

Les anodontes sont mis à stabuler pendant 24 heures dans de l'eau déchlorée afin de purger leur tractus digestif, puis congelés dans du papier aluminium à -18°C jusqu'à l'analyse.

Le protocole utilisé pour l'extraction des organo-halogénés dans les anodontes est basé sur le même que lors de la première expérience, à savoir celui décrit par Martinsen et al. (1988). Quelques modifications d'ordre pratique ont été apportées, basées sur celles décrites par Pellinen et al. (1994). Chaque individu est préparé individuellement. Les bivalves sont décongelés et pesés. Les individus sont disséqués pour retirer la partie molle en prenant soin de garder l'hemolymphe. La partie molle est pesée et broyée à l'aide d'un robot de cuisine afin d'obtenir une masse homogène. 10 grammes de tissus broyés sont extraits une première fois avec 25 ml d'acétone pendant 15 minutes sur table d'agitation à 400 tours/min. Après ajout de 25 ml de cyclohexane, l'extraction est poursuivi pendant 2 heures. L'extrait est centrifugé (2000 g, 15 minutes) et la phase organique est séparée. L'homogénat est extrait une seconde fois à l'aide de 25 ml de cyclohexane pendant 2 heures, puis recentrifugé durant 15 minutes. La phase organique est prélevée et mélangée avec la précédente. L'extrait organique combiné est lavé trois fois avec 25 ml d'eau acide (pH 2, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) pour enlever les halides inorganiques, puis séché sur du Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> anhydre. Le solvant est évaporé sous vide à 40 °C dans un rotavapor Büchi et les matières grasses sont pesées, avant d'être reprises dans environ 1 ml de cyclohexane. Les solutions ainsi obtenues sont conservées au réfrigérateur à 6°C jusqu'au dosage. Le dosage est réalisé par injection de 8 à 14 µl de solution dans l'analyseur. L'injection, la combustion et le titrage microcoulométrique sont contrôlés par ordinateur, qui donne le résultat en µg d'halogène dosé.

#### 4.3.2. Résultats

#### 4.3.2.1. Qualité de l'eau

Les résultats moyens des analyses physico-chimiques de la qualité générale de l'eau pour les trois stations sont regroupés dans le tableau XIX.

Tout comme lors de la première expérience d'accumulation, la qualité générale de l'eau se dégrade à l'aval des rejets de l'usine de pâte à papier, se caractérisant notamment par une forte augmentation de la conductivité, des chlorures, des sulfates, des matières en suspension et de la DCO. Même après confluence avec la Chiers, au niveau de la station "Chiers", la qualité générale de l'eau reste plus mauvaise qu'au niveau de la station amont. Une forte augmentation de la température moyenne est observée pour les deux stations aval, avec une différence par rapport à l'amont de respectivement + 5.1 et + 2.2 °C pour la station "Ecouviez" et la station "Chiers".

Contrairement à la première expérience d'accumulation, dont la durée était pourtant plus longue, plusieurs individus sont morts lors de cette expérience :

- station amont : 0 mort,
- station Ecouviez : 1 mort au bout de 14 jours, 2 morts au bout de 28 jours,
- station Chiers: 1 mort au bout de 14 jours, 1 mort au bout de 28 jours.

Durant la phase de stabulation au laboratoire précédant l'exposition, deux individus sont morts.

## 4.3.2.2. Organo-halogénés

## AOX dans l'eau

La figure 34 montre l'évolution de la concentration en AOX dans l'eau au niveau des deux stations situées en aval des rejets de l'usine de pâte à papier. Pour chaque station trois échantillons par jour (1 échantillon moyen sur 8 heures) sont analysés. Une panne de batterie est intervenue à deux reprises sur le préleveur de la station Ecouviez à 6-7 et 10-11 jours d'exposition. La concentration moyenne en AOX dans l'eau au niveau des deux stations est de 295.9  $\pm$  70.5  $\mu$ g Cl/l (Ecouviez ) et 141.0  $\pm$  34.8  $\mu$ g Cl/l (Chiers). La concentration moyenne en AOX de la station Ton-amont est de 16.6  $\pm$  1.2  $\mu$ g Cl/l.

## AOX dans les sédiments

Contrairement aux résultats obtenus lors de la première expérience, les concentrations en AOX dans les sédiments au niveau des deux stations aval ne varient pas beaucoup au cours de la période d'expérience. La concentration moyenne au niveau de la station "Ton-amont" est de  $22.3 \pm 4.5 \,\mu g$  Cl/g PS, soit  $326.5 \pm 52.6 \,\mu g$  Cl/g MO. Au niveau des deux stations aval, "Ecouviez" et "Chiers", la concentration moyenne en AOX dans les sédiments et respectivement de  $68.5 \pm 8.6 \,\mu g$  Cl/g PS ( $1225.3 \pm 89.6 \,\mu g$  Cl/g MO) et de  $56.9 \pm 10.3 \,\mu g$  Cl/g PS ( $726.1 \pm 78.3 \,\mu g$  Cl/g MO).

## EOX dans les anodontes

Le tableau XX montre les caractéristiques (% de poids sec, % de lipides) et les concentrations en EOX dans les anodontes témoins et ceux exposés au niveau des trois stations au cours des 28 jours de l'expérience. Les valeurs indiquées sont des moyennes faites sur quatre individus d'un même lot, suivi de l'écart-type.

Les individus témoins présentent une concentration moyenne en EOX de 1.03  $\mu g$  Cl/g PF, soit 7.96  $\mu g$  Cl/g PS, soit 157.2  $\mu g$  Cl/g MG.

Seuls deux prélèvements, au bout de 14 et de 28 jours d'exposition ont été réalisés au niveau de la station Ton-amont. Selon le test Mann-Whitney, les concentrations en EOX observées chez ce individus ne sont pas significativement différentes (p<0.05, n=4) de celles observées chez les individus témoins.

Les figures 35 à 37 (a et b) montrent l'évolution des concentrations en EOX dans les anodontes exposés au niveau des deux stations aval, respectivement exprimée en fonction du poids frais, du poids sec et du poids de lipides. Les points "-" représentent la concentration en EOX dans chaque individu, les points "" représentent la concentration moyenne sur chaque lot de quatre individus exposés aux mêmes conditions.

Il apparaît que la concentration moyenne en EOX augmente globalement de manière linéaire au niveau des deux stations, et ce quelle que soit l'expression des résultats. Le calcul des droites de régression de la concentration en EOX ([EOX]) en fonction du temps (T), varie selon le mode d'expression et le milieu d'exposition :

- en fonction du poids frais :

à "Ecouviez": 
$$[EOX] = 0.07 \text{ x T} + 1.07$$
 avec  $R^2 = 0.96$  (1)

à "Chiers": 
$$[EOX] = 0.03 \text{ x T} + 1.32$$
 avec  $R^2 = 0.84$  (2)

- en fonction du poids sec :

à "Ecouviez": 
$$[EOX] = 0.84 \times T + 9.49$$
 avec  $R^2 = 0.98$  (3)

à "Chiers": 
$$[EOX] = 0.56 \text{ x T} + 10.21$$
 avec  $R^2 = 0.97$  (4)

- en fonction du poids de lipides :

à "Ecouviez": 
$$[EOX] = 12.76 \times T + 195.80$$
 avec  $R^2 = 0.98$  (5)

à "Chiers": 
$$[EOX] = 9.30 \times T + 197.00$$
 avec  $R^2=0.96$  (6)

Mis à part pour l'équation (2), les coefficients de corrélation calculés sont supérieurs à 0.95, montrant une bonne régression linéaire des concentrations moyennes en EOX en fonction du temps. La valeur de la pente est toujours supérieure au niveau de la station Ecouviez, montrant une accumulation plus importante à cette station.

## 4.3.3. Conclusions

Les concentrations en AOX dans l'eau au niveau des deux stations aval fluctuent fortement au cours du temps, pouvant doubler en moins de 24 heures. Ces variations sont essentiellement dues aux rejets propres à l'usine de pâte à papier, puisque les teneurs en amont ainsi que le débit sont stables au cours des 22 premiers jours de l'expérience (débit à Ecouviez :  $2.63 \pm 0.38 \, \text{m}^3/\text{s}$ ). Durant 3 jours ( $23^{\text{éme}}$  au  $26^{\text{éme}}$ ) de fortes précipitations au fait augmenter le débit (Ecouviez :  $7.05 \, \text{m}^3/\text{s}$ ) et ainsi diminuer la concentration en AOX dans l'eau.

Le suivi de la teneur en AOX dans les sédiments a montré une importante accumulation d'organo-halogénés depuis la reprise de l'activité de l'usine, atteignant 1461.5 µg Cl/g M.O. au mois d'octobre au niveau de la station Ecouviez (Cf. chapitre 3.1.). Les variations de la concentration au niveau des trois stations ne sont pas significativement différentes au cours des 28 jours de l'expérience. Il semblerait que cette concentration corresponde à un équilibre entre l'adsorption et le relarguage des AOX par les sédiments.

La faible mortalité d'anodontes observée ne peut pas être directement attribuée au rejets de l'usine puisque un nombre semblable d'individus, à savoir deux, est mort durant la phase de maintenance dans l'eau déchlorée au laboratoire.

La concentration en composés organo-halogénés extractibles, EOX, dans les anodontes exposés au effluents de l'usine de pâte à papier augmente linéairement en fonction du temps d'exposition. Contrairement au résultats obtenus lors de la première expérience, aucun plateau de concentration n'est atteint au bout de 28 jours d'exposition, il est donc difficile de comparer les différents résultats entre eux. Cependant, à la vue des concentrations en EOX observées au bout de 4 semaines, l'accumulation d'EOX par les anodontes semble être plus importante et plus rapide chez les individus exposés aux plus fortes concentrations en AOX dans l'eau. Le facteur de bioaccumulation, FB, est calculée comme

Lorsqu'on exprime les concentrations par rapport au poids de matière grasse au bout de 4 semaines d'exposition, le FB est de 3.4 et 2.9 respectivement au niveau de la station Ecouviez et de la station Chiers. Au bout de 28 jours, il ne semble pas y avoir de proportionnalité directe entre les teneurs en AOX dans l'eau et les teneurs en EOX dans les anodontes.

Cette deuxième expérience d'accumulation des EOX in situ permet de confirmer le pouvoir bioaccumulateur des anodontes vis-à-vis des composés organo-halogénés présents dans les effluents d'usine de pâte à papier blanchissant au chlore. Le dosage des EOX a été effectué non plus sur un pool de 5 individus, mais pour chaque animal séparément, ce qui a permis de mettre en évidence de fortes variations interindividuelles au niveau d'anodontes soumis aux mêmes conditions expérimentales.

#### 4.4. Discussion - conclusion

Les deux lots d'anodontes utilisés au cours des deux expériences d'accumulation présentent des concentrations de base en EOX différentes et ce quelque soit la manière dont on exprime les résultats. Selon Pellinen *et al.* (1994), la teneur naturelle en EOX exprimée en fonction du poids de matière grasse dans les anodontes en Finlande varie selon la saison, et elle est fonction du jour de l'année, selon l'équation [EOX] = 1.31 x Jour + 111. Cette équation ne s'applique pas aux résultats obtenus lors de nos études. En effet, les individus ramassés au mois de février montrent une concentration moyenne en EOX de 265.30 µg Cl/g MG, alors que ceux ramassés début octobre ont une teneur moyenne en EOX de 157.20 µg Cl/g MG. Plusieurs facteurs peuvent expliquer ces différences :

- les individus utilisés ont été échantillonnés au niveau de deux sites différents, présentant une concentration moyenne (sur 18 mois) en AOX dans l'eau de respectivement 31.9 et 19.3 μg Cl/l.
- les animaux ont été ramassés à deux périodes de l'année différentes, à savoir en mars et en octobre 1994 et les caractéristiques physiologiques des animaux, notamment leur teneur en matières grasses n'est pas la même.

La relative facilité (comparée aux poissons) de manipulation, de transfert et d'exposition des bivalves, et plus particulièrement des anodontes, fait qu'ils sont utilisés en Finlande comme bioindicateurs de résidus organo-chlorés (Herve *et al.*, 1988; Herve, 1991). Cependant, alors que de nombreux travaux montrent l'efficacité de ces bivalves

dans des expositions à long terme (Mäkelä *et al.*, 1992 ; Pellinen *et al.*, 1994), peu de travaux portent sur des cinétiques d'accumulation d'organo-halogénés.

Les résultats obtenus montrent que les anodontes accumulent rapidement les organo-halogénés lorsqu'ils se trouvent exposés à l'aval des rejets de pâte à papier. Selon Mäkelä et Oikari (1990), des anodontes exposés *in vitro* à des chlorophénols accumulent très rapidement ces derniers et atteignent un plateau de concentration en moins de 24 heures.

Les concentrations en EOX dans les anodontes augmentent linéairement en fonction du temps, avec une pente variant en fonction de la concentration en AOX dans le milieu. Après 28 jours d'exposition la concentration en EOX n'a pas atteint de plateau, ce qui rend difficile les comparaisons entre les stations et les deux expériences. Cependant, il semble que les teneurs en EOX ne soient pas directement proportionnelles aux concentrations en AOX dans l'eau. En effet, la concentration moyenne en AOX double quand on passe de la station "Chiers" à la station "Ecouviez", alors que la concentration en EOX dans les anodontes au bout de 28 jours n'augmente que d'un facteur 1.2.

De fortes variations interindividuelles de la concentration en EOX dans les anodontes lors de la deuxième expérience sont observées. Celles ci pourrait s'expliquer par les différences dans la condition physiologique, telles que le poids de lipides et/ou le poids sec, mais aussi par le sexe des individus. De plus, selon Pellinen et al. (1994), de fortes variations de teneurs en EOX sont observées chez des anodontes infectés par des parasites, notamment lorsqu'on exprime la concentration par rapport au poids frais et au poids sec. *Anodonta anatina* et *Pseudoanodonta elongata* sont tous deux des bivalves de la famille des unionidées, et la distinction entre les deux est difficile, pouvant entraîner une augmentation de la différence interindividuelle dans la teneur en EOX (Pellinen *et al.*, 1994).

#### 5. CONCLUSIONS - PERSPECTIVES

La détermination globale des composés organo-halogénés par la méthode dite des AOX assure une quantification quasi totale de cette famille de composés chimiques, aussi bien dans les eaux naturelles et les effluents industriels que dans les sédiments. De part sa nature, elle permet de palier les difficultés analytiques rencontrées d'une part, lors de l'identification de molécules organo-halogénées inconnues, et d'autre part, lorsque ces dernières sont présentes à l'état de trace.

