

Biais potentiel sur la granulométrie et les concentrations en contaminants dans les matières en suspension échantillonnées par piège à particules

SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

A. Yari, A. Dabrin, M. Masson

Juillet 2020

Rapport final

Contexte de programmation et de réalisation

Ce rapport a été réalisé dans le cadre du programme scientifique et technique AQUAREF pour l'année 2019, au titre de l'action « FG » « Nouveaux outils et connaissances pour optimiser les stratégies de surveillance) ».

Auteurs :

Anice YARI
INRAE
anice.yari@inrae.fr

Aymeric DABRIN
INRAE
aymeric.dabrin@inrae.fr

Matthieu MASSON
INRAE
matthieu.masson@inrae.fr

Vérification du document :

Enrica ALASONATI
LNE
enrica.alasonati@lne.fr

Bénédicte LEHOT
INERIS
benedicte.lepot@ineris.fr

Marie-Pierre STRUB
INERIS
marie-pierre.strub@ineris.fr

Les correspondants

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

INRAE : Marina COQUERY, marina.coquery@inrae.fr

Référence du document : Anice Yari, Aymeric Dabrin, Matthieu Masson - Biais potentiel sur la granulométrie et les concentrations en contaminants dans les matières en suspension échantillonnées par piège à particules - Rapport AQUAREF 2019 - 38 p.

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

1. INTRODUCTION.....	8
2. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR L'UTILISATION DES PIEGES A PARTICULES.....	9
2.1 Modalités de l'étude bibliographique	9
2.2 Description globale des résultats	10
2.3 Efficacité du piégeage des MES	12
2.4 Biais de répartition granulométrique des pièges à particules	14
2.4.1 Mise en évidence d'un biais granulométrique	14
2.4.2 Influence du biais de répartition granulométrique sur les concentrations en micropolluants dans les MES.....	19
2.5 Altération des MES échantillonnées	22
3. CONCLUSION.....	23
4. BIBLIOGRAPHIE.....	25

Liste des annexes :

Annexe 1. Synthèse des 37 publications sélectionnées concernant l'utilisation de pièges à particules pour le suivi de la contamination des MES dans les cours d'eau (références classées par ordre chronologique croissant)

Liste des abréviations

AE	Agence de l'Eau
BISAM	<i>Binnen- und Seesamler</i> - Collecteur en milieu continental et maritime selon Reinemann & Schemmer (1994)
CAP	Composé aromatique polycyclique
CFC	<i>Continuous Flow Centrifugation</i> - Centrifugation en continu
CIP	Carbone inorganique particulaire
COP	Carbone organique particulaire
COT	Carbone organique total
CT	Carbone total
GESB	<i>German Environmental Specimen Bank</i>
HAP	Hydrocarbures aromatiques polycycliques
HBCD	Hexabromocyclododécane
LABAM	Laboratoire de Bioélectrochimie et d'Analyse du Milieu, Université Paris XII-Val de Marne
LGA	Laboratoire de Géologie Appliquée, Université Pierre et Marie Curie
LOI	<i>Loss on ignition</i> - Perte au feu
MES	Matières en suspension
MIM	Module Intégrateur de Micro-pollution (décanteur immergé)
MVS	Matières volatiles en suspension
NT	Azote total
NTK	Azote Kjeldahl
OE	Office de l'Eau
OSR	Observatoire des sédiments du Rhône
PASS	<i>Pumped Active Suspended sediment Sampler</i> - Piège à particules selon Doriean <i>et al.</i> (2019)
PCB	Polychlorobiphényle
PT	Phosphore total
TIMS	<i>Time-Integrated Mass flux Sampler</i> - Piège à sédiment tubulaire selon Phillips <i>et al.</i> (2000)

RESUME

En application de la Directive Cadre sur l'Eau (DCE), la surveillance des concentrations en contaminants hydrophobes de la matrice sédimentaire dans les cours d'eau est effectuée via des l'échantillonnage de sédiments de surface, dont la fréquence est définie par les directives européennes. Toutefois, l'échantillonnage de sédiment de surface pose plusieurs questions, notamment en termes de représentativité des échantillons prélevés.

En réponse à ces problématiques, le suivi des matières en suspension (MES) apparaît comme une piste prometteuse pour s'affranchir de l'hétérogénéité des sédiments de surface prélevés. Dans une perspective de surveillance des cours d'eau, le piège à particules constitue une piste d'intérêt en raison de son faible coût, de sa facilité de déploiement à une large échelle spatiale et de son caractère intégrateur. Toutefois, ces pièges à particules apportent leur lot de questions à prendre en compte vis-à-vis de la représentativité des particules prélevées. Précisément, la question du biais granulométrique (échantillonnage de particules de granulométrie différente de celles prélevées par des méthodes considérées comme « référence ») et de son influence sur les concentrations en contaminants doit être étudiée. Ces concentrations pourraient également être affectées par différents processus d'altération des MES à l'intérieur des pièges à particules pendant la durée de déploiement.

Une étude bibliographique a donc été menée afin d'apporter des éléments de réponse à ces questions. 37 publications au total ont été recensées et étudiées, et font principalement référence à deux types de pièges à particules : un piège tubulaire décrit par Phillips *et al.* (2000) et le piège utilisé par la *German Environmental Specimen Bank* (GESB ; Schulze *et al.*, 2007). Il ressort de cette synthèse bibliographique que :

- (a) Le type de piège utilisé dépend de la taille du cours d'eau étudié : le piège de la GESB n'a été déployé qu'en grand cours d'eau, tandis que le piège tubulaire a été utilisé dans des cours d'eau de tailles très différentes ;
- (b) Les différents types de pièges à particules tendent à échantillonner des MES plus grossières que les MES prélevées par des méthodes de référence comme la centrifugation en continu ;
- (c) L'influence de ce biais granulométrique sur les concentrations en contaminants dans les MES n'est pas systématique, les métaux y paraissant toutefois plus sensibles ;
- (d) L'altération éventuelle des MES piégées à l'intérieur du piège à particules est un aspect peu documenté et non démontré, même si elle est envisagée dans plusieurs études.

Mots clés (thématique et géographique) : MES, piège à particules, cours d'eau, échantillonnage intégratif, granulométrie, contaminants, représentativité, sédiments

POTENTIAL BIAS IN GRAIN SIZE AND IN CONTAMINANT CONCENTRATIONS FOR SUSPENDED SOLIDS COLLECTED BY PARTICLE TRAPS

Anice YARI, Aymeric DABRIN, Matthieu MASSON

ABSTRACT

Following the application of the Water Framework Directive, the monitoring of river sediments is performed through sampling of surface sediment at a frequency defined by European directives, in order to assess the evolution of hydrophobic contaminant concentrations in sediments. However, surface sediment sampling brings some questions regarding the samples' representativeness.

To address these questions, the monitoring of suspended solids (SS) appears as a relevant perspective. Among several methods used for the SS sampling, particle traps represents a promising tool due to their low cost, their ability to be deployed at large scale and to provide an integrative picture of the contamination. However, such traps bring their set of questions regarding the representativeness of sampled particles. Indeed, it is necessary to assess the potential bias in grain size (*i.e.* significant differences between the grain size of particles sampled by traps and that of particles sampled by « reference » methods), and its effect on contaminants concentrations. Contaminant concentrations might also be affected by different alteration processes within the particle trap occurring during the time of its deployment.

Therefore, a bibliographic study has been conducted to provide some answers to these questions. 37 studies have been found and analyzed in this regard. They mainly refer to two types of particle traps: a tube sampler described by Phillips *et al.* (2000) and the trap used by the German Environmental Specimen Bank (GESB ; Schulze *et al.*, 2007). This bibliographic study shows that:

- (a) The type of particle trap is partly defined by the size of the river: the GESB trap was exclusively used in large rivers whereas the tube sampler was used in rivers with a wide range of sizes ;
- (b) The different types of particle traps tend to sample coarser particles than reference methods such as continuous flow centrifuge ;
- (c) This bias in grain size does not affect the concentrations of contaminants in a precise and definitive way, although metals seem more sensitive to it ;
- (d) The possible alteration of particles sampled by a particle trap is not well documented and has not been clearly demonstrated, although this possibility is mentioned by some studies.

Key words (thematic and geographical area): SPM, particle trap, river, integrative sampling, grain size, contaminants, representativeness

1. INTRODUCTION

Dans le cadre de la Directive cadre Européenne sur l'Eau (DCE 2000/60/CE), les Etats membres doivent procéder à la surveillance des substances chimiques pour la définition de l'état chimique et de l'état écologique des eaux continentales au niveau des différentes masses d'eau. En ce qui concerne les sédiments, la surveillance chimique de cette matrice est abordée dans la directive fille NQE 2008/105/CE, qui demande aux Etats Membres de procéder « à l'analyse tendancielle à long terme des concentrations des substances prioritaires » hydrophobes et de prendre les mesures nécessaires afin que ces concentrations « n'augmentent pas de manière significative ».

C'est dans ce contexte réglementaire qu'en France, les Agences de l'Eau (AE) et Offices de l'Eau (OE) effectuent un suivi régulier de la contamination des sédiments de surface des eaux continentales. Ce suivi est généralement effectué à raison d'un échantillonnage de sédiment par an, en accord avec les indications de la directive fille NQE 2008/105/CE. Toutefois, l'échantillonnage ponctuel de sédiment de surface soulève plusieurs questions opérationnelles, notamment en raison de l'hétérogénéité naturelle des sédiments prélevés, qui peut grandement influencer sur les concentrations en métaux et contaminants organiques hydrophobes mesurées (Yari *et al.*, 2017). La question de la représentativité des échantillons de sédiment de surface prélevés à un instant donné est donc essentielle à considérer, en lien avec les dynamiques sédimentaires et hydrologiques des cours d'eau où sont effectués les échantillonnages.

Ainsi, en alternative au suivi de la qualité des sédiments de surface, le suivi de la contamination des matières en suspension (MES) dans le cours d'eau apparaît comme une piste prometteuse (Yari *et al.*, 2017). Les avantages de cette méthode incluent :

- un ciblage des particules les plus fines, considérées comme porteuses principales de la contamination en raison de leur plus grande surface spécifique favorisant l'adsorption des contaminants (Olsen *et al.*, 1982) ;
- une forte réduction des effets liés à l'hétérogénéité sédiments de surface échantillonnés ;
- contrairement aux sédiments de surface, pour lequel il est difficile de déterminer avec précision la période de dépôt, l'échantillon prélevé par un piège correspond précisément aux particules ayant transité au niveau de la station pendant la période d'échantillonnage.

Plusieurs méthodes sont disponibles pour l'échantillonnage des MES dans les cours d'eau. Les méthodes les plus classiques comprennent l'échantillonnage ponctuel d'un volume d'eau suffisamment important qui est ensuite filtré (sur site ou au laboratoire) pour récupérer les MES, ou la centrifugation en continu d'une certaine quantité d'eau prélevée dans le cours d'eau par pompage. Toutefois, ces méthodes d'échantillonnage « ponctuel » ne permettent pas d'intégration temporelle de la contamination (à l'inverse des sédiments de surface, qui par définition sont des matrices plus intégratrices).

Ainsi, les pièges à particules sont une technique particulièrement intéressante, car ils permettent d'obtenir des échantillons intégratifs représentatifs de la période de déploiement (entre 1 et 4 semaines généralement). Une première étude bibliographique, réalisée dans le cadre d'AQUAREF par Lardy-Fontan *et al.* (2016), a permis d'illustrer la diversité des pièges à particules disponibles et les différents objectifs qu'ils permettent d'atteindre, notamment pour la surveillance des cours d'eau. De plus, les travaux de Poulier *et al.* (2019) réalisés dans le cadre de

l'Observatoire des Sédiments du Rhône (OSR) ont montré que ces pièges à particules peuvent être déployés à large échelle dans le cadre d'un réseau de surveillance pour le suivi de la contamination particulaire.

L'utilisation de ces outils soulève toutefois de nouvelles questions en termes de représentativité des MES prélevées vis-à-vis du milieu d'échantillonnage et d'un éventuel biais granulométrique induit par ce mode d'échantillonnage. Une première étude (Masson *et al.*, 2018), également présentée dans un rapport AQUAREF de Dabrin *et al.* (2018)), a mis en évidence que les prélèvements de MES réalisés par piège à particules de type GESB (cf. § 2.2) déployé dans le Rhône présentent un biais granulométrique par rapport à ceux effectués par centrifugation en continu (CFC) et par échantillonnage manuel : les particules prélevées par le piège à particules sont plus grossières que celles prélevées par CFC ou par échantillonnage manuel. Des questions se posent également quant à une possible altération ou dégradation des MES échantillonnées par le piège au cours de la période de déploiement qui pourrait avoir une influence, directe ou indirecte, sur les concentrations en contaminants des MES (e.g. Schubert *et al.*, 2012).

L'objectif général de cette étude est d'améliorer les connaissances sur la représentativité de la mesure intégrée de la contamination par piège à particules. Dans ce but, une recherche bibliographique a été menée pour répondre aux deux questions principales :

- dans quelle mesure le biais granulométrique exerce-t-il une influence sur les concentrations en contaminants ?
- y a-t-il des possibilités d'altération des MES durant la durée de déploiement des pièges conduisant à une modification des concentrations en contaminants ?

Cette recherche est ciblée sur l'utilisation des pièges à particules dans une perspective de surveillance des cours d'eau. Ce rapport présente les principaux résultats de cette recherche.

2. ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR L'UTILISATION DES PIEGES A PARTICULES

2.1 MODALITES DE L'ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Cette recherche bibliographique cible essentiellement les études (publications dans des journaux à comité de lecture, thèses ou rapports d'étude) concernant l'utilisation de pièges à particules pour le suivi de la contamination des MES dans les cours d'eau. Ce travail vient compléter le rapport AQUAREF de Lardy-Fontan *et al.* (2016), qui détaillait quelques exemples d'utilisation des pièges à particules dans les milieux aquatiques.

Une attention particulière a été apportée aux études concernant :

- l'efficacité du piégeage des MES par les différents pièges à particules utilisés, et notamment les difficultés des pièges à échantillonner certains types de particules ou dans certaines conditions de déploiement ;
- les possibles biais d'échantillonnage entre échantillonnage de MES par piège à particules et par un autre mode d'échantillonnage (échantillonnage ponctuel manuel ou par CFC par exemple), comme ceux déjà identifiés dans le précédent rapport AQUAREF de Dabrin *et al.* (2018) ;

- les problématiques d'altération ou de dégradation éventuelle des MES piégées et des contaminants associés dans les dispositifs au cours de la période d'exposition.

Les critères retenus pour évaluer les publications recensées sont les suivants :

- l'objectif affiché de l'étude ;
- le type de piège à particules utilisé ;
- le milieu de déploiement : une classification arbitraire entre petits, moyens et grands cours d'eau a été établie en se basant sur la superficie du bassin versant d'après les travaux de Singh & Stenger (2018) (les autres indicateurs de « taille réelle » du cours d'eau au niveau du site de déploiement étant plus difficiles à trouver) :
 - o moins de 10 km² pour les « petits » cours d'eau
 - o entre 10 et 1 000 km² pour les cours d'eau « moyens »
 - o plus de 1 000 km² pour les « grands » cours d'eau ;
- la durée de déploiement ;
- la nature des expérimentations (en laboratoire ou sur le terrain) ;
- les paramètres majeurs mesurés ;
- les contaminants (ou micropolluants) recherchés ;
- la comparaison ou non à un échantillonnage de MES de référence (usuellement des échantillonnages manuels ou par CFC) ;
- la présence de commentaires sur l'efficacité de piégeage des MES ;
- la présence de commentaires sur le biais granulométrique ;
- la présence de commentaires sur les concentrations en contaminants obtenues ;
- la présence de commentaires sur l'altération des échantillons pendant le déploiement du piège.

L'annexe 1 recense l'ensemble des 37 publications identifiées sur les vingt dernières années sélectionnées dans le cadre de cette recherche bibliographique. Ces publications sont classées par ordre chronologique de publication. Les commentaires sont rédigés en **vert** lorsqu'ils se rapportent à l'efficacité de piégeage des MES ; en **rouge** lorsqu'ils concernent le biais granulométrique ; en **bleu** lorsqu'ils sont en lien avec les problématiques d'altération des échantillons ; et en **noir** lorsqu'ils se rapportent à d'autres problématiques (ex : comparaison de résultats entre MES et sédiments de surface, ou entre MES et biote).

2.2 DESCRIPTION GLOBALE DES RESULTATS

La Figure 1 ci-dessous donne quelques illustrations de pièges à sédiment tels que décrits dans la littérature. Les pièges à particules les plus fréquemment utilisés dans les cours d'eau sont a) le piège tubulaire décrit par Phillips *et al.* (2000), communément désigné sous l'appellation de TIMS (*time-integrated mass flux sampler*) (19 études sur les 37 recensées), et b) le piège utilisé dans le cadre de la German Environmental Specimen Bank (GESB) décrit par Schulze *et al.* (2007) (8 études sur les 37 recensées). Les autres modèles de pièges à particules, notamment c) le piège « multitubes » décrit par Marvin *et al.*, 2002 et d) le piège en pente décrit par Pohlert *et al.*, 2011, n'ont été utilisés que ponctuellement.

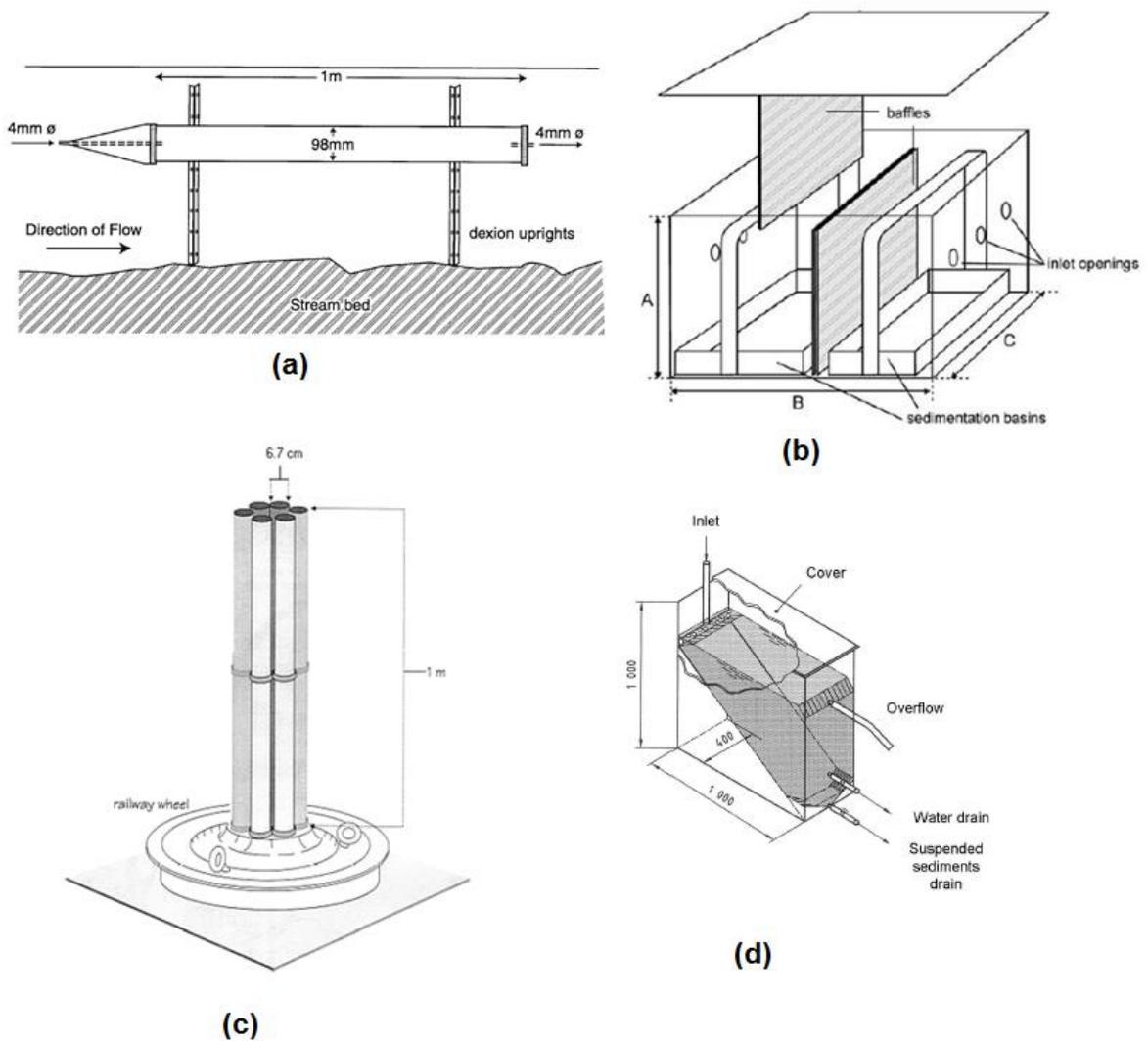


Figure 1. Exemples de pièges à particules décrits dans la littérature : (a) TIMS d'après Phillips *et al.* (2000) ; (b) Piège type GESB d'après Schulze *et al.* (2007) ; (c) Piège multitubes décrit par Marvin *et al.* (2002) ; (d) Piège en pente décrit par Pohlert *et al.* (2011).

Cette étude bibliographique montre que les pièges de type GESB ont généralement été déployés dans des cours d'eau de taille relativement importante comme le Rhône (Masson *et al.*, 2018), le Danube, le Rhin ou l'Elbe (Fliedner *et al.*, 2014). En revanche, le piège Phillips (TIMS) a fait l'objet de déploiements à la fois dans des petits cours d'eau, comme la Ravensbourne au Royaume-Uni (Mokwe-Ozonzeadi *et al.*, 2019), et des grands cours d'eau, comme la Save en Croatie (Lučić *et al.*, 2019). La Figure 2 donne une vision d'ensemble du type de cours d'eau où ont été déployés ces deux types de pièges à particules.