La réalisation de profils longitudinaux de la concentration en AOX sur plusieurs cours d'eau du nord-est de la France a permis de confirmer le caractère ubiquiste de ces molécules. La mise en évidence de leur présence dans l'eau de la Meurthe et de la Moselle, en amont de toute activité anthropique tend à confirmer l'existence d'une

production naturelle de ces composés par les micro-organismes du sol et de l'eau. De plus, la contamination ponctuelle de certains rejets, tels que les effluents urbains et industriels, dont notamment ceux d'une usine de pâte à papier blanchissant au chlore, a pu être montrée.

L'analyse de l'eau présente l'avantage de donner directement des résultats sur l'état de contamination du cours d'eau considéré. Cependant, elle pose le problème de la représentativité de l'échantillonnage, suite à la grande variabilité spatiale et temporelle des concentrations comme l'a montré le suivi mensuel durant 18 mois au niveau des huit stations réparties sur le Ton, la Chiers et la Meuse.

La forte variation dans la nature du sédiment en fonction du temps et de l'espace fait que la comparaison des teneurs sur la base du poids sec de sédiment est difficile. L'estimation de la part de matière organique permet d'exprimer la concentration en AOX par rapport à celle-ci (µg Cl/g M.O.), et ainsi de mieux pouvoir comparer les différents résultats obtenus. L'étude des sédiments au niveau des huit stations de l'étude ainsi que lors des deux expériences *in situ*, a permis de montrer que ceux ci accumulent et relarguent les composés organo-halogénés présents dans l'eau. Le sédiment semble être un bon indicateur de la contamination des écosystèmes aquatiques par les organo-halogénés. Cependant, il ne permet pas de quantifier la fraction de micropolluant qui est biodisponible, et qui est celle susceptible d'avoir des conséquences écotoxicologiques.

La facilité de transfert, d'exposition et de manipulation des mollusques bivalves ont en partie déterminé le choix de ces animaux pour évaluer leur capacité bioaccumulatrice vis-à-vis des composés organo-halogénés. La grande quantité de matière fraîche nécessaire au dosage des composés organo-halogénés dans les organismes vivants fait que les études se sont plus particulièrement portées sur le bivalve *Anodonta antina*. Leur grande taille permet d'effectuer des dosages totaux d'organo-halogénés extractibles, EOX, sur chaque animal et ainsi de pouvoir tenir compte des différences inter-individuelles dans l'accumulation de ceux-ci. Les résultats obtenus lors de deux expériences *in situ* montrent que l'anodonte accumule les composés organo-halogénés présent dans les effluents d'une usine de pâte à papier blanchissant au chlore. Cependant, l'absence de plateau au bout de 28 jours d'exposition ne permet que de tirer des conclusions partielles sur la vitesse et la quantité d'organo-halogénés accumulantes.

Dans l'avenir il serait intéressant de refaire des expériences d'accumulation prolongées à différentes concentrations en AOX dans l'eau afin de pouvoir mettre en évidence un éventuel plateau dans la bioaccumulation des organo-halogénés. L'étude du pouvoir bioaccumulateur au niveau de différents organes, tels que le pied, les branchies, la glande digestive et les gonades permettrai d'étudier un éventuel organo-tropisme des EOX. Il serrait également intéressant d'étudier les possibilités de relarguage des EOX par des individus exposés à plus ou moins long terme aux effluents d'usine de pâte papier blanchie au chlore.

# REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Asplund G., Grimwall A. & Pettersson C., 1989. Naturally produced adsorbable organic halogens (AOX) in humic substances from soil and water. Sci. Tot. Environ., 81/82, p 239-248.

Asplund G. & Grimwall A., 1991. Organohalogens in nature - More widespread than previously assumed. Environ. Sci. Technol., 25 (8), p 1346-1350.

Asplund G., 1992. On the origin of organohalogens found in nature. Thèse, Linköking studies in Arts and Science. 50 pages + annexes.

DIN 38409-14, 1985. Bestimmung der adsorbierbaren, organisch gebundenen Halogene (AOX). Summarische Wirkungs- und Stoffkenngrössen (Gruppe H). 11 pages.

DIN 38414-18, 1989. Bestimmung von adsorbierten, organisch gebundenen Halogene (AOX). Schlamm und Sedimente (Gruppe S).

Duvivier L, 1993. Formation et élimination des organo-halogénés lors de la désinfection des eaux. Thèse de Dr. en Sciences, Univ. Catholique de Louvain.

Ennel M. & Wennberg L., 1991. Distribution of halogenated organic compounds (AOX) - Swedish transport to surrounding sea areas and mass balance studies in five drainage systems. Wat. Sci. Technol., 24, p 385-395.

Garric J., 1980. La chloration des réfrigèrants atmosphèriques - détermination du protocole optimal et toxicité des rejets. Thèse de Dr. Ecotoxicologie, Univ. de Metz.

Gribble G.W., 1994. The natural production of chlorinated compounds. Environ. Sci. Technol., 28 (7), p 310-319.

Goris K., 1989. Investigations des possibilités de diminuer les rejets d'organo-halogénés par l'adoption d'une technologie propre à l'usine de pâte à papier "La cellulose des Ardennes". Mémoire de DESE, Arlon.

Halonen I., Terhanen J., Oksanen J., Vilokki H., Vartiainen T. & Ruuskanen J., 1993. Formation of organic chlorinated compounds in incineration of pulp and paper mill biosludges. Chemosphere, 27 (7), p 1253-1268.

Herve S., 1991. Monitoring of organochlorine compounds in Finish inland waters polluted by pulp and paper effluents using the freshwater mussel incubation method. Wat. Sci. Tech., 24, p 397-402.

Herve S., Heinonen P., Paukku R., Knuutila M., Koistinen J. & Paasivirta J., 1988. Mussel incubation method for monitoring organochlorine polluants in watercourses. Fouryear application in Finland. Chemosphere 17, p 1945-1961.

Hoekstra E.J. & de Leer E.W.B., 1994. AOX levels in the river Rhine: fifty percent of natural origin?! Wat. Sci. Tech., 29 (3), p 133-136.

Hoffmann H.J., 1986. Untersuchungen der AOX-Gehalte in bayrischen Flüssen. Münch. Beitr. Abwasser-Fisch-Flussbiologie, 40, p 45-459.

Hoffmann H.J., Bühler-Neiens G. & Laschka D., 1988. AOX in Schlämmen und Sedimenten - Bestimmungsverfahren und Ergebnisse. Vom Wasser, 71, p 125-134.

ISO 9562, 1989. Qualité de l'eau - Dosage deshalogènes des composés organiques adsorbables, AOX. 8 pages.

Jokela J., Salkinoja-Salonen M.S. & Elomaa E., 1992. Adsorbable organic halogens (AOX) in drinking water and the aquatic environment in Finland. J. Water SRT-Aqua, 41, p 4-12.

Kankaanpää H. & Tissari J., 1994. Backroundlevels of EOX and AOX in sediments of the gulf of Finnland. Chemosphere, 28 (1), p 99-116.

Keller M., 1989. AOX-Belastung von Oberflächengewässern im Jahr 1987. Vom Wasser, 72, p 199-210.

Klopp R. & Kornatzki K.H., 1987. Emission und Immision von AOX im Ruhreinzugsgebiet. Z. Wasser-Abwasser-Forsch., 20, p 160-167.

Koistinen J., 1991. Alkyl polychlorobibenzyls and planar aromatic chlorocompounds in pulp mill products, effluents sludges and exposed biota. Chemosphere, 24, p 559-573.

Kühn W. & Sontheimer H., 1973. Einfluss chemischer Umsetzungen auf die Lage der Adsorptionsgleichgewichte an Aktifkohlen. Vom Wasser, 40, p 115-123.

Kühn W. & Sontheimer H., 1975. Einige Untersuchungen zur Bestimmung von organischen Chlorverbindungen auf Aktifkohlen. Vom Wasser, 41, 65-79.

Lunde A., Skramstad J. & Carlberg G.E., 1991. Identification, mutagenicity and origin of chlorinated thiophenes in kraft bleaching effluents. Paperi ja Puu - Paper and Timber, 73 (6).

Mäkelä T.P. & Oikari A.O.J., 1990. Uptake and body distribution of chlorinated phenolics in the freshwater mussel *Anodont anatina* L. Ecotox. Environ. Safety, 20, p 354-362.

Mäkelä T.P., Lindström-Seppä P. & Oikari A.O.J., 1992. Organochlorine residues and physiological condition of the freshwater mussel *Anodonta anatina* caged in river Pielinen, eastern Finnland, receiving pulp mill effluent. Aqua Fenica, 22 (1), p 49-58.

Manninen P.K.G. & Häsänen E., 1992. Total organochlorine and organobromine in Finnish water courses. Hydrobiologia, 243/244, p 475-479.

Martinsen K., Kringstad A. & Carlberg G.E., 1988. Methods for determination of sum parameters and characterization of organochlorine compounds in spent bleach liquors from pulp mills and water, sediment and biological samples from receaving waters. Wat. Sci. Tech., 20 (2), p 13-24.

NCASI, 1992. Naturally occurring organohalogen compounds - a survey. National Council of the paper industry for air and stream improvement. 64 pages.

Paasivirta J., Heinola K., Humppi T., Karjalainen A., Knuutinen J., Mäntykoski K., Paukku R., Piilola T., Surma-Aho K., Tarhanen J., Welling L., Vihonen H. & Särkkä J., 1985. Polychlorinated phenols, guiacols and catechols in environment. Chemosphere, 14 (5), p 469-491.

Paasivirta J., Tenhola H., Palm H. & Lammi R., 1992. Free and bound chlorophenols in kraft bleaching effluents. Chemosphere, 24, p 1253-1258.

Pellinen J., Ruokolainen M., Mäkelä P. & Taskinen J., 1994. Organic halogen compounds, EOX, in mussels from clean lake and pulp mill recipint. Chemosphere, 29 (7), p 1515-1526.

Quentin K.E., 1984. Chlorkohlenwasserstoffe in Gewässern erzwingen Problemlösungen. Korrespondenz Abwasser, 31 (6), p 477.

Rajan P.S., Chen C.L., Gratzl J.S. & Hise R.G., 1994. Formation of chloro-organics during chlorine bleaching of softwood kraft pulp. Holzforschung, 48, p 117-124.

Remberger M., Hynning P.A. & Neilson A.H., 1991. Chlorinated benzo-1,2-quinones: an example of chemical transformation of toxicants during tests with aquatic organisms. Ecotox. Environ. Safety, 22, p 320-336.

RIWA, 1992. Memorandum Meuse.

Rock J.J., 1974. Formation of halogens during chlorination of natural waters. Wat. Treat. Exam., 23, p 234-235.

Sinkkonen S., Paasivirta J., Koistinen J., Lahtiperä M. & Lammi R., 1992. Polychlorinated dibenzothiophenes in bleached pulp mill effluents. Chemosphere, 24 (12), p 1755-1763.

Sontheimer H. & Schnitzler M., 1982. EOX oder AOX ? Zur Anwendung von Anreicherungsverfahren bei der analytischen Bestimmung von chemischen Gruppenparametern. Vom Wasser, 59, p 169-179.

Stevens A.A., Dressman R.C., Sorell R.K. & Brass H.J., 1985. Organic halogen measurements: current uses and future prospects. J. American Water Works Association, 77, p 146-155.

Stuthridge T.R., 1993. Biological activity of chlorinated monoterpenes formed during kraft pulp bleaching of *Pinus radiata*. Arch. Environ. Contam. Toxicol., 24, p 113-119.

Van Loon W.M., Boon J.J., de Jong R.J. & de Groot B., 1993. Isolation of macromolecular chlorolignosulfonic acids and lignosulfonic acids from pulp mill effluents and the river Rhine using XAD-8 macroporous resin and ultrafiltration. Environ. Sci. Technol., 27 (2), p 332-343.

[EOX] $\mu$ g/g P.f.	0	4	7	11	14	18	21	25	28	
Individu 1	0,92	1,69	1,81	1,87	1,12	1,88	2,78	3,26	3,05	
Individu 2	0,99	1,07	2,04	2,06	1,71	2,56	2,53	2,53	3,98	
Individu 3	1,03	1,55	1,24	1,90	1,70	1,94	1,67	3,23	3,14	
Individu 4	1,17		1,91	2,86	2,51	2,26	3,42	3,15	3,14	
Moyenne	1,03	1,44	1,75	2,17	1,76	2,16	2,60	3,04	3,33	

[EOX] $\mu$ g/g P.f.	0	4	7	11	14	18	21	25	28	
Individu 1	0,92	1,77	1,71	1,84	2,34	2,46	2,71	2,65	2,12	
Individu 2	0,99	1,51	1,42	1,32	1,82	2,30	1,21	2,21	4,27	
Individu 3	1,03	1,77	1,97	1,63	2,00	2,29	1,66	1,90	1,55	
Individu 4	1,17	1,44	1,60	1,89	1,71	2,13	1,37	1,59	1,53	
Moyenne	1,03	1,62	1,68	1,67	1,96	2,30	1,74	2,09	2,37	

[EOX] µg/g P.s	. 0	4	7	11	14	18	21	25	28	
Individu 1	7,36	18,38	15,29	16,89	12,88	16,46	25,91	29,67	36,00	
Individu 2	8,59	13,11	18,69	19,01	21,40	28,18	29,65	27,90	39,17	
Individu 3	7,33	15,54	9,50	16,61	19,97	18,28	17,82	37,31	32,96	
Individu 4	8,58		17,04	23,19	26,60	30,08	38,55	25,99	26,29	
Moyenne	7,96	15,68	15,13	18,93	20,21	23,25	27,98	30,22	33,61	

[EOX] μg/g P.s.	. 0	4	7	11	14	18	21	25	28
Individu 1	7,36	16,47	20,22	16,39	14,95	27,76	33,86	31,71	21,71
Individu 2	8,59	13,17	15,65	15,79	18,59	17,83	11,37	23,73	54,66
Individu 3	7,33	16,47	11,06	14,90	15,67	22,61	16,33	24,21	15,78
Individu 4	8,58	10,88	15,13	17,79	20,42	18,43	22,08	16,76	12,34
Movenne	7 96	14 31	15 51	16 22	17 41	21.66	20.91	24 10	26.12