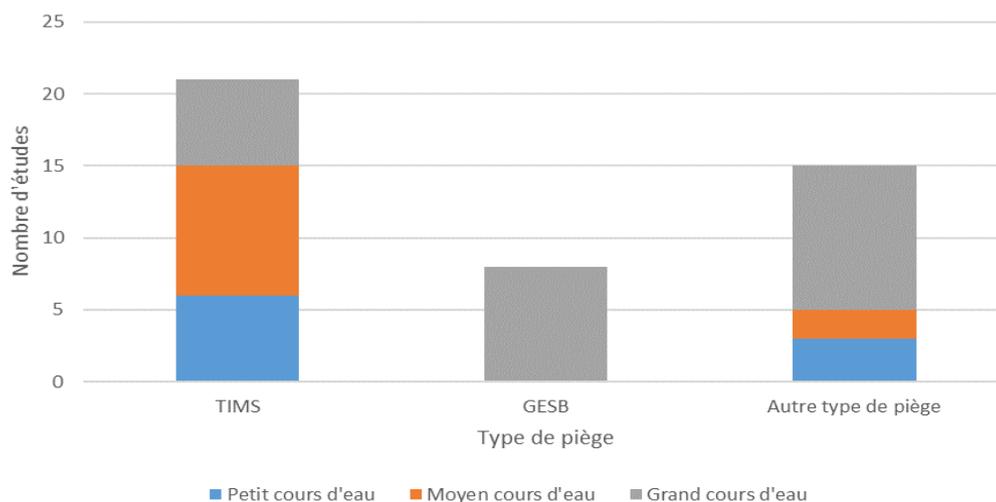


Figure 2. Répartition de l'utilisation des différents modèles de pièges à particules en fonction de la taille du cours d'eau.

Les familles de contaminants suivies lors de ces études sont variées et comprennent aussi bien des micropolluants inorganiques (métaux, principalement As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn), que des micropolluants organiques (principalement HAP, PCB et pesticides, notamment organochlorés). La majorité des études (30 sur 37) incluent également une mesure de paramètres majeurs, notamment l'étude de la granulométrie des échantillons prélevés (23 études) et de la teneur en carbone (CT, COT ou COP selon les études ; 18 études en tout). D'autres éléments peuvent également être suivis de façon plus épisodique, comme l'azote (azote total ou azote de Kjeldahl) ou le phosphore (total ou particulaire).

De plus, comme cela avait été souligné dans le rapport AQUAREF de Lardy-Fontan *et al.* (2016), les études ayant recours à des pièges à particules présentent des objectifs variés, notamment :

- Evaluer les caractéristiques et l'efficacité des pièges à particules, ainsi que leur potentiel d'utilisation dans le cadre de la surveillance ;
- Evaluer les matrices les plus adaptées pour l'étude de certains micropolluants ;
- Observer le lien avec le support biote, pour étudier par exemple la biodisponibilité des métaux ;
- Déterminer l'origine des particules à partir des traceurs chimiques des particules (en particulier avec les pièges Phillips).

2.3 EFFICACITE DU PIEGEAGE DES MES

L'efficacité de piégeage des MES est définie comme la capacité du piège à retenir les particules qui transitent à l'intérieur du piège. Elle peut par exemple être déterminée via des essais en laboratoire. La méthode usuelle consiste à placer le piège dans un milieu contrôlé avec une concentration connue de MES, et d'évaluer la masse de particules échantillonnées par le piège pendant une période donnée de déploiement. Il est ensuite possible d'estimer l'efficacité de piégeage par un simple ratio entre la quantité de MES retenues par le piège et la quantité totale de MES introduites.

Phillips *et al.* (2000) ont cherché à estimer l'efficacité de piégeage du TIMS via des expérimentations en laboratoire. Il ressort de ces essais que le TIMS piège entre 31% et 71% (en masse) des MES entrantes. Les auteurs notent une difficulté du piège à retenir les particules les plus fines (<2 µm), et constatent une diminution de l'efficacité de piégeage lorsque la vitesse d'écoulement à l'entrée du piège augmente. Ils attirent également l'attention sur le fait que les conditions expérimentales étaient défavorables (sédiment dispersé par ultrason avant utilisation du TIMS), et suggèrent que l'efficacité de piégeage devrait être supérieure en conditions réelles.

Smith & Owens (2014) ont proposé une évaluation critique du TIMS. Ils ont effectué des expérimentations à la fois en laboratoire, à l'aide d'un canal hydraulique, et sur le terrain pour estimer son efficacité. Leurs résultats concordent avec ceux présentés par Phillips *et al.* (2000), avec une efficacité de piégeage variant de 43% à 87% (en masse, cf. Figure 3) en fonction de la nature et de la granulométrie des sédiments étudiés (argile de type kaolinite ou sédiment de rivière tamisé à < 180 µm), et une efficacité de piégeage plus élevée pour les particules plus grosses.

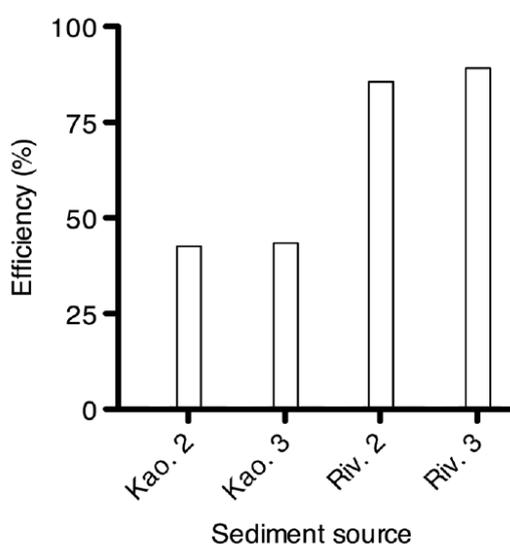


Figure 3. Efficacité de piégeage du TIMS obtenue sur des mises en suspension de kaolinite (Kao.) et de sédiment de rivière (Riv.) (figure modifiée d'après Smith & Owens, 2014).

La difficulté à échantillonner les particules les plus fines a également été observée pour d'autres types de pièges. Schulze *et al.* (2007) indiquent que le piège à particules de la GESB est moins performant pour collecter les particules, en particulier les particules les plus fines, dans des conditions de fortes vitesses d'écoulement (> 1 m/s) et dans des cours d'eau avec de faibles concentrations de MES. L'efficacité du piège de la GESB n'est toutefois pas directement quantifiée dans cette publication.

Dans le cadre des travaux de l'Observatoire des sédiments du Rhône (OSR), Berni *et al.* (2019) ont cherché à évaluer et à améliorer l'efficacité de piégeage de deux pièges type GESB : un piège standard, tel que décrit par Schulze *et al.* (2007), et un piège « réduit » (trois fois plus petit que le piège standard) adapté à l'échelle des expérimentations en canal hydraulique. Les résultats obtenus lors d'expériences menées à l'aide d'une alimentation en eau directe du piège concordent avec les observations effectuées dans d'autres études sur d'autres types de piège (Smith & Owens, 2014) : l'efficacité de piégeage diminue lorsque la vitesse de l'écoulement augmente et elle est plus élevée pour les particules les plus grossières (cf. Figure 4). Les auteurs ont ainsi pu établir une loi pour quantifier l'efficacité de piégeage en fonction du diamètre des particules et de

la vitesse de l'écoulement à l'entrée du piège. Cette loi permet de prédire les fractions granulométriques qui ne sont pas captées de façon efficace par le piège.

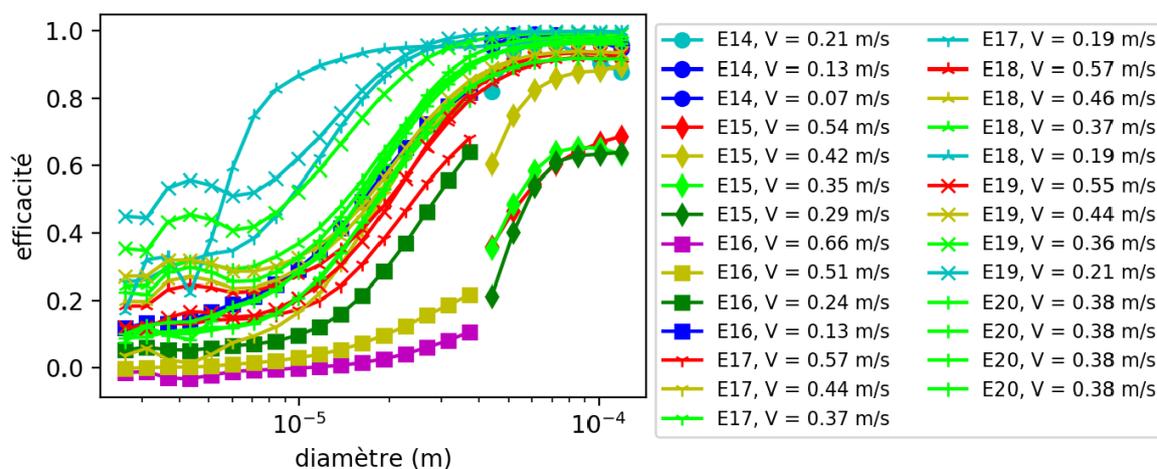


Figure 4. Efficacité de piégeage en fonction du diamètre des particules pour un piège de type GESB standard (symboles en croix) et miniature (symboles pleins) pour différentes expériences (E14 à E20) avec différentes vitesses d'écoulement (V) (d'après Berni *et al.*, 2019)

Dans un rapport de l'*Umweltbundesamt* (Agence fédérale allemande de l'environnement), Busch *et al.* (2006) indiquent également que le piège utilisé dans le cadre de leur étude ne retient pas les particules les plus fines (modèle de piège non précisé). Ils indiquent une efficacité de piégeage comprise entre 30% et 40%.

Les différentes études sur l'efficacité de piégeage des MES par différents types de pièges à particules (TIMS et GESB principalement) montrent donc que l'efficacité de piégeage des MES est principalement contrôlée par la vitesse de l'écoulement (l'efficacité diminue lorsque la vitesse de l'écoulement augmente). Par ailleurs, les pièges à particules montrent une plus grande efficacité de piégeage pour les particules les plus grossières, dont l'échantillonnage est encore plus favorisé lorsque la vitesse de l'écoulement est importante. Favoriser le piégeage de ces particules plus grossières peut ainsi induire un biais de la répartition granulométrique de l'échantillon par rapport à d'autres méthodes d'échantillonnage des MES (e.g. échantillonnage par filtration sur site ou par CFC).

2.4 BIAIS DE REPARTITION GRANULOMETRIQUE DES PIEGES A PARTICULES

2.4.1 Mise en évidence d'un biais granulométrique

Peu de travaux se sont véritablement penchés sur la comparaison entre un échantillonnage par piège à particules et un échantillonnage MES de « référence » (cf. Annexe 1). Très souvent, les travaux publiés ne font référence qu'à un seul mode d'échantillonnage des MES (le piège en l'occurrence). Lorsque les données de contamination des MES sont comparées à d'autres données, il s'agit en général de comparaison avec des données de contamination de sédiments de surface.

Néanmoins, plusieurs études constituent des exceptions notables. Leurs résultats sont présentés dans cette section. Les travaux synthésés dans le rapport AQUAREF de Dabrin *et al.* (2018) suggèrent l'existence d'un biais de répartition granulométrique des

MES prélevées par piège à particule (type GESB) par rapport à celles prélevées par CFC. Les résultats ont en effet montré que les MES prélevées au moyen de piège de type GESB étaient plus grossières que celles prélevées par CFC dans le cas d'échantillonnages effectués dans le Rhône (cf. Figure 5).