[EOX] µg/g Liţ	0	4	7	11	14	18	
Individu 1	202,41	319,95	322,79	226,95	320,25	381,45	
Individu 2	145,09	274,39	347,05	400,75	389,50	386,70	
Individu 3	153,36	270,24	236,74	283,78	368,62	362,74	
Individu 4	127,96		258,62	385,99	482,60	543,69	
Moyenne	157,20	288,19	291,30	324,37	390,24	418,64	

[EOX] µg/g Liţ	0	4	7	11	14	18
Individu 1	202,41	261,23	378,35	318,64	357,24	456,01
Individu 2	145,09	239,09	223,17	280,53	291,33	255,07
Individu 3	153,36	294,65	270,81	315,60	371,38	344,27
Individu 4	127,96	166,21	364,49	340,46	278,57	321,33
Moyenne	157,20	240,30	309,21	313,81	326,88	344,17

21	25	28
438,62	510,30	693,70
518,19	529,06	572,73
366,97	630,69	436,25
520,15	431,38	455,90
460,98	525,36	539,64

21	25	28
609,98	546,84	509,13
323,98	488,24	613,19
299,14	408,63	405,67
301,51	285,82	298,43
383,52	432,38	456,61

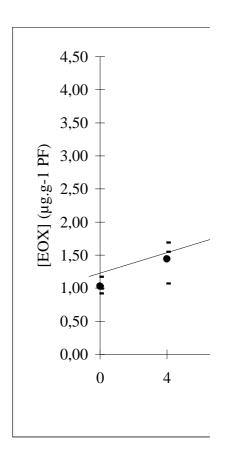


Figure 35a: EOX dans les

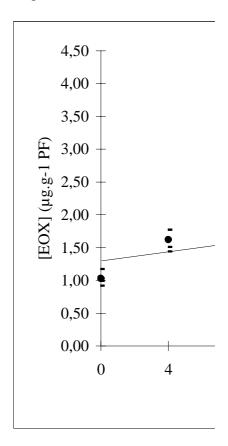
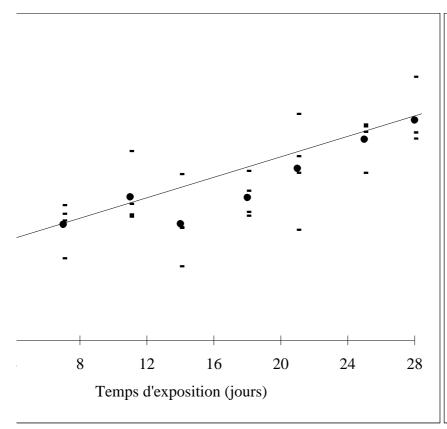
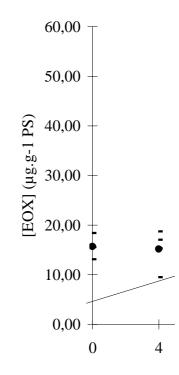


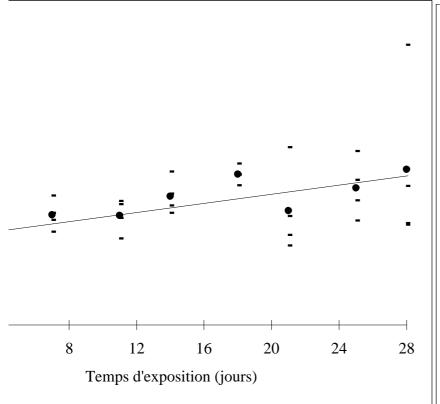
Figure 35b : EOX dans les

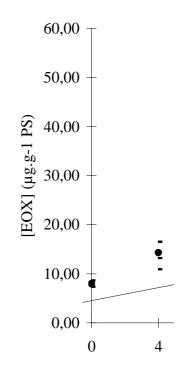




s anodontes exposés à "Ecouviez".

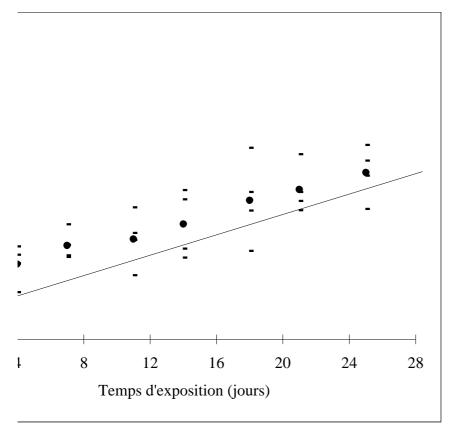
Figure 36a: EOX dans les

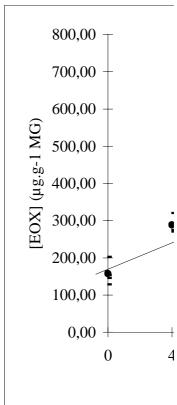




s anodontes exposés à "Chiers".

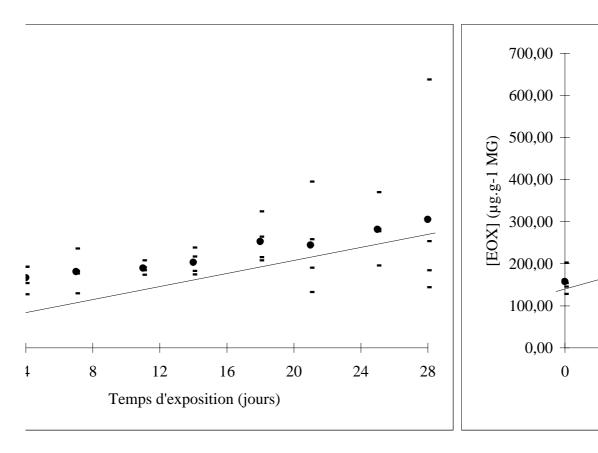
Figure 36b : EOX dans les





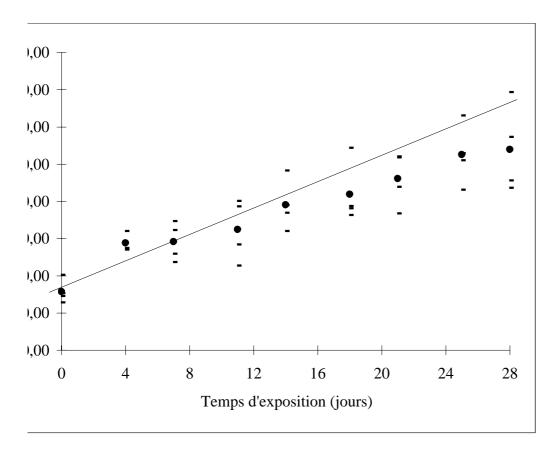
s anodontes exposés à "Ecouviez".

Figure 37a: EOX dans les

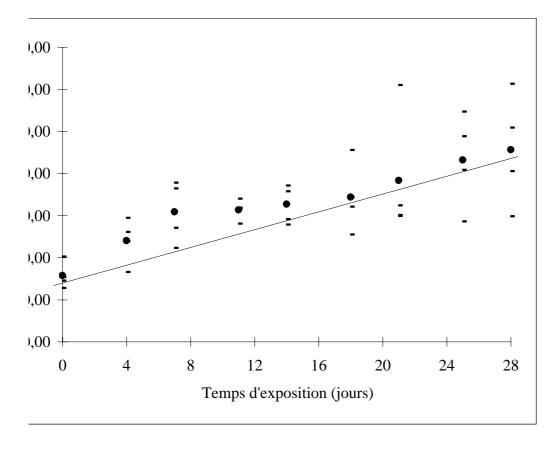


s anodontes exposés à "Chiers".

Figure 37b : EOX dans les



s anodontes exposés à "Ecouviez".



s anodontes exposés à "Chiers".

Tableau III : Etalonnage du microcoulomètre avec une solution HCl 0.1M.

V HCl	c(HCl)	c(Cl)	F	Qt	F obs
μl		(c(HCl)*35.5/36.5)	96487	(V*c(Cl)*F)	
1	0,1	0,097260274	96487	9,38435205	9,31E-08
2	0,1	0,097260274	96487	18,7687041	1,96E-07
3	0,1	0,097260274	96487	28,1530562	2,92E-07
4	0,1	0,097260274	96487	37,5374082	3,85E-07
5	0,1	0,097260274	96487	46,9217603	4,82E-07
6	0,1	0,097260274	96487	56,3061123	5,79E-07
7	0,1	0,097260274	96487	65,6904644	6,75E-07
8	0,1	0,097260274	96487	75,0748164	7,65E-07
9	0,1	0,097260274	96487	84,4591685	8,66E-07
10	0,1	0,097260274	96487	93,8435205	9,68E-07

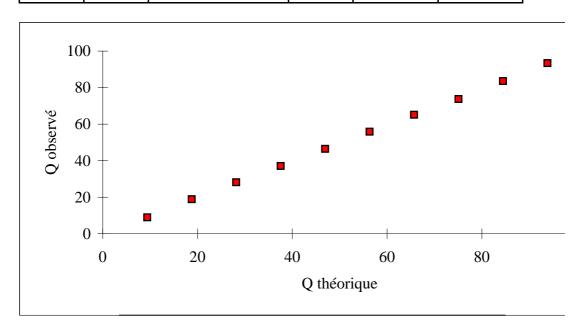


Figure 1 : Droite d'étalonnage du microcoulomètre.

Qobs
(Fobs\*F)
8,9829397
18,911452
28,2031501
37,1089002
46,4970853
55,8949191
65,1673198
73,7739602
83,5963368
93,4380108

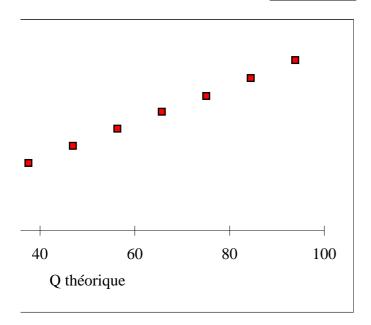


Tableau VI: Concentrations en AOX dans l'eau au niveau des huits stations de l'étude.

[AOX]	Ton amont	Ecouviez	Charency	Carignan	Bras/Meuse	Nouzonville
May-93		447,1	16,6	76,4	27,4	34,6
Jun-93		479,6	25,4	132,7	28,7	58,8
Jul-93	20,9	40,6	28,7	36,1	28,7	52,1
Aug-93	30,8	44,7	23,3	43,1	34,4	36,5
Sep-93	24,9	35,2	28,2	39,9	19,2	38,4
Oct-93	28,5	31,2	17,0	54,2	16,7	21,7
Nov-93	21,0	36,9	26,5	47,6	23,8	50,8
Dec-93	11,2	11,0	12,6	33,2	9,0	24,7
Jan-94	9,6	11,9	12,3	12,6	10,8	16,0
Feb-94	8,3	12,8	9,9	8,6	11,4	8,8
Mar-94	14,6	802,2	25,5	83,5	19,1	24,7
Apr-94	6,4	158,5	12,7	36,2	23,6	19,8
May-94	9,7	152,0	12,6	69,6	10,6	28,2
Jun-94	9,3	201,4	16,5	44,1	15,7	16,5
Jul-94	10,9	291,0	15,7	64,1	16,6	21,3
Aug-94	10,6	310,6	12,7	88,7	17,8	23,2
Sep-94	12,9	268,2	13,6	78,4	14,1	21,2
Oct-94	11,0	287,6	16,9	75,8	18,1	23,0
Nov-94	12,3	325,0	17,6	102,5	21,8	38,0
Moyenne	14,9	207,8	18,1	59,3	19,3	29,4
Ecart type	7,4	209,7	6,1	31,0	7,0	13,4
Minimum	6,4	11,0	9,9	8,6	9,0	8,8
Maximum	30,8	802,2	28,7	132,7	34,4	58,8

MAI	Conc.1	Conc.2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.
1993	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%
Bras/Meuse	27,80	26,89	27,51	27,40	0,46	1,70
Nouzonville	34,46	34,71	34,62	34,60	0,13	0,37
Ham/Meuse	28,47	28,54	28,95	28,65	0,26	0,90
Givet	28,04	30,56	30,21	29,60	1,37	4,61
Charency	17,51	15,85	16,52	16,63	0,84	5,02

Carignan Ecouviez	75,41 460,39	76,90 421,46	76,85 459,36	76,39 447,07	0,85 22,18	1,11 4,96	
JUIN	Conc.1	Conc.2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.	
1993	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Čl/l	type	%	
Bras/Meuse	31,02	25,49	29,65	28,72	2,88	10,03	
Nouzonville	59,14	58,65	58,49	58,76	0,34	0,58	
Ham/Meuse	55,73	44,46	46,19	48,79	6,07	12,44	
Givet	47,22	46,23	45,98	46,48	0,66	1,41	
Charency	26,94	23,51	25,68	25,38	1,74	6,84	
Carignan	136,42	127,67	134,11	132,73	4,53	3,42	
Ecouviez	487,20	496,87	454,76	479,61	22,06	4,60	
	Cana 4	00	0		□ a a mt	0.1/	
JUILLET	Conc.1	Conc.2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.	
<b>1993</b> Bras/Meuse	µg Cl/l	μg Cl/l	µg Cl/l	μg Cl/l	type	%	
Nouzonville	28,65 50,53	28,41 52,32	28,95 53,44	28,67 52,10	0,27	0,94 2,82	
Ham/Meuse	32,26	33,25	33,87	33,13	1,47 0,81	2,45	
Givet	66,69	65,22	63,18	65,03	1,76	2,43	
Charency	28,22	27,95	30,01	28,73	1,70	3,90	
Carignan	36,50	35,85	36,08	36,14	0,33	0,91	
Ecouviez	44,39	38,82	38,65	40,62	3,27	8,04	
Ton amont	21,59	20,24	20,96	20,93	0,68	3,23	
AOUT	Conc.1	Conc.2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.	
1993	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Ćl/l	type	%	
Bras/Meuse	34,54	35,56	33,22	34,44	1,17	3,41	
Nouzonville	36,10	36,56	36,75	36,47	0,33	0,92	
Ham/Meuse	36,44	46,44	42,21	41,70	5,02	12,04	
Givet	44,10	45,62	45,54	45,09	0,86	1,90	
Charency	25,56	21,20	23,22	23,33	2,18	9,35	
Carignan	44,88	42,20	42,33	43,14	1,51	3,50	
Ecouviez	47,84	42,51	43,87	44,74	2,77	6,19	
Ton amont	34,20	29,40	28,65	30,75	3,01	9,79	
SEPTEMBRE	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.		
1993,00	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%		
Bras/Meuse	18,22	20,10	19,16	1,33	6,94		
Nouzonville	38,54	38,24	38,39	0,21	0,55		
Ham/Meuse	36,15	35,21	35,68	0,66	1,86		
Givet	40,57	42,31	41,44	1,23	2,97		
Charency	28,53	27,87	28,20	0,47	1,65		
Carignan	41,20	38,54	39,87	1,88	4,72		
Ecouviez	33,54	36,77	35,16	2,28	6,50		
Ton amont	25,65	24,12	24,89	1,08	4,35		

Ham/Meuse	Givet
28,7	29,6
48,8	46,5
33,1	65,0
41,7	45,1
35,7	41,4
24,7	44,2
102,2	110,3
16,1	16,7
17,9	17,5
6,4	8,5
33,5	27,5
21,0	18,4
17,1	19,5
14,5	20,3
19,9	26,7
19,8	24,4
32,6	38,5
27,0	31,7
64,6	66,7
31,9	36,8
21,8	23,9
6,4	8,5
102,2	110,3

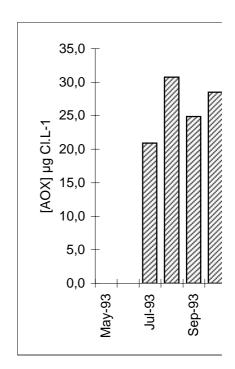


Figure 3: Evolution de la conc

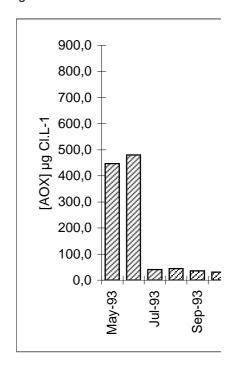
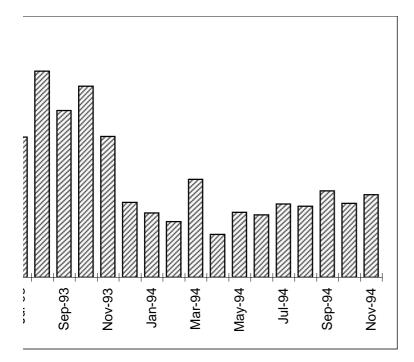


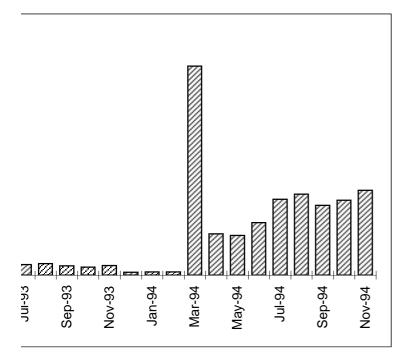
Figure 4 : Evolution de la con

OCTOBRE 1993	Conc.1 µg Cl/l	Conc.2 µg Cl/l	moy. μg Cl/l	Ecart type	C.V. %
Bras/Meuse	16,31	17,05	16,68	0,52	3,14
Nouzonville	21,09	22,31	21,70	0,86	3,98
Ham/Meuse	24,92	24,56	24,74	0,25	1,03
Givet	43,96	44,35	44,16	0,28	0,62
Charency	16,38	17,65	17,02	0,90	5,28

Carignan	54,81	53,66	54,24	0,81	1,50	
Ecouviez	32,20	30,20	31,20	1,41	4,53	
Ton amont	28,65	28,41	28,53	0,17	0,59	
		,	,	-,	2,22	
NOVEMBRE	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.	
1993	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Čl/l	type	%	
Bras/Meuse	23,08	24,51	23,80	1,01	4,25	
Nouzonville	48,45	53,21	50,83	3,37	6,62	
Ham/Meuse	106,23	98,24	102,24	5,65	5,53	
Givet	112,30	108,35	110,33	2,79	2,53	
Charency	25,81	27,21	26,51	0,99	3,73	
Carignan	46,98	48,25	47,62	0,90	1,89	
Ecouviez	37,62	36,11	36,87	1,07	2,90	
Ton amont	20,14	21,84	20,99	1,20208153	5,72692486	
TOH amont	20,14	21,04	20,99	1,20206133	5,72092400	
DECEMBRE	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.	
1993	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%	
Bras/Meuse	8,96	9,12	9,04	0,11	1,25	
Nouzonville	25,67	23,65	24,66	1,43	5,79	
Ham/Meuse	15,65	16,54	16,10	0,63	3,91	
Givet	16,90	16,55	16,73	0,25	1,48	
Charency	12,89	12,24	12,57	0,46	3,66	
Carignan	32,69	33,62	33,16	0,66	1,98	
Ecouviez	10,43	11,59	11,01	0,82	7,45	
Ton amont	11,39	10,98	11,19	0,29	2,59	
	,	,	•	•	•	
JANVIER	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.	
1994	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%	
Bras/Meuse	11,63	9,98	10,81	1,17	10,80	
Nouzonville	15,78	16,21	16,00	0,30	1,90	
Ham/Meuse	18,01	17,85	17,93	0,11	0,63	
Givet	17,65	17,42	17,54	0,16	0,93	
Charency	12,06	12,54	12,30	0,34	2,76	
Carignan	12,49	12,65	12,57	0,11	0,90	
Ecouviez	11,94	11,78	11,86	0,11	0,95	
Ton amont	9,28	9,89	9,59	0,43	4,50	
	,	•	•	•	•	
FEVRIER	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.	
1994,00	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%	
Bras/Meuse	11,37	11,32	11,35	0,04	0,31	
Nouzonville	8,94	8,61	8,78	0,23	2,66	
Ham/Meuse	5,92	6,78	6,35	0,61	9,58	
Givet	8,52	8,39	8,46	0,09	1,09	
Charency	9,83	9,90	9,87	0,05	0,50	
Carignan	8,41	8,72	8,57	0,22	2,56	
Ecouviez	12,63	12,88	12,76	0,18	1,39	
Ton amont	9,09	7,49	8,29	1,13	13,65	



centration en AOX dans l'eau à "Ton-amont".



icentration en AOX dans l'eau à "Ecouviez".

**MARS** 

1994

Bras/Meuse

Nouzonville

Ham/Meuse

Givet

Charency

Conc.1

μg Cl/l

18,90

25,21

32,85

26,08

26,47

Conc.2

μg Cl/l

19,21

24,10

34,12

28,91

24,52

moy.

μg Cl/l

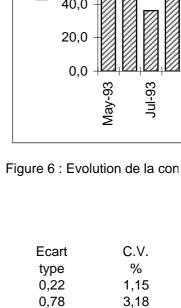
19,06

24,66

33,49

27,50

25,50



0,90

2,00

1,38

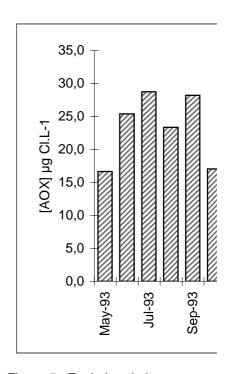
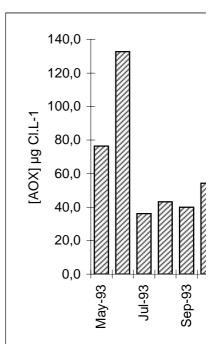


Figure 5 : Evolution de la con-

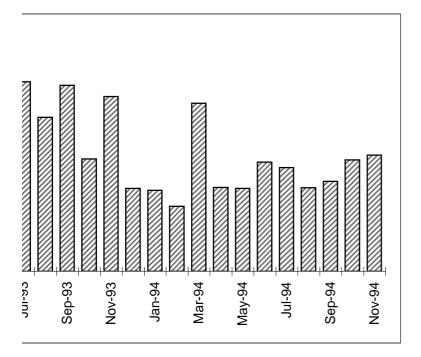


2,68

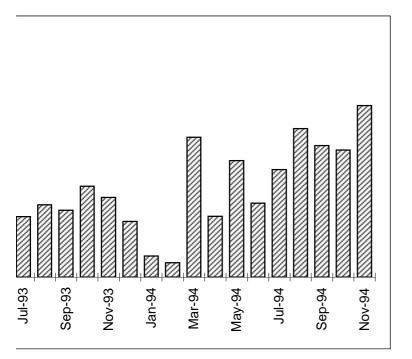
7,28

5,41

Carignan Ecouviez	85,67 783,99	81,25 820,47	83,46 802,23	3,13 25,80	3,74 3,22
Ton amont	14,14	15,04	14,59	0,64	4,36
AVRIL	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%
Bras/Meuse	24,69	22,59	23,64	1,48	6,28
Nouzonville	19,41	20,15	19,78	0,52	2,65
Ham/Meuse	21,71	20,36	21,04	0,95	4,54
Givet	17,38	19,48	18,43	1,48	8,06
Charency	12,14	13,32	12,73	0,83	6,55
Carignan	37,49	34,98	36,24	1,77	4,90
Ecouviez	156,50	160,50	158,50	2,83	1,78
Ton amont	6,06	6,74	6,4	0,48083261	7,51300955
MAI	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%
Bras/Meuse	9,84	11,38	10,61	1,09	10,26
Nouzonville	26,54	29,80	28,17	2,31	8,18
Ham/Meuse	16,44	17,82	17,13	0,98	5,70
Givet	19,30	19,62	19,46	0,23	1,16
Charency	11,54	13,62	12,58	1,47	11,69
Carignan	72,16	67,04	69,60	3,62	5,20
Ecouviez	148,99	155,00	152,00	4,25	2,80
Ton amont	9,59	9,82	9,71	0,16	1,68
JUIN	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%
Bras/Meuse	15,74	15,68	15,71	0,04	0,27
Nouzonville	17,88	15,18	16,53	1,91	11,55
Ham/Meuse	14,72	14,32	14,52	0,28	1,95
Givet	20,56	20,03	20,30	0,37	1,85
Charency	16,10	16,98	16,54	0,62	3,76
Carignan	43,65	44,56	44,11	0,64	1,46
Ecouviez	205,84	196,98	201,41	6,26	3,11
Ton amont	9,89	8,72	9,31	0,83	8,89
JUILLET	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.
1994,00	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%
Bras/Meuse	16,32	16,87	16,60	0,39	2,34
Nouzonville	20,39	22,17	21,28	1,26	5,91
Ham/Meuse	19,12	20,02	19,57	0,64	3,25
Givet	26,31	27,09	26,70	0,55	2,07
Charency	15,93	15,51	15,72	0,30	1,89
Carignan	63,12	65,13	64,13	1,42	2,22
Ecouviez	289,71	292,37	291,04	1,88	0,65
Ton amont	10,12	11,75	10,94	1,15	10,54



centration en AOX dans l'eau à "Charency".



ncentration en AOX dans l'eau à "Tétaigne".

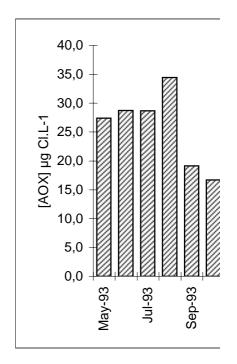


Figure 7: Evolution de la conce

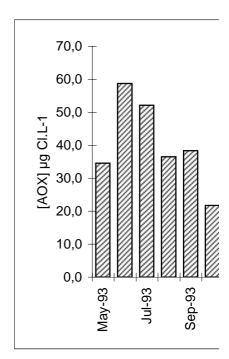
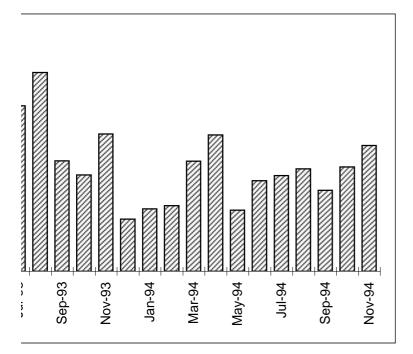


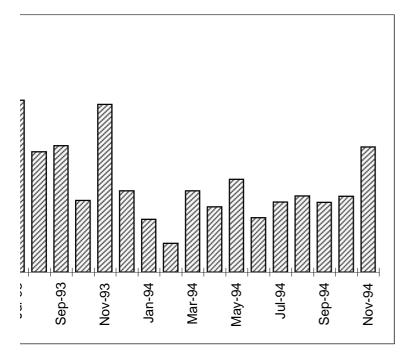
Figure 8 : Evolution de la conc

AOUT 1994	Conc.1 µg Cl/l	Conc.2 µg Cl/l	moy. μg Cl/l	Ecart type	C.V. %
Bras/Meuse	17,25	18,30	17,78	0,74	4,18
Nouzonville	23,51	22,79	23,15	0,51	2,20
Ham/Meuse	19,89	19,71	19,80	0,13	0,64
Givet	24,71	23,99	24,35	0,51	2,09
Charency	12,31	13,03	12,67	0,51	4,02

Carignan	89,61	87,71	88,66	1,34	1,52	
Ecouviez	312,11	309,07	310,59	2,15	0,69	
Ton amont	10,21	11,02	10,62	0,57	5,40	
SEPTEMBRE	Conc.1	Conc.2	moy.	Ecart	C.V.	
1994	µg Cl/l	µg Cl/l	μg Cl/l	type	%	
Bras/Meuse	13,87	14,25	14,06	0,27	1,91	
Nouzonville	21,46	20,96	21,21	0,35	1,67	
Ham/Meuse	31,57	33,61	32,59	1,44	4,43	
Givet	39,62	37,30	38,46	1,64	4,27	
Charency	13,59	13,66	13,63	0,05	0,36	
Carignan	77,31	79,56	78,44	1,59	2,03	
Ecouviez	270,91	265,39	268,15	3,90	1,46	
Ton amont  OCTOBRE	13,01 Conc.1	12,76 Conc.2	12,885 moy.	0,1767767 Ecart	1,37195728 C.V.	
<b>1994</b>	μg Cl/l	μg Cl/l	µg Cl/l	type	%	
Bras/Meuse	17,81	18,37	18,09	0,40	2,19	
Nouzonville	23,09	22,87	22,98	0,16	0,68	
Ham/Meuse	27,11	26,82	26,97	0,21	0,76	
Givet	30,61	32,79	31,70	1,54	4,86	
Charency	17,21	16,59	16,90	0,44	2,59	
Carignan	78,11	73,39	75,75	3,34	4,41	
Ecouviez	287,21	287,99	287,60	0,55	0,19	
Ton amont  NOVEMBRE	10,77 Conc.1	11,31 Conc.2	11,04 moy.	0,38 Ecart	3,46 C.V.	
<b>1994</b>	μg Cl/l	μg Cl/l	μg Cl/l	type	%	
Bras/Meuse	20,71	22,89	21,80	1,54	7,07	
Nouzonville	39,71	36,21	37,96	2,47	6,52	
Ham/Meuse	65,37	63,87	64,62	1,06	1,64	
Givet	68,21	65,27	66,74	2,08	3,11	
Charency	17,31	17,88	17,60	0,40	2,29	
Carignan Ecouviez Ton amont	101,07 321,00 12,39	103,83 329,02 11,87	102,45 325,01 12,13	1,95 5,67 0,37	1,90 1,74 3,03	
		•	•	•	•	



entration en AOX dans l'eau à "Bras/Meuse".



entration en AOX dans l'eau à "Nouzonville".