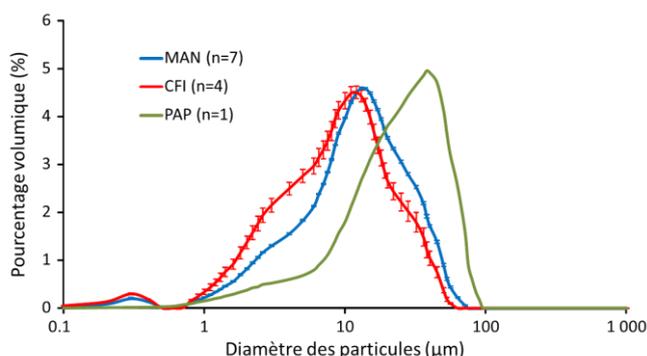


Figure 5 : Mise en évidence d'un biais granulométrique entre les échantillonnages effectués par piège à particules de type GESB (PAP, en vert) et les échantillonnages effectués par centrifugation en continu (CFI, en rouge) ou manuellement (MAN, en bleu) (d'après Dabrin *et al.*, 2018)

- Piège tubulaire (TIMS) d'après Phillips *et al* (2000)

Dès la présentation de l'outil TIMS, Phillips *et al.* (2000) ont comparé, lors d'essais sur le terrain, la granulométrie d'échantillons prélevés avec le TIMS avec celle d'échantillons prélevés manuellement. Le piège TIMS a ainsi été déployé dans un petit cours d'eau, la Gilwiskaw Brook (superficie du bassin versant : 2,6 km², débits moyens observés de 40 à 150 L/s en fonction des sites). Les résultats ont montré que les échantillons prélevés par le TIMS étaient légèrement plus grossiers que ceux prélevés manuellement (cf. Figure 6). Toutefois, ces différences ne sont pas identifiées comme statistiquement significatives (test de Kolmogorov-Smirnov). De même, aucune différence significative n'a été identifiée entre les teneurs en COT dans les MES prélevées par le TIMS et prélevées manuellement. Les auteurs en concluent que le TIMS échantillonne des MES globalement représentatives du milieu.

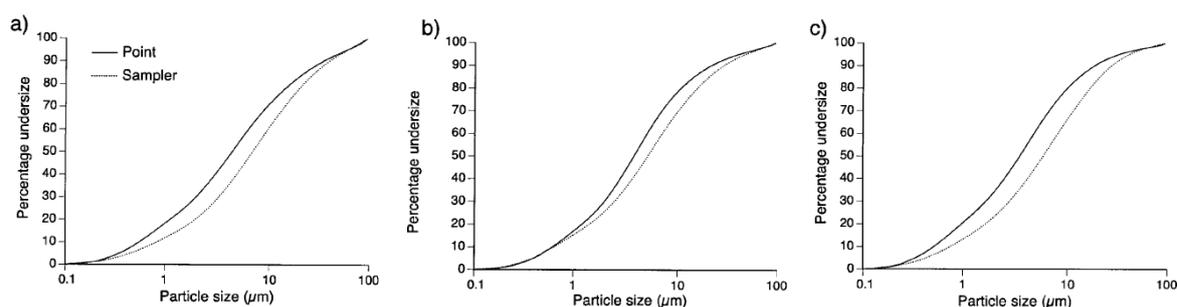


Figure 6 : Comparaison entre les granulométries d'échantillons de MES prélevés manuellement (ligne continue) et par piège à particules (type Phillips, ligne en pointillés) sur trois sites d'échantillonnage différents (a, b et c) sur la Gilwiskaw Brook (d'après Phillips *et al.*, 2000).

McDonald *et al.* (2010) ont effectué un déploiement unique de deux TIMS légèrement modifiés (l'un fixe dans le cours d'eau et l'autre disposant d'une certaine mobilité verticale dans la colonne d'eau) dans un cours d'eau en milieu arctique. Ce milieu est caractérisé par de très fortes variations journalières et hebdomadaires en termes de débit, de concentrations en MES et de granulométrie des MES. Les échantillons prélevés

par les TIMS se sont avérés significativement différents des échantillons prélevés manuellement (granulométrie bien plus grossière), et donc peu représentatifs du milieu étudié. Toutefois, il s'agit de conditions particulières de déploiement par rapport aux autres études ayant eu recours à un TIMS pour échantillonner des MES.

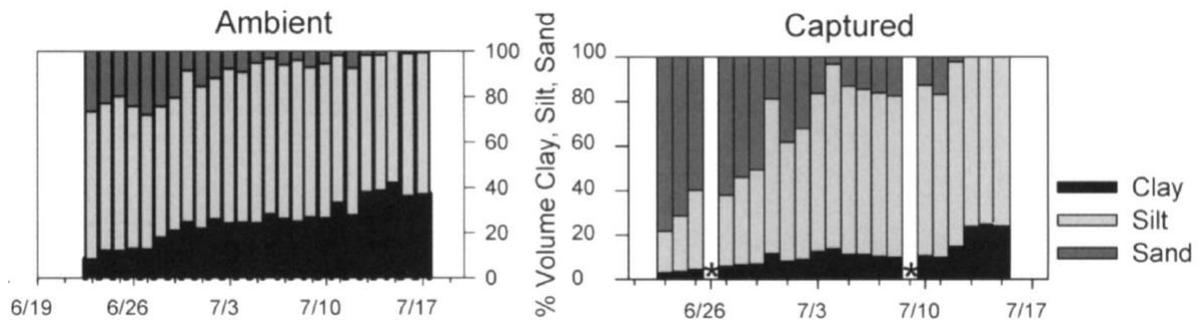


Figure 7 Granulométrie de MES en milieu arctique obtenues à différentes dates (en abscisse) par échantillonnage manuel (*Ambient*, à gauche) et par piège à particules type TIMS (*Captured*, à droite), exprimée en proportion d'argiles, de limons et de sables (figure modifiée d'après McDonald *et al.*, 2010).

Keßler *et al.* (2020) ont cherché à comparer les propriétés d'échantillons de MES prélevées par différentes techniques, y compris un piège à particules type TIMS et un échantillonnage par CFC. Le TIMS a été déployé dans deux grands cours d'eau, la Moselle (débit moyen : 322 m³/s) et le Rhin (débit moyen : 1 200 m³/s), sur une durée d'un mois (plusieurs déploiements entre août 2013 et août 2014). Leurs résultats montrent également que les échantillons prélevés par CFC sont légèrement plus fins que ceux réalisés par le piège à particules (cf. Figure 8).

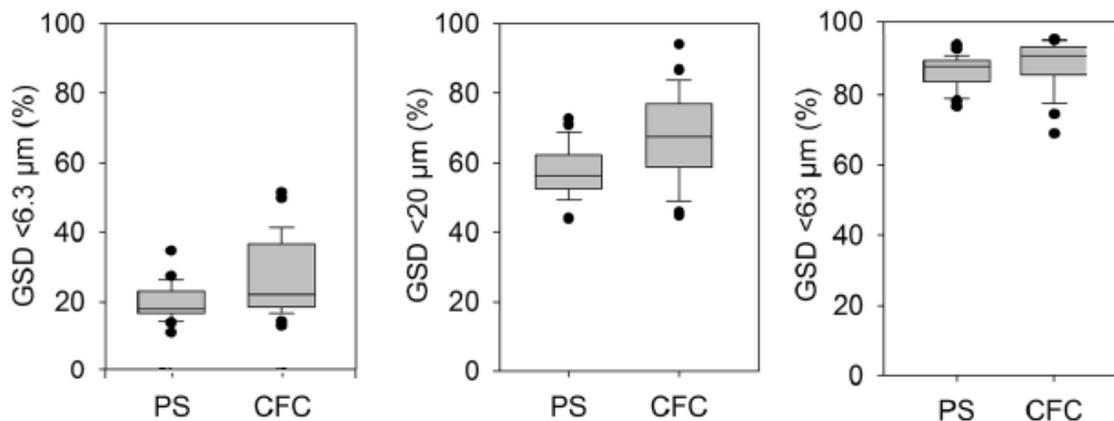


Figure 8. Proportions de particules de diamètre inférieur à 6,3 µm (à gauche), 20 µm (au milieu) et 63 µm (à droite) dans des échantillons de MES prélevés par piège Phillips modifié (PS, n = 27) et centrifugation en continu (CFC, n = 26) (figure modifiée d'après Keßler *et al.*, 2020).

- Piège de type GESB d'après Schulze *et al.* (2007)

Masson *et al.* (2018) ont déployé un piège à particules type GESB dans le Rhône à Jons (2 semaines de déploiement), et ont également procédé à des échantillonnages de MES par CFC. Leurs résultats, qui s'échelonnent sur une durée de 4 ans, montrent également un biais dans la répartition granulométrique, induisant l'échantillonnage de particules plus grossières par le piège à particules (type GESB) par rapport aux échantillonnages par CFC. Ce résultat est observé à la fois dans les échantillons prélevés en régime de base et dans ceux prélevés en période de crue (cf. Figure 9).

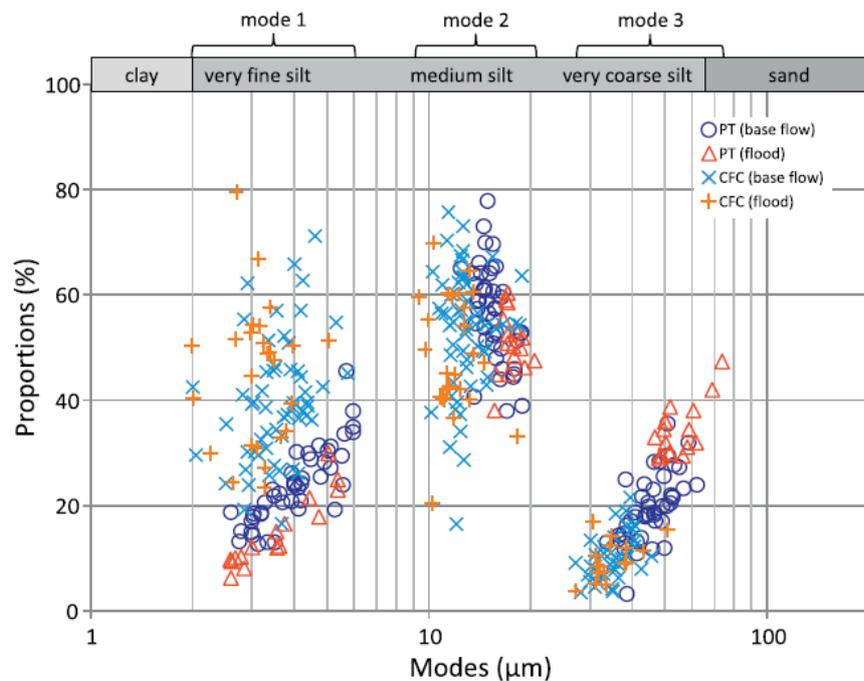


Figure 9. Proportions des différents modes granulométriques déterminés sur des échantillons de MES prélevés par piège type GESB (cercles violets et triangles rouges) et par CFC (croix bleues et oranges) (d'après Masson *et al.*, 2018).