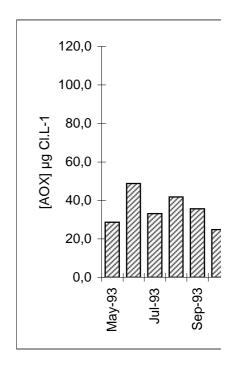


Figure 9 : Evolution de la conce

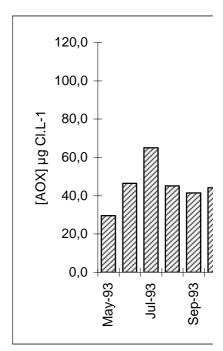
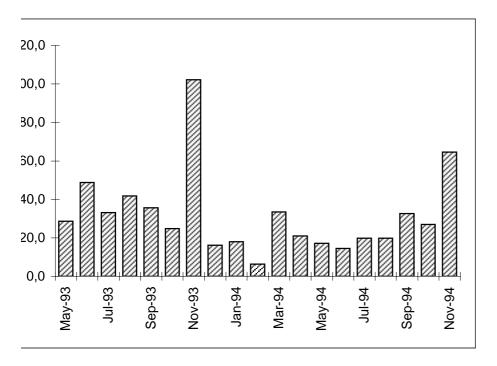
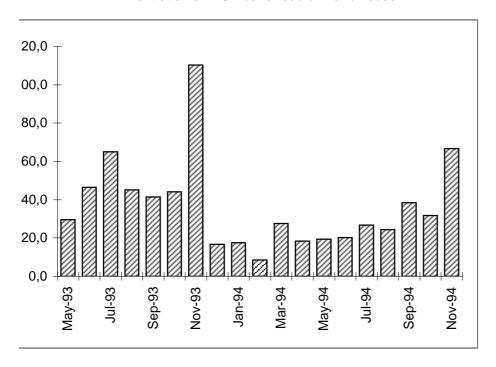


Figure 10 : Evolution de la c



entration en AOX dans l'eau à "Ham/Meuse".



concentration en AOX dans l'eau à "Givet".

ans les sédiments exprimées par rapport au poids sec

	_				•	•
[AOX]	Ton amont	Ton amont	Ecouviez	Ecouviez	Charency	Charency
	μg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.	μg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.	μg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.
Apr-93	n.d.	n.d.	59,6	3428,5	51,4	479,5
May-93	n.d.	n.d.	68,0	3184,8	33,5	312,9
Jun-93	n.d.	n.d.	45,6	3482,9	27,8	453,1
Jul-93	n.d.	n.d.	53,8	1053,1	14,7	714,3
Aug-93	16,6	281,2	39,0	1170,5	30,5	286,5
Sep-93	38,2	419,8	50,6	690,1	35,6	399,8
Jan-94	11,7	347,3	10,9	316,9	47,0	461,7
Feb-94	13,7	348,1	32,2	599,0	38,7	401,8
Mar-94	13,9	258,3	15,9	727,7	71,9	474,9
Apr-94	15,0	376,2	27,0	685,5	47,7	374,5
May-94	13,3	405,7	56,8	590,9	54,0	418,7
Jun-94	13,0	244,2	66,5	976,5	49,0	473,3
Jul-94	14,9	262,3	63,9	1025,8	43,8	388,9
Aug-94	13,1	202,4	71,4	1257,3	39,5	353,4
Sep-94	16,9	215,6	65,0	1337,2	44,0	371,8
Oct-94	15,9	228,1	72,5	1461,5	38,5	367,2
Nov-94	13,2	222,9	67,6	1221,5	42,5	349,3

AVRIL	Conc. 1	Conc. 2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.
1993	µg/g	µg/g	µg/g	µg/g	type	%
Bras/Meuse	38,76	33,05	35,60	35,80	2,86	7,99
Nouzonville	41,03	34,11	39,50	38,21	3,64	9,51
Ham/Meuse	35,95	41,41	36,80	38,05	2,94	7,72
Givet	33,66	30,90	31,68	32,08	1,42	4,44
Charency	51,52	51,78	50,98	51,43	0,41	0,79
Carignan	56,43	58,05	56,90	57,13	0,83	1,46
Ecouviez	66,03	54,50	58,23	59,59	5,88	9,87
MAI	Conc. 1	Conc. 2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.
1993	µg/g	µg/g	µg/g	µg/g	type	%
Bras/Meuse	18,35	20,68	17,99	19,01	1,46	7,67
Nouzonville	21,74	18,63	18,23	19,53	1,92	9,82
Ham/Meuse	26,41	20,18	22,30	22,96	3,17	13,78
Givet	60,97	51,17	58,60	56,91	5,12	8,99
Charency	37,15	29,53	33,86	33,51	3,82	11,40
Carignan	34,37	45,80	38,40	39,52	5,80	14,67
Ecouviez	66,92	69,07	67,90	67,96	1,08	1,59
JUIN	Conc. 1	Conc. 2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.
1993	µg/g	µg/g	µg/g	µg/g	type	%
Bras/Meuse	24,09	22,69	22,52	23,10	0,86	3,72
Nouzonville	16,66	11,94	13,25	13,95	2,44	17,49
Ham/Meuse	16,21	16,06	16,09	16,12	0,08	0,49
Givet	17,29	18,29	18,15	17,91	0,54	3,01
Charency	24,06	32,86	26,40	27,77	4,56	16,41
Carignan	73,12	71,26	72,09	72,16	0,93	1,29

Ecouviez	50,78	36,54	49,56	45,63	7,89	17,30
JUILLET	Conc. 1	Conc. 2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.
1993	μg/g	μg/g	μg/g	μg/g	type	%
Bras/Meuse	25,34	30,28	29,50	28,37	2,66	9,36
Nouzonville	29,33	31,55	31,22	30,70	1,20	3,91
Ham/Meuse	20,11	17,14	19,54	18,93	1,58	8,33
Givet	42,67	13,31	42,36	32,78	16,86	51,43
Charency	14,99	14,14	15,02	14,72	0,50	3,39
Carignan	86,65	84,29	85,69	85,54	1,18	1,39
Ecouviez	58,36	47,78	55,30	53,81	5,44	10,12
AOUT	Conc. 1	Conc. 2	Conc.3	moy.	Ecart	C.V.
1993	μg/g	μg/g	μg/g	μg/g	type	%
Bras/Meuse	21,22	21,23	19,95	20,80	0,74	3,54
Nouzonville	10,70	20,75	20,98	17,48	5,87	33,58
Ham/Meuse	15,65	14,96	15,85	15,49	0,47	3,02
Givet	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
Charency	50,47	18,58	22,30	30,45	17,44	57,26
Carignan	38,95	35,47	36,85	37,09	1,75	4,72
Ecouviez	41,76	36,64	38,54	38,98	2,59	6,64
Ton amont	15,57	18,60	15,68	16,62	1,72	10,34
SEPTEMBRE	Conc. 1	Conc. 2	moy.	Ecart	C.V.	m.o.
1993	μg/g	μg/g	μg/g	type	%	mg/g
Bras/Meuse	38,87	36,46	37,67	1,70	4,52	103,7
Nouzonville	21,79	25,99	23,89	2,97	12,45	67
Ham/Meuse	41,60	38,62	40,11	2,11	5,26	66,8
Givet	34,62	29,84	32,23	3,38	10,49	45,7
Charency	36,28	34,89	35,58	0,98	2,76	89
Carignan	59,45	62,11	60,78	1,88	3,10	86,4
Ecouviez	49,60	51,58	50,59	1,40	2,77	73,3
Ton amont	38,74	37,76	38,25	0,69	1,82	91,1

Tétaigne	Tétaigne	Bras/Meuse	Bras/Meuse	Nouzonville	Nouzonville	
µg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.	μg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.	μg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.	
57,1	968,2	35,8	330,5	38,2	675,9	
39,5	527,4	19,0	150,6	19,5	392,3	
72,2	1398,4	23,1	180,3	13,9	344,4	
85,5	833,0	28,4	197,7	30,7	1077,2	
37,1	421,9	20,8	116,4	17,5	662,0	
60,8	703,4	37,7	363,2	23,9	356,6	
31,9	649,3	n.d.	n.d.	29,7	705,5	
44,2	468,0	n.d.	n.d.	21,2	329,4	
44,4	452,0	n.d.	n.d.	33,0	369,9	
39,1	433,6	30,1	309,5	16,2	565,9	
45,0	529,7	n.d.	n.d.	18,4	464,4	
45,0	502,7	28,6	241,2	32,7	609,4	
65,9	670,2	23,6	187,9	48,6	618,7	
59,7	697,9	27,9	285,8	52,9	877,5	
57,0	775,5	34,3	288,8	29,0	795,6	
49,0	559,9	27,5	266,3	38,1	775,6	
52,6	514,5	32,0	252,2	55,8	951,8	

m.o.	AOX	JANVIER	Conc. 1	Conc. 2	
mg/g	μg/g m.o	1994	μg/g	μg/g	
108,33	330,50	Bras/Meuse	n.d.	n.d.	
56,54	675,86	Nouzonville	27,89	31,51	
83,68	454,75	Ham/Meuse	28,22	26,50	
52,64	609,42	Givet	31,62	31,36	
107,25	479,50	Charency	45,27	48,71	
59	968,25	Carignan	31,11	32,60	
17,38	3428,46	Ecouviez	10,63	11,25	
		Ton amont	11,68	11,74	
m.o.	AOX				
mg/g	μg/g m.o	FEVRIER	Conc. 1	Conc. 2	
126,18	150,63	1994	μg/g	μg/g	
49,79	392,32	Bras/Meuse	n.d.	n.d.	
79,55	288,68	Nouzonville	20,27	22,10	
145,49	391,18	Ham/Meuse	41,86	43,65	
107,09	312,92	Givet	17,79	16,98	
74,94	527,36	Charency	39,86	37,54	
21,34	3184,81	Carignan	43,75	44,60	
		Ecouviez	30,80	33,65	
m.o.	AOX	Ton amont	14,15	13,28	
mg/g	μg/g m.o				
128,1	180,33	MARS	Conc. 1	Conc. 2	
40,5	344,43	1994	μg/g	μg/g	
55,1	292,58	Bras/Meuse	n.d	n.d.	
48,3	370,81	Nouzonville	32,37	33,65	
61,3	453,05	Ham/Meuse	67,49	65,21	
51,6	1398,43	Givet	58,88	56,62	

13,1	3482,87	Charency Carignan	73,45 42,21	70,32 46,58
m.o.	AOX	Ecouviez	15,16	16,54
mg/g	μg/g m.o	Ton amont	13,79	14,06
143,5	197,71	ron amont	10,70	14,00
28,5	1077,16	AVRIL	Conc. 1	Conc. 2
55,7	339,86	1994	μg/g	μg/g
38,1	860,41	Bras/Meuse	29,56	30,60
20,6	714,32	Nouzonville	16,50	15,98
102,7	832,95	Ham/Meuse	33,76	34,11
51,1	1053,12	Givet	47,23	48,20
31,1	1033,12	Charency	46,47	48,20
m.o.	AOX	Carignan	39,62	38,50
mg/g	μg/g m.o	Ecouviez	27,44	26,59
1119/9 178,7	μg/g m.σ 116,40	Ton amont	14,19	20,39 15,90
-	662,01	ron amont	14,19	15,90
26,4 65,8	•	MAI	Conc. 1	Conc. 2
05,6 n.d.	235,38 n.d.	1994		
11.a. 106,3		Bras/Meuse	µg/g	μg/g
-	286,48	Nouzonville	n.d.	n.d.
87,9	421,95		17,27	19,50
33,3	1170,53	Ham/Meuse	19,93	21,36
59,1	281,16	Givet	24,89	22,65
A 0 V		Charency	54,85	53,21
AOX		Carignan	44,36	45,60
μg/g m.o		Ecouviez	57,84	55,69
363,23		Ton amont	12,58	14,02
356,55				
600,40				
705,34		JUIN	Conc. 1	Conc. 2
399,81		1994	μg/g	μg/g
703,43		Bras/Meuse	27,85	29,31
690,12		Nouzonville	33,17	32,16
419,83		Ham/Meuse	18,72	17,99
		Givet	25,39	27,11
		Charency	49,67	48,39
		Carignan	44,66	45,32
		Ecouviez	66,13	66,87
		Ton amont	13,18	12,90

Ham/Meuse	Ham/Meuse	Givet	Givet
μg.g-1 p.s.	μg.g-1 m.o.	µg.g-1 p.s	μg.g-1 m.o.
38,1	454,7	32,1	609,4
23,0	288,7	56,9	391,2
16,1	292,6	17,9	370,8
18,9	339,9	32,8	860,4
15,5	235,4		
40,1	600,4	32,2	705,3
27,4	230,9	31,5	503,1
42,8	548,9	17,4	326,4
66,4	551,6	57,8	515,3
33,9	401,1	47,7	530,3
20,6	444,9	23,8	409,2
18,4	236,8	26,3	428,9
21,8	315,6	29,6	434,5
24,8	282,5	37,8	638,6
38,7	459,4	38,8	683,9
27,5	272,5	27,3	574,3
28,8	321,7	37,3	682,5

moy. μg/g n.d. 29,70 27,36 31,49 46,99	Ecart type n.d. 2,56 1,22 0,18 2,43	C.V. % n.d. 8,62 4,45 0,58 5,18	m.o. mg/g n.d. 42,1 118,51 62,59 101,78	AOX µg/g m.o n.d. 705,46 230,87 503,12 461,68
31,86	1,05	3,31	49,06	649,31
10,94 11,71	0,44 0,04	4,01 0,36	34,52 33,72	316,92 347,27
moy.	Ecart	C.V.	m.o.	AOX
μg/g	type	%	mg/g	μg/g m.o
n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
21,19	1,29	6,11	64,31	329,42
42,76	1,27	2,96	77,89	548,92
17,39	0,57	3,29	53,27	326,36
38,70	1,64	4,24	96,32	401,79
44,18	0,60	1,36	94,39	468,01
32,23	2,02	6,25	53,8	598,98
13,72	0,62	4,49	39,4	348,10
moy.	Ecart	C.V.	m.o.	AOX
μg/g	type	%	mg/g	μg/g m.o
n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
33,01	0,91	2,74	89,25	369,86
66,35	1,61	2,43	120,29	551,58
57,75	1,60	2,77	112,08	515,26

71,89	2,21	3,08	151,38	474,86
44,40	3,09	6,96	98,22	452,00
15,85	0,98	6,16	21,78	727,73
13,93	0,19	1,37	53,92	258,25
moy.	Ecart	C.V.	m.o.	AOX
µg/g	type	%	mg/g	µg/g m.o
30,08	0,74	2,44	97,18	309,53
16,24	0,37	2,26	28,7	565,85
33,94	0,25	0,73	84,6	401,12
47,72	0,69	1,44	89,98	530,28
47,71	1,75	3,68	127,38	374,55
39,06	0,79	2,03	90,09	433,57
27,02	0,60	2,22	39,41	685,49
15,05	1,21	8,04	39,99	376,22
moy.	Ecart	C.V.	m.o.	AOX
µg/g	type	%	mg/g	µg/g m.o
n.d.	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
18,39	1,58	8,58	39,59	464,38
20,65	1,01	4,90	46,4	444,94
23,77	1,58	6,66	58,09	409,19
54,03	1,16	2,15	129,04	418,71
44,98	0,88	1,95	84,92	529,67
56,77	1,52	2,68	96,07	590,87
13,30	1,02	7,66	32,78	405,74
moy.	Ecart	C.V.	m.o.	AOX
µg/g	type	%	mg/g	µg/g m.o
28,58	1,03	3,61	118,5	241,18
32,67	0,71	2,19	53,6	609,42
18,36	0,52	2,81	77,5	236,84
26,25	1,22	4,63	61,2	428,92
49,03	0,91	1,85	103,6	473,26
44,99	0,47	1,04	89,5	502,68
66,50	0,52	0,79	68,1	976,51
13,04	0,20	1,52	53,4	244,19

JUILLET 1994 Bras/Meuse	Conc. 1 µg/g 23,11	Conc. 2 µg/g 24,09	moy. μg/g 23,60	Ecart type 0,69	C.V. % 2,94
Nouzonville	47,03	50,11	48,57	2,18	4,48
Ham/Meuse	21,09	22,53	21,81	1,02	4,67
Givet	30,19	29,07	29,63	0,79	2,67
Charency	43,47	44,03	43,75	0,40	0,91
Carignan	66,16	65,73	65,95	0,30	0,46
Ecouviez	63,11	64,71	63,91	1,13	1,77
Ton amont	14,71	15,09	14,90	0,27	1,80
AOUT	Conc. 1	Conc. 2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg/g	μg/g	μg/g	type	%
Bras/Meuse	27,33	28,41	27,87	0,76	2,74
Nouzonville	53,17	52,66	52,92	0,36	0,68
Ham/Meuse	25,17	24,33	24,75	0,59	2,40
Givet	37,11	38,50	37,81	0,98	2,60
Charency	39,16	39,87	39,52	0,50	1,27
Carignan	59,11	60,37	59,74	0,89	1,49
Ecouviez	70,61	72,22	71,42	1,14	1,59
Ton amont	12,88	13,27	13,08	0,28	2,11
SEPTEMBRE	Conc. 1	Conc. 2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg/g	μg/g	μg/g	type	%
Bras/Meuse	33,27	35,41	34,34	1,51	4,41
Nouzonville	29,61	28,47	29,04	0,81	2,78
Ham/Meuse	39,48	37,89	38,69	1,12	2,91
Givet	37,72	39,83	38,78	1,49	3,85
Charency	44,16	43,81	43,99	0,25	0,56

Carignan	53,89	60,11	57,00	4,40	7,72
Ecouviez	66,80	63,18	64,99	2,56	3,94
Ton amont	16,80	17,00	16,90	0,14	0,84
OCTOBRE	Conc. 1	Conc. 2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg/g	μg/g	μg/g	type	%
Bras/Meuse	28,19	26,89	27,54	0,92	3,34
Nouzonville	37,03	39,13	38,08	1,48	3,90
Ham/Meuse	26,90	28,16	27,53	0,89	3,24
Givet	27,89	26,78	27,34	0,78	2,87
Charency	39,16	37,81	38,49	0,95	2,48
Carignan	49,19	48,80	49,00	0,28	0,56
Ecouviez	70,81	74,17	72,49	2,38	3,28
Ton amont	16,81	14,89	15,85	1,36	8,57
	_	_		_	
NOVEMBRE	Conc. 1	Conc. 2	moy.	Ecart	C.V.
1994	μg/g	µg/g	μg/g	type	%
Bras/Meuse	33,14	30,83	31,99	1,63	5,11
Nouzonville	54,16	57,39	55,78	2,28	4,09
Ham/Meuse	29,78	27,81	28,80	1,39	4,84
Givet	36,71	37,82	37,27	0,78	2,11
Charency	41,44	43,51	42,48	1,46	3,45
Carignan	52,39	52,87	52,63	0,34	0,64
Ecouviez	66,71	68,39	67,55	1,19	1,76
Ton amont	13,81	12,54	13,18	0,90	6,82

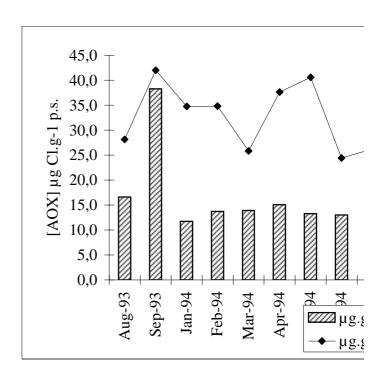


Figure 11 : Evolution de la concentration en AOX dans le

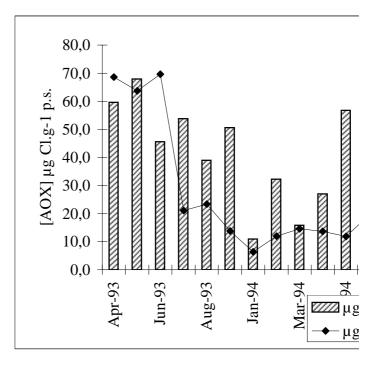
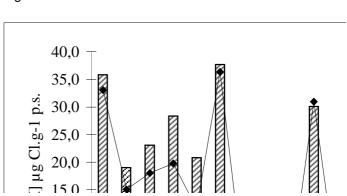


Figure 12 : Evolution de la concentration en AOX dans le



AOX m.o. mg/g μg/g m.o 125,6 187,90 78,5 618,73 69,1 315,63 68,2 434,46 112,5 388,89 98,4 670,17 62,3 1025,84 56,8 262,32 m.o. AOX µg/g m.o mg/g 285,85 97,5 60,3 877,53 87,6 282,53 638,60 59,2 111,8 353,44 85,6 697,90 56,8 1257,31 64,6 202,40 AOX m.o. mg/g μg/g m.o 118,9 288,81 36,5 795,62 84,2 459,44 683,86 56,7

118,3

371,81

73,5	775,51
48,6	1337,24
78,4	215,56
m.o.	AOX
mg/g	μg/g m.o
103,4	266,34
49,1	775,56
101,03	272,49
47,6	574,26
104,8	367,22
87,5	559,94
49,6	1461,49
69,5	228,06
m.o.	AOX
mg/g	μg/g m.o
126,8	252,25
58,6	951,79
89,5	321,73
54,6	682,51
121,6	349,30
102,3	514,47
55,3	1221,52
59,1	222,93

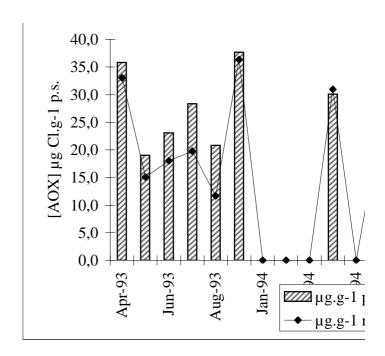


Figure 15: Evolution de la concentration en AOX dans le

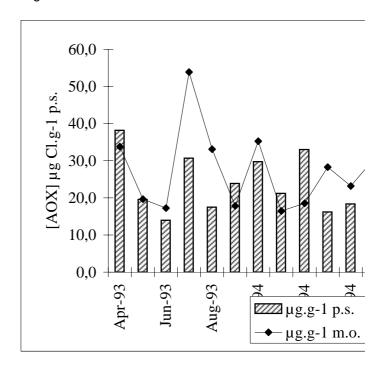
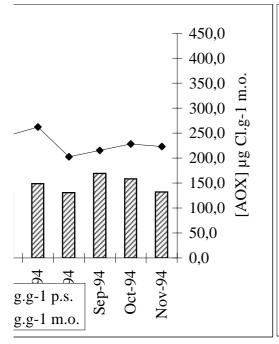
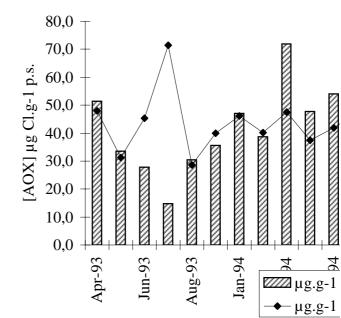


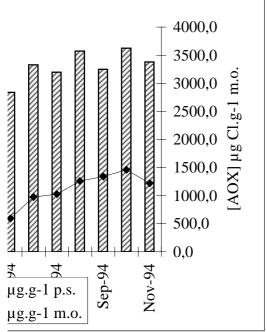
Figure 16 : Evolution de la concentration en AOX dans le

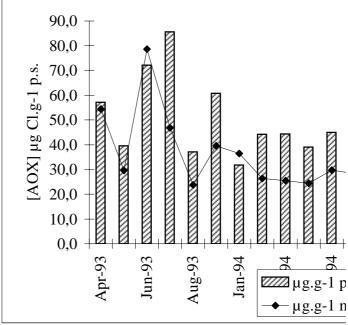




e sédiment à "Ton-amont".

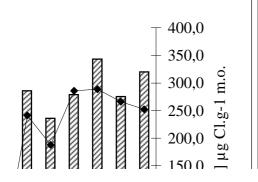
Figure 13: Evolution de la concentration en AOX dans le

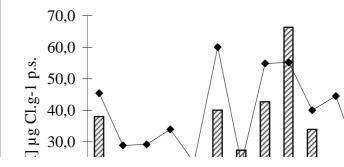


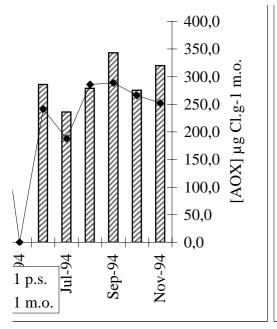


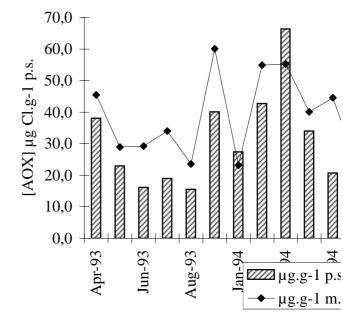
e sédiment à "Ecouviez".

Figure 14: Evolution de la concentration en AOX dans le



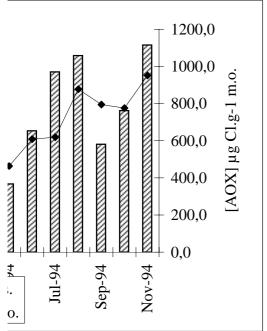


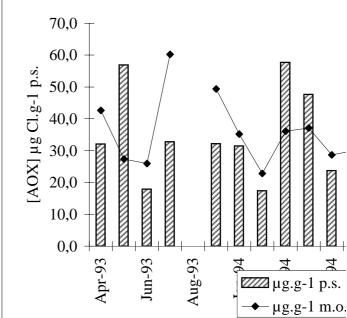




e sédiment à "Bras/Meuse".

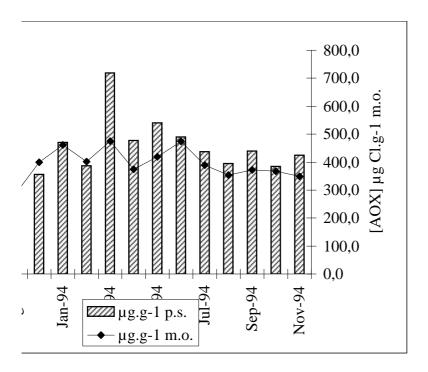
Figure 17 : Evolution de la concentration en AOX dans le



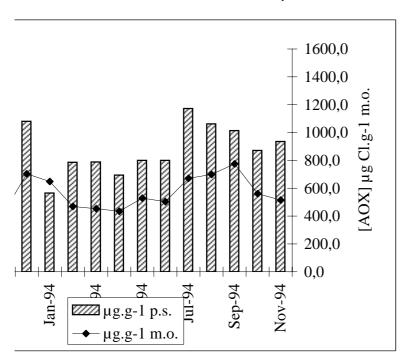


e sédiment à "Nouzonville".

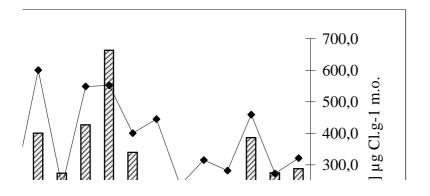
Figure 18: Evolution de la concentration en AOX dans le

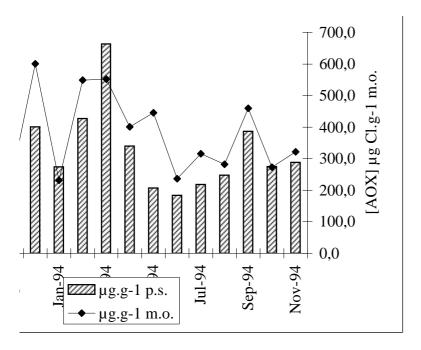


e sédiment à "Charency".

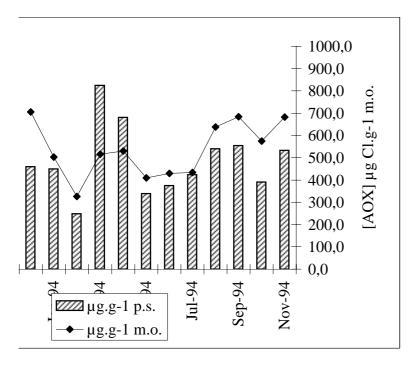


e sédiment à "Tétaigne".





e sédiment à "Ham/Meuse".



e sédiment à "Givet".