- Autres types de pièges à particules

Busch *et al.* (2006) rendent compte de travaux sur la contamination des MES, MES prélevées à la fois au moyen d'un piège à particules (modèle non précisé) et par CFC. Le piège à particules a été déployé à plusieurs reprises pendant un mois sur un site du Rhin (débit moyen : 2 200 m³/s) entre juin 2005 et mars 2006. Comme pour les pièges de type TIMS ou GESB, les MES prélevées par le piège utilisé dans cette étude sont plus grossières que celles prélevées par CFC (différences statistiquement significatives entre les deux modes d'échantillonnages, cf. Figure 10).

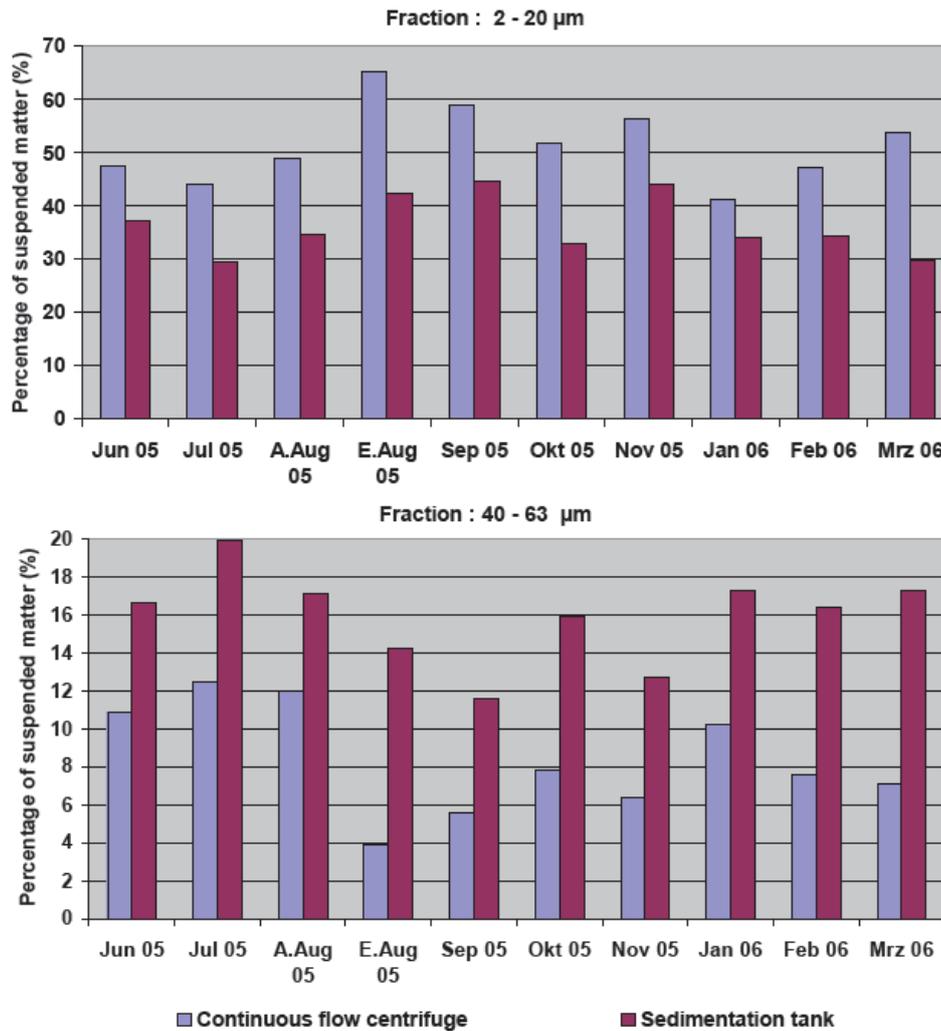


Figure 10. Proportions de particules de diamètre compris entre 2 et 20 µm (en haut) et entre 40 et 63 µm (en bas) dans les MES prélevées par CFC (histogrammes mauves) et par piège à particules (histogrammes magenta) (d'après Busch *et al.*, 2006).

De même, Pohlert *et al.* (2011) ont effectué des échantillonnages de MES à la fois à l'aide d'un piège à particules (piège « en pente » décrit en détail dans leur article) et à l'aide d'une CFC pour l'analyse des PCB et de l'hexachlorobenzène. Le piège a été déployé à plusieurs reprises, sur une durée d'un mois sur l'ensemble de l'année 2005, sur un site du Rhin. Leurs résultats montrent également que les particules prélevées par le piège sont plus grossières que celles prélevées par CFC (cf. Figure 11).

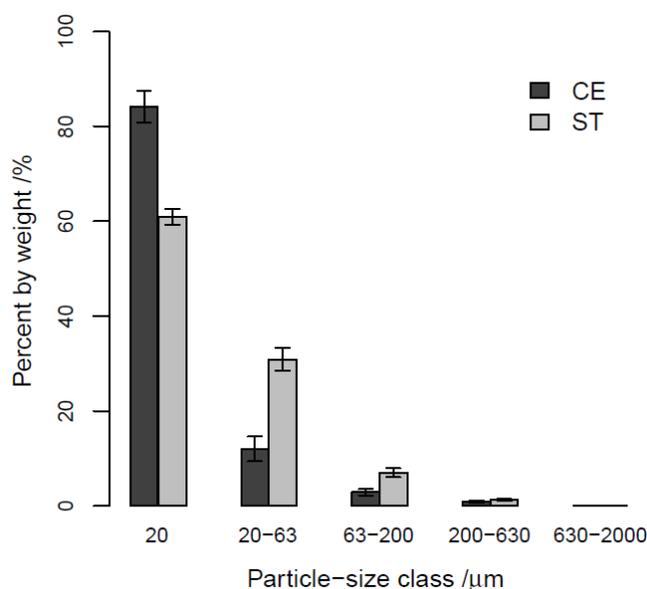


Figure 11. Distribution granulométrique d'échantillons de MES prélevés par centrifugation en continu (CE) et piège à particules (modèle en pente) (ST) (figure modifiée d'après Pohlert *et al.*, 2011).

En conclusion, les différentes études s'intéressant aux différences entre la répartition granulométrique des échantillons de MES prélevés par piège à particules et par d'autres méthodes pouvant être considérées comme des méthodes de référence (échantillonnages ponctuels ou CFC) tendent à montrer que les échantillons prélevés par piège présentent une fraction plus importante de particules plus grossières que les échantillonnages ponctuels ou par CFC. Ces observations rejoignent celles indiquées dans la section 1.1 concernant l'efficacité des pièges à particules.

2.4.2 Influence du biais de répartition granulométrique sur les concentrations en micropolluants dans les MES

Il a été montré que les contaminants ont tendance à s'adsorber sur les particules : les plus fines, en raison de leur plus grande surface spécifique, sont donc susceptibles de supporter davantage de micropolluants (Olsen *et al.*, 1982). Dès lors, il est possible qu'une différence significative dans la granulométrie des échantillons prélevés par piège à particules et par CFC ait une influence sur les concentrations en paramètres majeurs (e.g. COT) et en contaminants (organiques ou inorganiques).

Russell *et al.* (2000) ont procédé à des comparaisons entre des MES prélevées par un TIMS et des MES prélevées manuellement. Le TIMS a ainsi été déployé pendant un mois (un seul déploiement) dans un petit cours d'eau, la Gilwiskaw Brook (superficie du bassin versant : 2,6 km², débits moyens observés de 40 à 150 L/s en fonction des sites). La granulométrie des échantillons prélevés n'a pas été caractérisée. Toutefois, les auteurs concluent que le TIMS prélève des MES représentatives du milieu en termes notamment de métaux et de certains paramètres majeurs (carbone, azote et phosphore totaux), n'identifiant aucune différence statistiquement significative entre les deux types d'échantillonnage.

Busch *et al.* (2006) ont mesuré les concentrations en métaux, PCB et HAP dans des échantillons de MES prélevés par piège à particule (modèle non précisé) et par CFC. Plusieurs déploiements ont été effectués pendant un mois sur un site du Rhin (débit

moyen : 2 200 m³/s) entre juin 2005 et mars 2006. Ils notent des concentrations significativement (t-test, niveau de signification de 5%) plus élevées pour les échantillonnages effectués par CFC pour le plomb, le cadmium et le nickel pour les métaux (cf. Figure 12) ; et pour le benzo[a]pyrène et le benzo[b]fluoranthène pour les HAP. Toutefois, ces résultats sont à nuancer puisque ces différences ne prennent pas en compte les incertitudes analytiques. Aucune différence significative entre les concentrations dans les MES issues des deux modes d'échantillonnage n'est en revanche observée pour les PCB.

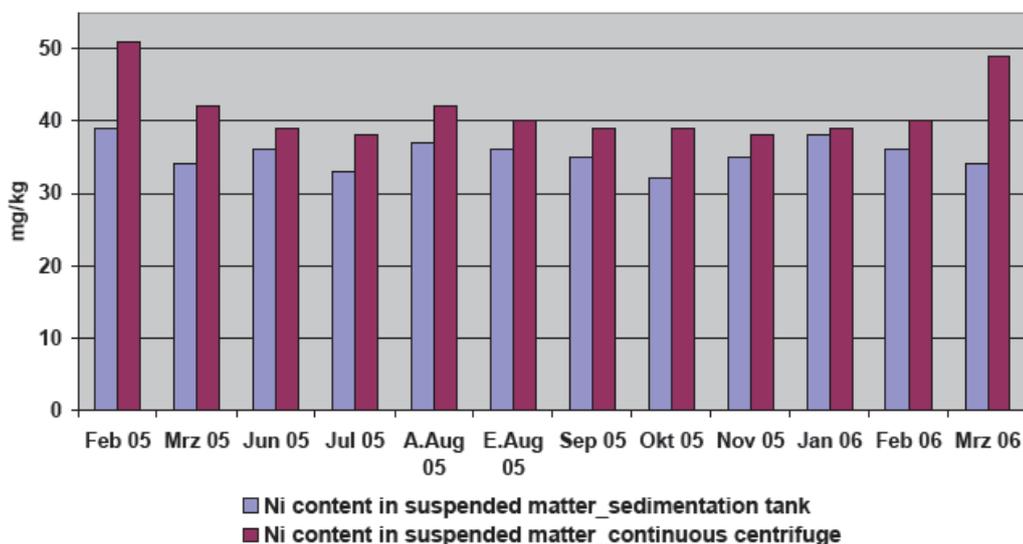


Figure 12. Concentrations en nickel (en mg/kg) obtenues dans des MES prélevées par piège à particules (mauves) et par CFC (magenta) (d'après Busch *et al.*, 2006).

Pohlert *et al.* (2011) n'ont pas noté de différences significatives entre les concentrations en PCB observées sur les particules échantillonnées par leur piège (modèle « en pente ») et par CFC (déploiement du piège à plusieurs reprises pendant un mois dans le Rhin). En revanche, ils ont obtenu des concentrations plus élevées en hexachlorobenzène dans les échantillons prélevés par CFC.