Tableau X : Répartition des stations prospectées, et distances des stations à la source.

Moselle		Meurthe		Meuse		Chiers	
Station	Km de la	Station	Km de la	Station	Km de la	Station	Km de la
prospectée	source	prospectée	source	prospectée	source	prospectée	source
Amont	0	Amont	0	Saint Mihiel	250	Longlaville	10
Remiremeont	32	Fraize	8	Dieue/Meuse	265	Longwy	16
Epinal	52	Saint Dié	32	Bras/Meuse	280	Cons la Grandville	29
Golbey	65	Raon l'Etape	47	Dun/Meuse	310	Montigny/Chiers	33
Chatel	77	Baccarat	57	Stenay	330	Longuyon	42
Charmes	92	Lunéville	93	Mouzon	360	Colmey	47
Neuves Maisons	132	Dombasle	116	Bazeilles/Meuse	379	Charency	55
Toul	157	Nancy	150	Nouzonville	415	Montmédy	78
Pont à Mousson	204			Revin	450	Lamouille	101
Jouy aux Arches	230			Givet	500	Carignan	119
La Maxe	243					Tétaigne	125
Thionville	277					Douzy	135
Apach	300						

Tableau XI: Débit, concentration et flux en AOX dans la Moselle.

Station	Débit	Flux	AOX
	m3/s	g/s	μg Cl.L-1
Source			14,96
Saulx	17,1	0,52	30,2
Remiremont	50,4	0,9	17,85
Epinal			24,22
Golbey	69,7	3,53	50,62
Chatel			34,97
Charmes	92,5	2,77	29,97
Nves Maison			38,63
Toul	140	2,21	15,76
P.à M.	197	8,32	42,26
Jouy aux A.	200	23,25	116,23
Metz	204	10,53	51,63
Thionville	173	11,63	67,2
Manom	173	10,61	61,34
Apach	177	10,12	57,17

Tableau XII : Débit, concentration et flux en AOX dans la Meurthe.

Station	Débit	Charge	AOX
	m3/s	g/s	μg Cl.L-1
Source			5,66
Fraize	3,87	0,026	6,87
St Dié	20,9	0,34	16,08
Raon l'Etape	42,7	0,69	16,37
Baccarat			12,49
Lunéville	86,3	1,21	13,94
Dombasle			86,24
Nancy	127	8,56	70,54

Tableau XIII : Débit, concentration et flux en AOX dans la Meuse.

Station	Débit	Charge	A.O.X.
	m3/s	g/s	μg Cl.L-1
Saint Mihiel	87,5	1,21	13,77
Dieue / M	88,5	1,29	14,65
Bras / M	88,7	1,38	15,58
Dun / M	87,4	1,26	14,42
Stenay			33,48
Mouzon	89,5	2,56	28,61
Bazeilles / M	187	7,86	42,01
Nouzonville	266	9,47	35,6
Revin	300	8,55	28,5
Givet	335	8,04	23,99

Tableau XIV : Débit, concentration et flux en AOX dans la Chiers.

Station	Débit	Charge	AOX
	m3/s	g/s	μg Cl.L-1
Douzy			38,7
Tétaigne			40,1
Carignan	9,9	0,43	43,1
Lamouille			30,06
Montmédy			28,18
Charency	2,49	0,082	32,99
Colmey			19,14
Longuyon			36,49
Montigny			13,5
Cons Gdvl	1,76	0,042	23,96
Longwy			27,16
Longlaville			26,95

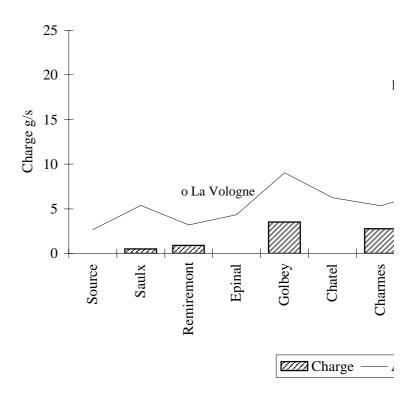
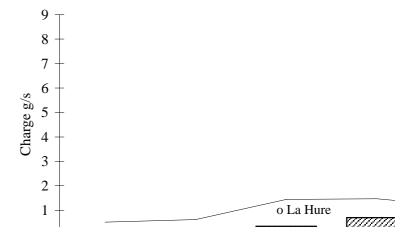


Figure 20 : Profil longitudinal



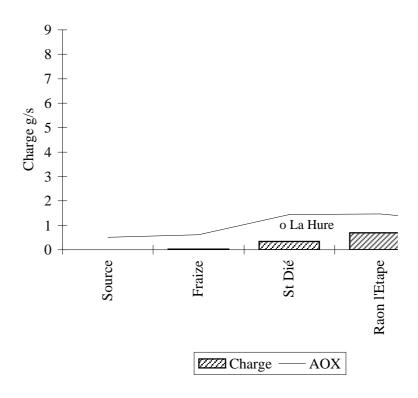
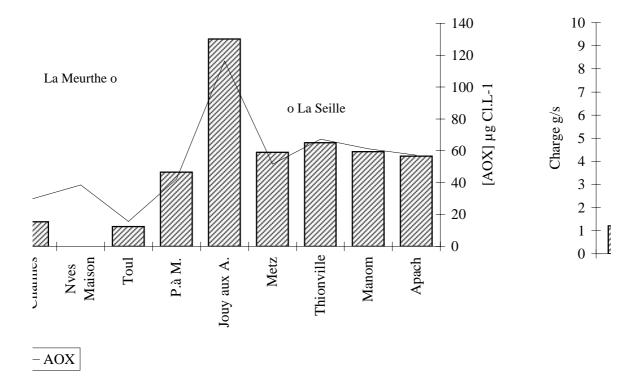
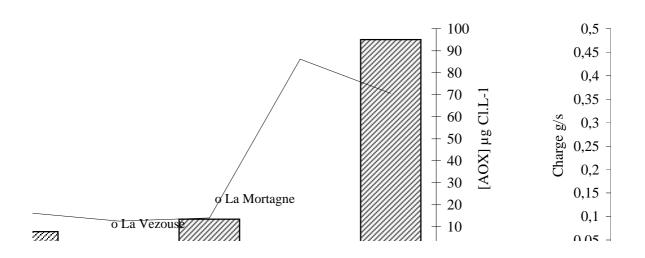
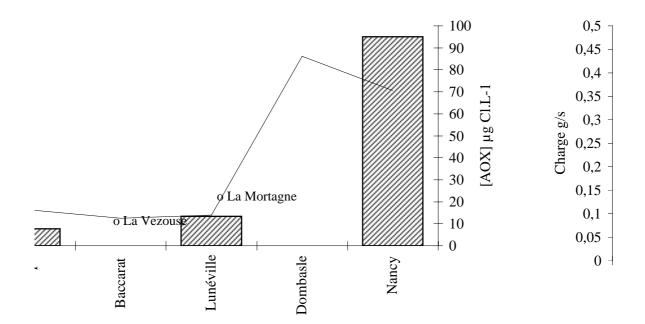


Figure 21 : Profil longitudinal



l de la concentration en AOX de la Moselle





de la concentration en AOX de la Meurthe

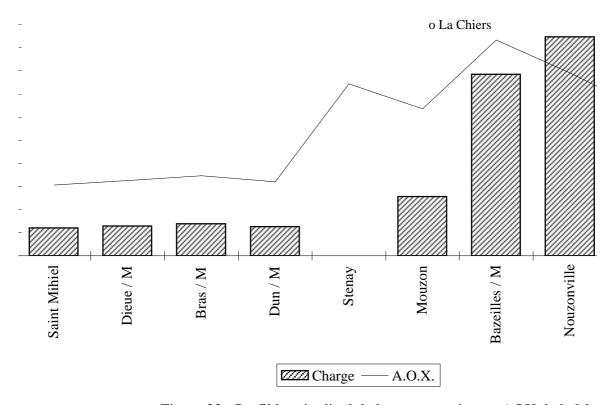
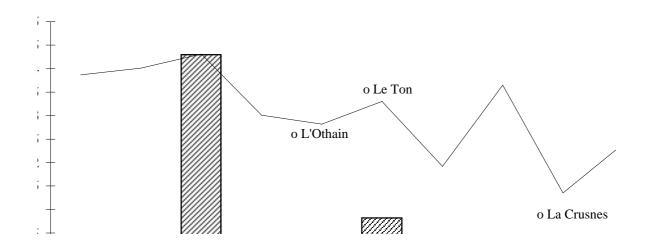


Figure 22 : Profil longitudinal de la concentration en AOX de la Me



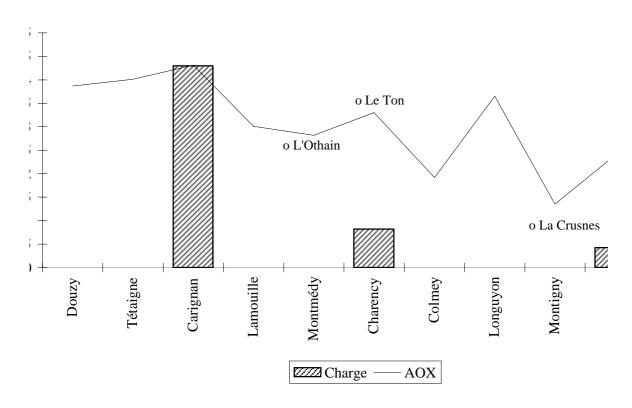
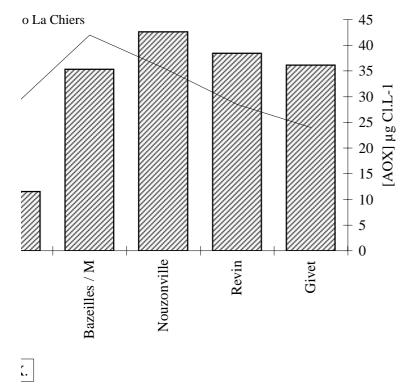
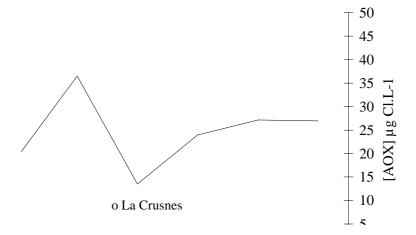
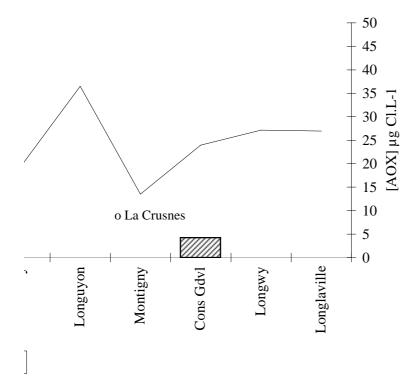


Figure 23 : Profil longitudinal de la concentration en AOX de la Cl



euse





hiers

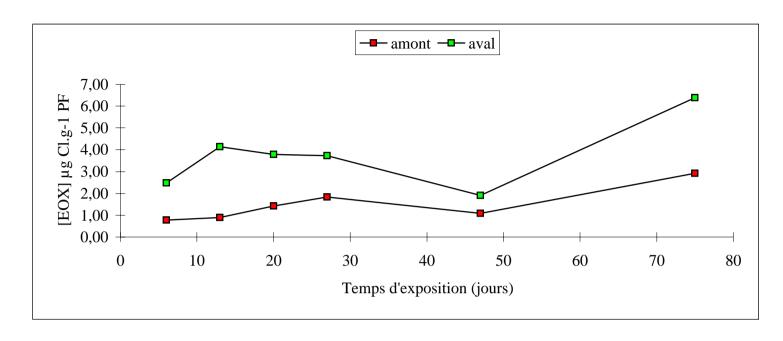
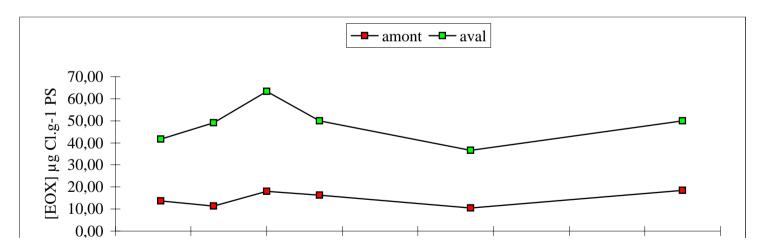


Figure 30 : Evolution de la concentration en EOX en fonction du poids frais.



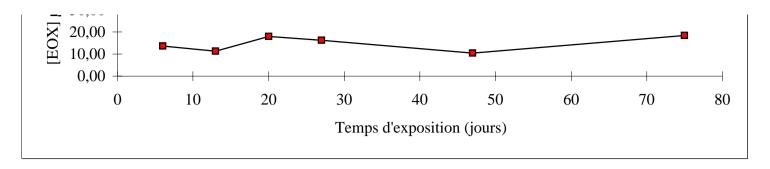


Figure 31: Evolution de la concentration en EOX en fonction du poids sec.

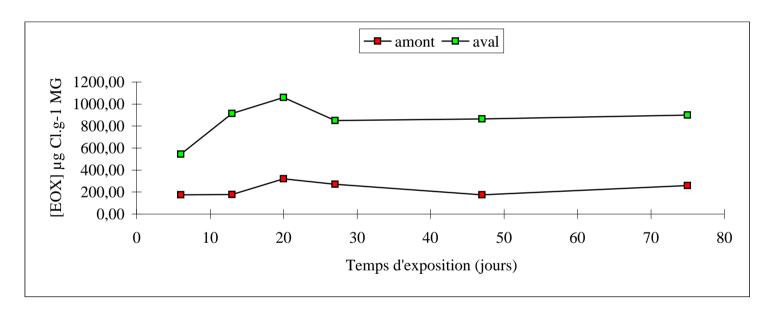


Figure 32 : Evolution de la concentration en EOX en fonction des matières grasses.

Tableau XV : Qualité générale de l'eau des deux stations d'étude.

		Station amont	Station aval	n
рН		8.13 +/- 0.06	8.05 +/- 0.04	7
Conductivité	μS/cm	353 +/- 9.4	542 +/- 34	7
Temperature	°C	8.69 +/- 1.95	11.41 +/- 2.34	7
O2 dissous	mg/l	10.83 +/- 0.98	9.69 +/- 0.91	7
MES	mg/l	16.08 +/- 9.12	43.76 +/- 20.43	7
DBO5	mg O2/l	4.68 +/- 1.65	6.65 +/- 2.9	4
DCO	mg O2/l	12.25 +/- 3.69	32.25 +/- 7.29	4
Cl	mg/l	11.14 +/- 1.54	35.51 +/- 10.96	7
F	mg/l	0.12 +/- 0.03	0.17 +/- 0.05	7
Br	mg/l	0.03 +/- 0.04	0.68 +/- 0.79	7
K	mg/l	2.77 +/- 0.77	4.03 +/- 1.22	6
Na	mg/l	29.28 +/- 33.17	38.93 +/- 17.11	6
Ca	mg/l	79.2 +/- 8.29	89.65 +/- 7.26	6
Mg	mg/l	3.92 +/- 0.23	3.99 +/- 0.27	6
NO2	mg/l	0.11 +/- 0.03	0.17 +/- 0.29	7
NO3	mg/l	8.47 +/- 0.44	8.15 +/- 0.69	7
NH4	mg/l	0.23 +/- 0.01	0.18 +/- 0.06	3
NTK	mg/l	2.22 +/- 1.01	1.75 +/- 0.84	3
PO4	mg/l	0.2 +/- 0.03	0.11 +/- 0.04	7
P total	mg/l	0.16 +/- 0	0.17 +/- 0.02	3
SO4	mg/l	26.79 +/- 1.47	60.67 +/- 27.45	7

Tableau XVI: Concentrations en AOX dans l'eau au cours de l'étude.

[AOX] µg Cl.L-1	0	6	13	20	27	34	46	75
Station amont	9,2	8	8,8	14,6	5,4	6,1	16,6	5,3
Station aval	164,8	510,1	988,9	802,2	453	123,5	142,4	78,4

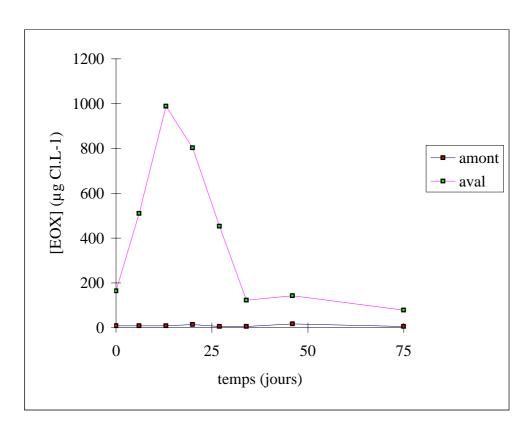


Figure 27 : Evolution de la concentration en AOX dans l'eau.

Tableau XVII: Concentrations en AOX dans les sédiments des deux stations

AMONT	0	6	20	27	45	75
[AOX] µg Cl.g-1 p.s.	15,7	24,0	18,5	26,9	14,2	35,5
% m.o./p.s.	5,6	6,01	5,39	7,17	3,99	9,61
[AOX] µg Cl.g-1 m.o.	280,3	400,4	343,7	374,5	354,9	369,6

			•	•		
AVAL	0	6	20	27	45	75
[AOX] µg Cl.g-1 p.s.	34,8	33,2	19,9	55,7	27,4	56,1
% m.o./p.s.	5,02	3,39	2,17	6,73	3,94	9,61
[AOX] ug Cl.g-1 m.o.	693.4	980.3	916.3	827.6	696.4	583.7

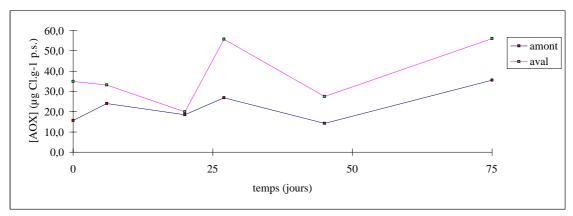


Figure 28 : Evolution de la concentration en AOX dans les sédiments.

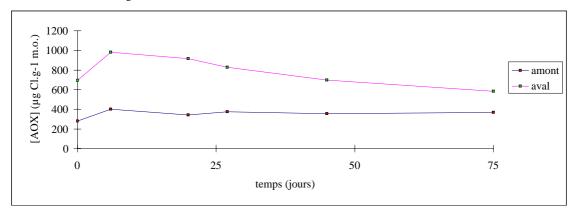


Figure 29 : Evolution de la concentration en AOX dans les sédiments.

Tableau XVIII : Caractéristiques et concentrations en EOX des anodontes.

	Temps d'exposition jours	6	13	20	27	47	75
A	Poids frais de l'échantillon	10,48	11,04	10,18	10,26	10,29	9,21
$\mathbf{M}$	% de poids sec/poids frais	5,66	7,96	7,90	11,27	10,35	15,89
O	% de matières grasses/poids frais	7,85	6,40	5,65	6,02	5,99	7,06
N	[EOX] μg.g-1 de p.f.	0,78	0,90	1,42	1,83	1,08	2,92
$\mathbf{T}$	[EOX] µg Cl.g-1 p.s.	13,72	11,31	18,03	16,27	10,48	18,39
	[EOX] μg Cl.g-1 m.g.	174,71	176,91	319,41	270,15	175,08	260,45

	Temps d'exposition jours	6	13	20	27	47	75
	Poids frais de l'échantillon	10,96	15,18	10,26	10,76	11,37	9,47
A	% de poids sec/poids frais	5,96	8,43	5,99	7,48	5,25	12,79
V	% de matières grasses/poids frais	7,65	5,36	5,97	5,88	4,23	5,56
A	[EOX] μg.g-1 de p.f.	2,48	4,14	3,79	3,73	1,91	6,39
L	[EOX] µg Cl.g-1 p.s.	41,68	49,13	63,26	49,98	36,55	49,99
	[EOX] µg Cl.g-1 m.g.	544,88	915,79	1058,90	849,22	864,07	899,20

Tableau XIX : Qualité générale de l'eau au niveau des trois stations,

		Ton	amont	Eco	uviez	Chiers				
		Moyenne	Ecart type	Moyenne	Ecart type	Moyenne	Ecart type			
pН		7,9	0,2	7,8	0,1	7,9	0,2			
Conductivité	μS/cm	366,2	4,0	667,0	45,3	620,6	21,6			
Température	°C	9,1	1,1	14,2	0,6	11,3	0,8			
O2	mg/l	9,2	1,2	7,1	1,8	7,8	1,6			
% sat	mg/l	82,2	13,5	71,2	18,2	72,6	15,7			
F-	mg/l	0,1	0,0	0,1	0,0	0,1	0,1			
Cl-	mg/l	11,7	2,6	46,5	6,0	35,6	2,9			
NO2-	mg/l	0,2	0,0	0,0	0,1	0,2	0,0			
Br-	mg/l	0,0	0,0	1,8	1,9	0,2	0,4			
NO3-	mg/l	7,5	1,0	5,8	0,5	13,0	1,2			
PO4-	mg/l	0,3	0,1	0,1	0,0	0,5	0,2			
SO4-	mg/l	24,0	1,1	120,0	27,0	93,6	11,8			
MES 105°C	mg/l	4,0	1,5	26,6	20,9	16,4	10,2			
MES 500°C	mg/l	2,3	1,3	15,5	12,7	10,2	6,9			
DCO	mg/l	14,4	1,7	47,0	15,4	29,8	5,2			
N total	mg/l	1,8	0,3	1,8	1,4	1,7	1,4			
P total	mg/l	0,2	0,0	0,2	0,1	0,3	0,1			
K+	mg/l	2,1	0,2	5,3	0,3	5,9	0,4			
Na+	mg/l	7,8	0,9	70,9	5,9	46,3	2,5			
Mg++	mg/l	3,3	0,4	4,2	0,2	5,6	0,4			
Ca++	mg/l	79,9	1,3	94,6	7,3	102,2	3,8			
Chloro a	μg/l	2,1	1,7	2,3	1,3	2,2	1,0			
Phéopi	μg/l	1,4	1,0	1,3	0,6	1,9	1,0			

Tableau XX : Poids sec, poids de lipides et concentrations en EOX dans les anodontes.

Station	Temps jours	Poids sec % (Poids frais)	SD	Lipides % (Poids sec)	SD	[EOX] µg/g PF	SD	[EOX] µg/g PS	SD	[EOX] μg/g MG	SD
Témoins		12,94	1,12	5,26	1,34	1,03	0,10	7,96	0,72	157,20	31,94
Ton amont	14	9,87	1,17	5,03	0,83	0,84	0,27	8,49	2,21	173,17	56,42
Ton amont	28	9,85	1,45	5,18	1,26	0,96	0,12	10,00	2,54	195,73	36,35
Ecouviez	4	9,12	0,88	5,42	0,56	1,44	0,32	15,68	2,64	288,19	27,58
Ecouviez	7	11,76	0,96	5,18	1,09	1,75	0,35	15,13	4,00	291,30	52,10
Ecouviez	11	11,42	0,65	6,01	1,11	2,17	0,46	18,93	3,04	324,37	83,21
Ecouviez	14	8,65	0,61	5,11	0,73	1,76	0,57	20,21	5,66	390,24	68,06
Ecouviez	18	9,67	1,73	5,54	1,27	2,16	0,32	23,25	6,88	418,64	83,99
Ecouviez	21	9,37	0,96	5,97	1,06	2,60	0,72	27,98	8,60	460,98	73,29
Ecouviez	25	10,20	1,62	5,76	0,33	3,04	0,34	30,22	4,96	525,36	81,99
Ecouviez	28	10,02	1,45	6,34	1,06	3,33	0,44	33,61	5,50	539,64	119,07
Chiers	4	11,50	1,23	6,01	0,49	1,62	0,17	14,31	2,81	240,30	54,42
Chiers	7	11,49	4,32	5,15	1,37	1,68	0,23	15,51	3,75	309,21	74,64
Chiers	11	10,28	1,32	5,18	0,37	1,67	0,26	16,22	1,21	313,81	24,80
Chiers	14	11,30	0,38	5,32	0,30	1,96	0,28	17,41	2,55	326,88	43,63
Chiers	18	10,87	1,75	6,34	0,55	2,30	0,14	21,66	4,59	344,17	83,60
Chiers	21	8,77	2,05	5,46	1,56	1,74	0,67	20,91	9,68	383,52	151,37
Chiers	25	8,76	0,77	5,61	0,50	2,09	0,45	24,10	6,11	432,38	112,94
Chiers	28	9,95	1,87	5,30	2,41	2,37	1,30	26,12	19,41	456,61	135,27

## Octobre rouge [AOX] dans l'eau

	Vendredi		Sa	amedi			Dimanche			Lundi			Mardi		1	Mercredi			Jeudi	
	07/10			08/10			09/10		10/10		11/10		12/10			13/10				
Ton amont	19,1												17,9							
Ecouviez	325,0	338,6	334,5	354,5	420,5	211,4	236,5	240,8	315,2	332,5	345,8	350,5	315,9	356,7	382,0	332,7	347,0			
Chiers	143,6	146,8	161,6	150,8	169,2	139,1	121,8	141,6	169,2	144,6	170,5	181,3	170,3	143,9	165,3	144,3	163,1	158,0	141,9	121,8

	,	Vendredi		S	amedi			Dimanch	e		Lundi			Mardi		1	Mercredi			Jeudi	
		14/10	)			15/10		16/10	)		17/10			18/10			19/10			20/10	
Ton amont		19,3												14,8							
Ecouviez		235,0	281,6	306,1	326,4	353,3	359,0	369,5						361,0	325,1	336,8	430,3	370,5	376,9	336,0	308,9
Chiers	128,5	109,6	108,7	140,7	141,7	160,6	162,4	160,0	179,8	168,6	189,9	178,4	200,8	185,0	167,2	174,4	176,9	161,7	178,4	180,7	147,9

	Vendredi Samedi					]	Lundi			Mardi			]	Mercredi		,					
	21/10			22	/10	23/10				24/10			25/10			26/10			27/10		
Ton amont		12,1																			
Ecouviez	363,9	448,3	385,5	367,0	333,7	341,0	252,9	233,6	247,0	230,3	241,9	249,3	234,6	246,4	285,7	298,5	282,5	312,1	337,1	409,9	326,8
Chiers	172,3	192,0	170,8	175,5	168,1	172,2	156,4	157,9	155,0	130,2	126,9	127,7	112,4	109,1	95,4	128,6	147,1	155,4	161,6	167,4	172,1

	Vendredi Samedi				I	Dimanche	Lundi			Mardi			Mercredi			Jeudi			Vendredi				
		28/10 29/10		/10	30/10		31/10		01/11			02/11			03-nov			04-nov 04/11					
Ton amont																							
Ecouviez	330,8	311,0	298,5	283,7	238,0	269,9	308,9	256,2	175,4	137,2	130,6	134,0	130,2	173,1	190,6	205,8	215,8	263,9	265,3	266,2	275,2	283,8	298,0
Chiers	165,1	154,1	153,7	116,7	130,4	116,8	136,5	152,4	83,3	71,0	52,0	55,7	52,7	66,8	88,6	88,7	91,7	85,4	83,7	99,6	104,9	114,2	116,8

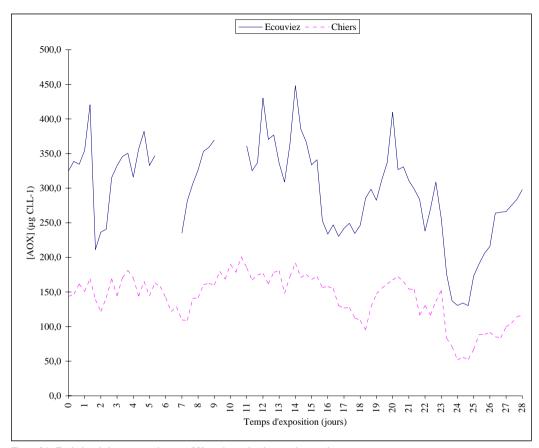


Figure 34: Evolution de la concentration en AOX au niveau des deux stations aval.

22 23,0 269,9 308,9 256,2 175,4 137,2 130,6 134,0 130,2 173,1 190,6 205,8 215,8 263,9 265,3 266,2 275,2 283,8 298,0 295,9 70,5 130,4 116,8 136,5 152,4 83,3 71,0 52,0 55,7 52,7 66,8 88,6 88,7 91,7 85,4 83,7 99,6 104,9 114,2 116,8 141,0 34,8