Masson *et al.* (2018) ont également étudié l'influence du biais de répartition granulométrique sur les concentrations en micropolluants (mercure et PCB) dans les MES prélevées par un piège de type GESB dans le Rhône. Ils concluent que ce biais de répartition granulométrique ne semble pas induire de différence significative dans les concentrations en PCB et en mercure. La Figure 13 montre ainsi, pour l'exemple du mercure, que l'erreur absolue (différence entre la concentration obtenue dans les MES prélevées par piège et celle obtenue dans les MES prélevées par CFC) reste pour la plupart des échantillons dans les limites de l'erreur analytique (courbes grises). Si un effet granulométrique sur les concentrations en Hg ne peut totalement être écarté, il semble être faible par rapport aux incertitudes analytiques et au phénomène de différence d'intégration entre piège et CFC (les erreurs relatives de Hg les plus élevées étaient liées aux concentrations de Hg les plus élevées mesurées dans les échantillons de piège et s'expliquaient par la contribution ponctuelle d'un affluent enrichi en Hg pendant la période de déploiement de la PT).

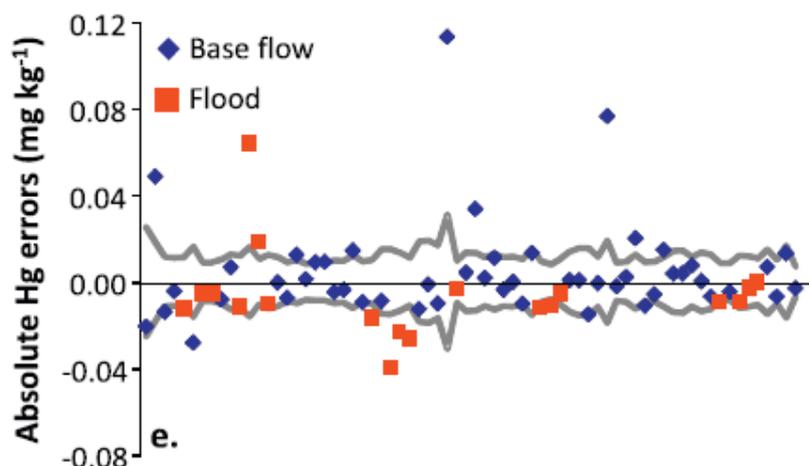


Figure 13. Erreur absolue de la concentration en mercure dans les MES prélevées par piège type GESB par rapport à la concentration de référence (échantillonnage CFC). Les courbes grises représentent l'erreur analytique (d'après Masson *et al.*, 2018).

Keßler *et al.* (2020) ont comparé les résultats obtenus lors d'analyse de paramètres majeurs (COT et phosphore particulaire) et de micropolluants (métalliques et organiques) réalisées sur des MES prélevées par différentes techniques. Parmi ces techniques, un piège type Phillips modifié et un échantillonnage par CFC ont été employés (plusieurs déploiements pendant un mois, d'août 2013 à août 2014, dans le Rhin et la Moselle). Les résultats montrent que les teneurs en COT sont significativement supérieures dans les échantillons prélevés par CFC (cf. Figure 14). Les teneurs en phosphore particulaire sont également plus élevées dans les échantillons prélevés par CFC, mais les différences ne sont pas statistiquement significatives.

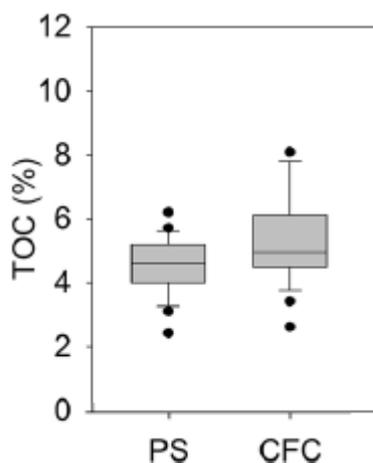


Figure 14. Teneurs en COT obtenues dans des échantillons de MES prélevés par piège Phillips modifié (PS, n = 27) et centrifugation en continu (CFC, n = 26) (figure modifiée d'après Keßler *et al.*, 2020)

Le biais de répartition granulométrique induit par l'échantillonnage par un piège à particules peut influencer les concentrations en contaminants dans la mesure où les contaminants peuvent présenter des affinités différentes en fonction de la taille des particules. Il est donc important de bien mesurer la distribution granulométrique des échantillons de MES prélevés pour interpréter correctement les résultats obtenus en termes de contamination et, le cas échéant, procéder à une normalisation des résultats par la granulométrie.

2.5 ALTERATION DES MES ECHANTILLONNEES

Les possibilités d'une altération des échantillons de MES conservés dans le piège à particules au cours de la durée de déploiement des dispositifs d'échantillonnage, et pouvant entraîner une modification des concentrations en contaminants, sont très peu documentées dans la littérature. Les quelques publications qui mentionnent cette question ne présentent pas de résultats en particulier et émettent simplement quelques hypothèses, indiquant que cette problématique mériterait d'être approfondie.

Ainsi, dès la présentation du piège à particules de type GESB, Schulze *et al.* (2007) reconnaissent qu'une altération des échantillons au cours de la période d'étude est possible, mais soulignent la difficulté d'estimer l'ampleur de cette altération, notamment sur le plan pratique et économique (nécessité de collecter fréquemment suffisamment de MES). De même, Masson *et al.* (2018) attirent l'attention sur les possibilités d'une dégradation de la matière organique dans le piège, et identifient des différences entre les teneurs en COP mesurées dans les MES échantillonnées par piège à particules par rapports aux teneurs mesurées dans les MES échantillonnées par CFC lors du déploiement et de la récupération du piège (cf. Figure 15). Cette alternance de différences positives ou négatives pourrait être dues à des alternances de production (e.g. d'origine bactérienne) et de dégradation de matière organique.

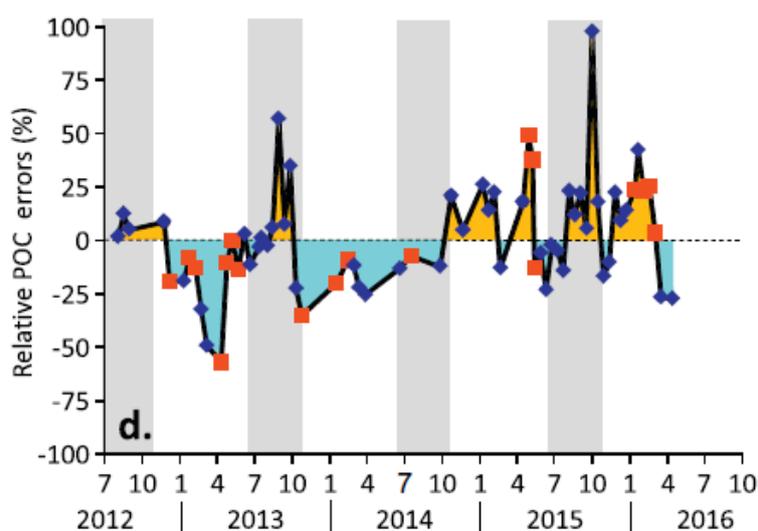


Figure 15. Evolution de l'erreur relative (différence de la concentration mesurée dans les MES échantillonnées par un piège à particules et celles mesurées dans les MES échantillonnées par CFC lors du déploiement et de la récupération du piège) sur la teneur en COP lors de déploiements successifs d'un piège type GESB sur un même site (marqueurs bleus : mesure en régime de base ; marqueurs rouges : mesure en période de crue ; bandes grises : été et début automne)

Pohlert *et al.* (2011) évoquent également l'influence possible des nutriments et la dégradation de composés organiques volatils ou hydrophiles. Busch *et al.* (2006), Lučić *et al.* (2019) et Mokwe-Ozonzeadi *et al.* (2019) formulent des remarques similaires, mais ne présentent pas d'études spécifiques sur le sujet, indiquant seulement qu'un approfondissement de cette question est souhaitable.

Dans leur revue des différentes méthodes d'échantillonnage des MES, Schubert *et al.* (2012) évoquent également cette possible altération via la dégradation de la matière organique ou les phénomènes de diagénèse précoce, citant les travaux de Petersen *et*

al. (1995). Toutefois, ils ne retiennent pas cet aspect comme un inconvénient ou un frein à l'utilisation des pièges à particules dans une perspective de surveillance chimique.

3. CONCLUSION

Une étude bibliographique a été menée sur l'utilisation des pièges à particules dans un contexte de surveillance de la contamination des milieux aquatiques. Au total, 37 publications (publications dans des journaux à comité de lecture, thèses et rapports d'étude) ont été sélectionnées et étudiées.

Cette étude bibliographique montre que les pièges à particules sont des outils d'échantillonnage intégratif fréquemment utilisés pour évaluer la répartition granulométrique, les paramètres physico-chimiques et les concentrations en contaminants (e.g. métaux, organiques hydrophobes tels que HAP, PCB) des MES dans les cours d'eau. Différents types de pièges sont utilisés en fonction des objectifs et du site étudié : ainsi, le piège type GESB est le plus largement utilisé lors d'échantillonnages réalisés dans de grands cours d'eau tels que le Rhin ou le Rhône ; tandis que le piège TMS est plus souvent cité pour les plus petits cours d'eau. Les différentes études concluent que les pièges à particules permettent des échantillonnages intégratifs et représentatifs de la période d'échantillonnage, et offrent donc un complément pertinent de la surveillance sur la matrice sédiment (Yari et al., 2017).

En comparaison avec d'autres modes d'échantillonnage des MES (CFC ou échantillonnage ponctuel), les différentes études sur l'efficacité des pièges à particules montrent que ces derniers retiennent plus difficilement les particules les plus fines, qui transitent par le piège sans être retenues à l'intérieur. L'efficacité de piégeage est également affectée par la vitesse de l'écoulement à l'entrée du piège, et diminue à mesure que cette dernière augmente. Les MES prélevées par piège à particules sont généralement plus grossières que celles prélevées par CFC ou par échantillonnage ponctuel. Toutefois, l'influence de ce biais de répartition granulométrique sur les concentrations en contaminants a rarement été mise en évidence de façon univoque. Selon les conditions expérimentales et les substances étudiées, les concentrations en contaminants obtenues dans des MES prélevées par piège à particules peuvent être plus ou moins significativement différentes de celles obtenues dans des MES prélevées par une autre technique considérée de référence. Ainsi, les PCB semblent peu affectés par ce biais de répartition granulométrique (Busch *et al.*, 2006 ; Pohlert *et al.*, 2001 ; Masson *et al.*, 2018), tandis que les métaux y semblent plus sensibles (Busch *et al.*, 2006).

Enfin, la problématique de l'altération éventuelle des MES piégées à l'intérieur du piège au cours de la période d'échantillonnage (par dégradation de la matière organique notamment) s'avère être très peu documentée. Si plusieurs publications évoquent cette possibilité, aucune étude spécifique sur le sujet n'a été publiée.

Ainsi, cette étude bibliographique démontre qu'il est nécessaire de définir avec précision l'influence du biais de répartition granulométrique sur les concentrations en contaminants et ce, dans des conditions contrastées de débit et de charge en MES. De plus, le faible nombre d'études menées en petits cours d'eau (9 études sur 37) avec ce type d'échantillonnage des MES nécessite un approfondissement du type d'outil à déployer dans des petits cours d'eau (superficie du bassin versant inférieure à 10 km²).

Un autre aspect qui devra être abordé, via des approches *in situ*, sera la détermination de l'influence de possibles processus d'oxydoréduction à l'intérieur du piège à particules, qui peuvent influencer la dégradation ou la transformation des contaminants organiques au cours du temps.

4. BIBLIOGRAPHIE

Berni, C., Bonenfant, Y., Buffet, A., Camenen, B., Le Bescond, C., Le Coz, J., Lepage, H., Masson, M., Thollet, F. *Etude et amélioration de l'efficacité d'échantillonnage des pièges à particules*. Rapport OSR5 2018-2020, 2019, p. 50.

Bona, F., Doretto, A., Falasco, E., La Morgia, V., Piano, E., Ajassa, R., Fenoglio, S. *Increased sediment loads in alpine streams: an integrated field study*, River Research and Applications, 32, 2016, pp. 1316-1326.

Busch, D., Furtmann, K., Schneiderwind, A., Zyuzina, I., Reupert, R., Sielex, L. *Effects of sampling and sample preparation on results during determination of selected priority substances according to the Water Framework Directive*, Rapport de recherche 204.22.213 de l'Umweltbundesamt, 2006, p. 162.

Chiffre, A., Degiorgi, F., Morin-Crini, N., Bolard, A., Chanez, E., Badot, P-M. *PAH occurrence in chalk river systems from the Jura region (France). Pertinence of suspended particulate matter and sediments as matrices for river quality monitoring*, Environmental Science and Pollution Research, 22, 2015, pp. 17486-17498.

Ciffroy, P., Vazelle, D., Mataix, V., Taconnet, J., Estèbe, A., Thévenot, D., Bourguignon, O., Idlafikh, Z., Meybeck, M. *Intercomparaison de méthodes d'échantillonnage des matières en suspension en milieu fluvial : application à la mesure de la concentration en micropolluants métalliques*, Hydroécologie appliquée, 11, 1999, pp. 71-102.

Dabrin, A., Masson, M., Le Bescond, C., Coquery, M. *Représentativité des matières en suspension échantillonnées par les pièges à particule dans les cours d'eau*, Rapport AQUAREF 2018, p. 27.

Doriean, N.J.C., Teasdale, P.R., Welsh, D.T., Brooks, A.P., Bennett, W.W. *Evaluation of a simple, inexpensive, in situ sampler for measuring time-weighted average concentrations of suspended sediment in rivers and streams*, Hydrological Processes, 33, 2019, pp. 678-686.

Droppo, I.G., Cenzo, P., Power, J., Jaskot, C., Chambers, P.A., Alexander, A.C., Kirk, J., Muir, D. *Temporal and spatial trends in riverine suspended sediment and associated polycyclic aromatic compounds (PAC) within the Athabasca oil sands region*, Science of the Total Environment, 626, 2018, pp. 1382-1393.

Fliedner, A., Rüdell, H., Knopf, B., Weinfurtner, K., Paulus, M., Ricking, M., Koschorreck, J. *Spatial and temporal trends of metals and arsenic in German freshwater compartments*, Environmental Science and Pollution Research, 21, 2014, pp. 5521-5536.

Gautam, P. *Monitoring Antimicrobials, Triclosan and Triclocarban, using Active and Passive Sampling Techniques in Fountain Creek and Arkansas River, CO*, Thèse de master, Université du Colorado, 2012, p. 104.

Haddachi, A., Olley, J., Pietsch, T. *Quantifying sources of suspended sediment in three size fractions*, Journal of Soils and Sediments, 15, 2015, pp. 2086-2100.

Jia, J., Thiessen, L., Schachtschneider, J., Waltho, J., Marvin, C. *Contaminant Trends in Suspended Sediments in the Detroit River-Lake St. Clair-St. Clair River Corridor, 2000 to 2004*, Water Quality Research Journal of Canada, 1, 2010, pp. 69-80.

Keßler, S., Pohlert, T., Breitung, V., Wilcsek, K., Bierl, R. *Comparative evaluation of four suspended particulate matter (SPM) sampling devices and their use for monitoring SPM quality*, Environmental Science and Pollution Research, 27, 2020, pp. 5993-6008.

Kotthoff, M., Rüdél, H., Jüriling, H. *Detection of tetrabromobisphenol A and its mono- and dimethyl derivatives in fish, sediment and suspended particulate matter from European freshwaters and estuaries*, Analytical and Bioanalytical Chemistry, 409, 2017, pp. 3685-3694.

Lardy-Fontan, S., Guigues, N., Dabrin, A., Masson, M. *Les pièges à sédiment et matières en suspension (MES) : Principes, état de l'art et perspectives pour la surveillance des milieux aquatiques*. Rapport AQUAREF 2016, p. 32.

Lučić, M., Jurina, I., Ščančar, J., Mikac, N., Vdović, N. *Sedimentological and geochemical characterization of river suspended particulate matter (SPM) sampled by time-integrated mass flux sampler (TIMS) in the Sava River (Croatia)*, Journal of Soils and Sediments, 19, 2019, pp. 989-1004.

Macedo-Neto, D., Froehner, S., Sanez, J. *Spatial variation of metals and phosphorus in sediments of a river influenced by urbanization*, Revista Brasileira de Recursos Hídricos, 22, 2017.

Martinez-Carreras, N., Krein; A., Gallart, F., Iffly, J-F., Hissler, C., Pfister, L., Hoffmann, L., Owens, P.N. *The Influence of Sediment Sources and Hydrologic Events on the Nutrient and Metal Content of Fine-Grained Sediments (Attert River Basin, Luxembourg)*, Water, Air, & Soil Pollution, 223, 2012, pp. 5685-5705.

Marttila, H., Kløve, B. *Spatial and temporal variation in particle size and particulate organic matter content in suspended particulate matter from peatland-dominated catchments in Finland*, Hydrological Processes, 29, 2015, pp. 1069-1079.

Marvin, C., Alae, M., Painter, S., Charlton, M., Kauss, P., Kolic, T., MacPherson, K., Takeuchi, D., Reiner, E. *Persistent organic pollutants in Detroit River suspended sediments: polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans, dioxin-like polychlorinated biphenyls and polychlorinated naphthalenes*, Chemosphere, 49, 2002, pp. 111-120.

Marvin, C.H., Tomy, G.T., Alae, M., MacInnis, G. *Distribution of hexabromocyclododecane in Detroit River: suspended sediments*, Chemosphere, 64, 2006, pp. 268-275.

Marvin, C., Waltho, J., Jia, J., Burniston, D. *Spatial distributions and temporal trends in polybrominated diphenyl ethers in Detroit River suspended sediments*, Chemosphere, 91, 2013, pp. 778-783.

Masson, M., Angot, H., Le Bescond, C., Launay, M., Dabrin, A., Miège, C., Le Coz, J., Coquery, M. *Sampling of suspended particulate matter using particle traps in the Rhône River: Relevance and representativeness for the monitoring of contaminants*, Science of the Total Environment, 637-638, 2018, pp. 538-549.

McDonald, D., Lamoureux, S.F., Warburton, J. *Assessment of a time-integrated fluvial suspended sediment sampler in a high arctic setting*, *Geografiska Annaler. Series A, Physical Geography*, 92, 2010, pp. 225-235.

Mokwe-Ozonzeadi, N., Foster, I., Valsami-Jones, E., McEldowney, S. *Trace metal distribution in the bed, bank and suspended sediment of the Ravensbourne river and its implication for sediment monitoring in an urban river*, *Journal of Soils and Sediments*, 19, 2019, pp. 946-963.

Olsen, C.R., Cutshall, N.H., Larsen, I.L. *Pollutant particle associations and dynamics in coastal marine environments - a review*, *Marine Chemistry*, 11, 1982, pp. 501-533.

Perks, M.T., Warburton, J., Bracken, L. *Critical assessment and validation of a time-integrating fluvial suspended sediment sampler*, *Hydrological Processes*, 28, 2014, pp. 4795-4807.

Petersen, W., Wallman, K., Pinglin, L., Schroeder, F., Knauth, H.D. *Exchange of trace elements at the sediment-water interface during early diagenesis processes*, *Marine and Freshwater Research*, 46, 1995, pp. 19-26.

Phillips, J.M., Russell, M.A., Walling, D.E. *Time-integrated sampling of fluvial suspended sediment: a simple methodology for small catchments*, *Hydrological Processes*, 14, 2000, pp. 2589-2602.

Pohlert, T., Hillebrand, G., Breitung, V. *Effects of sampling techniques on physical parameters and concentrations of selected persistent organic pollutants in suspended matter*, *Journal of Environmental Monitoring*, 13, 2011, pp. 1579-1588.

Poulier, G., Launay, M., Le Bescond, C., Thollet, F., Coquery, M., Le Coz, J. *Combining flux monitoring and data reconstruction to establish annual budgets of suspended particulate matter, mercury and PCB in the Rhône River from Lake Geneva to the Mediterranean Sea*, *Science of the Total Environment*, 658, 2019, pp. 457-473.

Priadi, C., Bourgeault, A., Ayrault, S., Gourlay-Francé, C., Tusseau-Vuillemin, M.H., Bonté, P., Mouchel, J.-M. *Spatio-temporal variability of solid, total dissolved and labile metal: passive vs. discrete sampling evaluation in river metal monitoring*, *Journal of Environmental Monitoring*, 13, 2011, pp. 1470-1479.

Pulley, S., Foster, I., Antunes, P. *The dynamics of sediment-associated contaminants over a transition from drought to multiple flood events in a lowland UK catchment*, *Hydrological Processes*, 30, 2016, pp. 704-719.

Pulley, S., Goubet, A., Moser, I., Browning, S., Collins, A.L. *The sources and dynamics of fine-grained sediment degrading the Freshwater Pearl Mussel (*Margaritifera margaritifera*) beds of the River Torridge, Devon, UK*, *Science of the Total Environment*, 657, 2019, pp. 420-434.

Reinemann, L., Schemmer, H. *Neuartige Schwebstoffsammler zur Gewinnung von Schwebstoffen aus fließenden Gewässern*, *Deutsche Gewässerkundliche Mitteilungen*, 38, 1994, pp. 22-25.

Rüdel, H., Böhmer, W., Müller, M., Fliedner, A., Ricking, M., Teubner, D., Schröter-Kermani, C. *Retrospective study of triclosan and methyl-triclosan residues in fish and suspended particulate matter: Results from the German Environmental Specimen Bank*, *Chemosphere*, 91, 2013, pp. 1517-1524.

Rüdel, H., Müller, J., Nowak, J., Ricking, M., Klein, R., Kotthoff, M. *Hexabromocyclododecane diastereoisomers in fish and suspended particulate matter from selected European waters - trend monitoring and environmental quality standard compliance*, Environmental Science and Pollution Research, 24, 2017, pp. 18048-18062.

Russell, M.A., Walling, D.E., Hodgkinson, R.A. *Appraisal of a simple sampling device for collecting time-integrated fluvial suspended sediment samples*, The role of erosion and sediment transport in nutrient and contaminant transfer. Proceedings of a symposium held at Waterloo, Ontario, Canada in July 2000, 2000, pp.119-127.

Schindler Wildhaber, Y., Michel, C., Burkhardt-Holm, P., Bänninger, D., Alewell, C. *Measurement of spatial and temporal fine sediment dynamics in a small river*, Hydrology and Earth System Sciences, 16, 2012, pp. 1501-1515.

Schubert, B., Heiniger, P., Keller, M., Ricking, M., Claus, E. *Monitoring of contaminants in suspended particulate matter as an alternative to sediments*, Trends in Analytical Chemistry, 36, 2012, pp. 58-70.

Schulze, T., Ricking, M., Schröter-Kermani, C., Körner, A., Denner, H-D., Weinfurtner, K., Winkler, A., Pekdeger, A. *The German Environmental Specimen Bank. Sampling, processing, and archiving sediment and suspended particulate matter*, Journal of Soils and Sediments, 7, 2007, pp. 361-367.

Schulze, T., Ulrich, M., Maier, D., Maier, M., Terytze, K., Braunbeck, T., Hollert, H. *Evaluation of the hazard potentials of river suspended particulate matter and floodplain soils in the Rhine basin using chemical analysis and in vitro bioassays*, Environmental Science and Pollution Research, 22, 2015, pp. 14606-14620.

Singh, S.K., Stenger, R. *Indirect Methods to Elucidate Water Flows and Contaminant Transfer Pathways through Meso-scale Catchments - a Review*, Environmental Processes, 5, 2018, pp. 683-706.

Smalling, K.L., Reilly, T.J., Sandstrom, M.W., Kuiliva, K.M. *Occurrence and persistence of fungicides in bed sediments and suspended solids from three targeted use areas in the United States*, Science of the Total Environment, 447, 2013, pp. 179-785.

Smith, T.B., Owens, P.N. *Flume- and field-based evaluation of a time-integrated suspended sediment sampler for the analysis of sediment properties*, Earth Surface Processes and Landforms, 39, 2014, pp. 1197-1207.

Tessier, L. *Transport et caractérisation des matières en suspension dans le bassin versant de la Seine : identification de signatures naturelles et anthropiques*, Thèse de doctorat, Ecole nationale des Ponts et Chaussées, 2003, p. 349.

Vane, C.H., Rawlins, B.G., Kim, A.W., Moss-Hayes, V., Kendrick, C.P., Leng, M.J. *Sedimentary transport and fate of polycyclic aromatic hydrocarbons (HAP) from managed burning of moorland vegetation on a blanket peat, South Yorkshire, UK*, Science of the Total Environment, 449, 2013, pp. 81-94.

Wick, A., Jacobs, B., Kunkel, U., Heininger, P., Ternes, T.T. *Benzotriazole UV stabilizers in sediments, suspended particulate matter and fish of German rivers: New insights into occurrence, time trends and persistency*, Environmental Pollution, 212, 2016, pp. 401-412.

Yari A., Dabrin, A., Coquery, M. *Recommandations pour l'estimation des tendances temporelles et des distributions spatiales des concentrations de contaminants dans les sédiments*, Rapport AQUAREF 2017, p. 124.

Annexe 1. Synthèse des 37 publications sélectionnées concernant l'utilisation de pièges à particules pour le suivi de la contamination des MES dans les cours d'eau (références classées par ordre chronologique croissant)

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres majeurs	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Ciffroy <i>et al.</i> , 1999	LABAM LGA MIM	Grand cours d'eau	2 jours	Terrain	MVS COP CIP Chlorophylle a Granulométrie	Métaux : Cu, Zn, Fe, Mn	CFC	Granulométrie des particules prélevées par CFC plus fine que celle des sédiments prélevés par piège, surtout en crue Concentrations en métaux affectées par la distribution granulométrique : nécessité de normaliser par la granulométrie
Phillips <i>et al.</i> , 2000	TIMS	Petit cours d'eau	1 mois	Labo/Terrain	Granulométrie	Aucun	Echantillonnages ponctuels	31% et 71% (en masse) des MES entrantes retenues Difficulté du piège à retenir les particules les plus fines (< 2 µm) Diminution de l'efficacité de piégeage lorsque la vitesse d'écoulement à l'entrée du piège augmente MES échantillonnées par le TIMS plus grossières que celles prélevées ponctuellement, mais différences non significatives
Russell <i>et al.</i> , 2000	TIMS	Petit cours d'eau	1 mois	Terrain	CT PT NT	Métaux : Fe, Mn, As, Pb, Zn Radionucléides	Echantillonnages ponctuels	Concentrations en métaux dans les MES échantillonnées par TIMS similaires à celles observées dans les MES prélevées par échantillonnage ponctuel Les auteurs insistent sur le fait que le piège n'est pas une alternative mais un complément à l'échantillonnage ponctuel de MES

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Tessier, 2003	3 modèles différents ; bouteille ou caisse	Petits, moyens et grands cours d'eau	15 jours	Terrain	Aucun	Métaux : Na, K, Ca, Sc, Cr, Fe, Co, Zn, As, Br, Rb, Sr, Ag, Sb, Cs, Ba, Hf, Ta, Au, Th Terres rares : La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Yb, Lu	Non	
Rüdel <i>et al.</i> , 2005	GESB	Grands cours d'eau	1 mois	Terrain	Aucun	Triclosan Méthyltriclosan	Non	Difficulté de mettre en relation les concentrations en contaminants dans les MES et le biote
Busch <i>et al.</i> , 2006	"plexiglass sedimentation tank"	Grand cours d'eau	4 semaines	Terrain	Granulométrie COT	Métaux : Cd, Hg, Ni, Pb PCB HAP	CFC	<p>Incapacité du piège à retenir les particules très fines (pas de valeur granulométrique)</p> <p>Particules prélevées par piège plus grossières que celles prélevées par CFC</p> <p>- Métaux : concentrations en Pb, Cd et Ni plus élevées dans MES prélevées par CFC que celles prélevées par piège à particules - PCB : pas de différence significative entre CFC et piège - HAP : concentrations en benzo[a]pyrène et benzo[b]fluoranthène plus élevées en CFC que par piège à particules</p> <p>Evocation de la dégradation possible des MES, mais sans plus de détail</p>

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Marvin <i>et al.</i> , 2006	Piège multitubes (décrit par Marvin <i>et al.</i> , 2002)	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie COT	HBCD	Non	
Schulze <i>et al.</i> , 2007	GESB	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain		Métaux : As, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn	CFC	<p>Peu de différences observées dans les concentrations en métaux dans la fraction < 20 µm entre piège à particules et CFC</p> <p>Difficulté à démontrer une possible altération des échantillons</p> <p>Possibilité de contamination avec le matériau du piège (acier inox) évoquée</p>
McDonald <i>et al.</i> , 2010	TIMS	Petit cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie	Aucun	Echantillonnages ponctuels	<p>MES échantillonnées par le TIMS significativement plus grossières que les MES échantillonnées manuellement</p> <p>Difficulté du piège à prélever des MES représentatives du milieu dans ces conditions spécifiques (forte variabilité journalière et hebdomadaire du débit, de la teneur en MES et de la granulométrie)</p>
Jia <i>et al.</i> , 2010	Piège multitubes (décrit par Marvin <i>et al.</i> , 2002)	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie COT	HAP PCB Hg	Non	

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Pohlert <i>et al.</i> , 2011	BISAM Piège en pente assistée par pompe	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie COT	PCB, HCB	CFC	<p>Particules prélevées par piège à particules plus grossières que par CFC</p> <p>Peu de variations dans les concentrations en PCB totaux selon les différentes méthodes. En revanche différences observées pour HCB</p> <p>Evoque une possible dégradation des constituants chimiques des MES (nutriments, COT, COV, hydrophiles)</p>
Priadi <i>et al.</i> , 2011	Tessier, 2003 (modèle C)	Grand cours d'eau	Non renseignée	Terrain		Métaux (Ag, Al, As, Ca, Cd, Cr, Co, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Ni, Se, Ti, Pb, V, Zn)	Echantillonnages ponctuels	Partition des métaux similaire entre MES par piège à particules et échantillonnages ponctuels => possibilité d'utiliser les pièges pour étudier les variations spatio-temporelles des métaux
Gautam, 2012	TIMS	Moyen cours d'eau	2 semaines	Terrain		Triclosan Triclocarban	Non	
Martinez-Carreras <i>et al.</i> , 2012	TIMS	Petits et moyens cours d'eau	Non renseignée (probablement 1 mois environ)	Terrain	CT NT PT	Métaux (Cr, Cu, Ni, Pb, Zn)	Non	
Schindler Wildhaber <i>et al.</i> , 2012	TIMS	Moyen cours d'eau	1 semaine	Terrain	Granulométrie COT	Aucun	Non	

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Schubert <i>et al.</i> , 2012	Revue BISAM et GESB sont cités	Revue, principalement centrée sur grands cours d'eau	Revue Durée indicative de 1 à 4 semaines	Revue Déploiements sur le terrain principalement	Revue Granulométrie et COT sont cités	Revue Hg, HCB et PCB sont cités	Revue	Attire l'attention sur une possible altération de l'échantillon en raison de la dégradation de la matière organique (Petersen <i>et al.</i> , 1995)
Marvin <i>et al.</i> , 2013	Piège multitubes (décrit par Marvin <i>et al.</i> , 2002)	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain		PBDE	Non	
Smalling <i>et al.</i> , 2013	TIMS	Petits cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie COT	Pesticides	Non	
Vane <i>et al.</i> , 2013	TIMS modifié	Moyen cours d'eau	10 semaines	Terrain	COT Isotopes du carbone	HAP	Non	
Fliedner <i>et al.</i> , 2014	GESB	Grands cours d'eau	1 mois	Terrain		Métaux	Non	Concentrations en métaux très élevées dans les MES par rapport au biote Mise en évidence de la biodisponibilité de métaux contenus dans les MES
Smith & Owens, 2014	TIMS	Grand cours d'eau	1 mois	Labo/Terrain	Granulométrie	Métaux : As, Se	Non (sédiment uniquement)	Efficacité de piégeage de 43% à 87% (en masse) en fonction des sédiments Efficacité de piégeage plus élevée pour particules plus grossières. Différences entre concentrations en métaux dans les MES et sédiment en particulier pour Se

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Chiffre <i>et al.</i> , 2015	Cylindre (décrit par Bloesch, 1980)	Grand cours d'eau	3 mois environ	Terrain	Matière sèche NTK PT COT	HAP	Non (sédiment uniquement)	Bonne corrélation entre les concentrations en HAP dans les MES et les sédiments Observation de variations saisonnières en HAP sédiment + influence du site d'échantillonnage (présence de STEP en amont)
Haddachi <i>et al.</i> , 2015	TIMS	Moyen cours d'eau	Non renseignée	Terrain	Granulométrie	Métaux : As, Ba, Be, Co, Cr, Cu, Ni, Rb, Sr, Th, U, V, Zn, Zr Terres rares : Ce, Dy, Er, EU, Gd, Ho, La, Lu, Nd, Pr, Sm, Tb, Tm, Y, Yb	Non	
Marttila <i>et al.</i> , 2015	TIMS	Moyens et grands cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie LOI	Aucun	Non	
Schulze <i>et al.</i> , 2015	Piège décrit par Hollert <i>et al.</i> , 2000	Grand cours d'eau	Non renseignée	Terrain		PCB HCB HAP	Non	
Bona <i>et al.</i> , 2016	Piège décrit par Bond, 2002	Petit et moyen cours d'eau	17 jours	Terrain	Granulométrie		Non	
Pulley <i>et al.</i> , 2016	TIMS	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie PT LOI	Métaux : As, Pb, Cu, Zn	Non	

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Wick <i>et al.</i> , 2016	GESB	Grands cours d'eau	1 mois	Terrain	COT	Benzotriazoles	Non	
Kotthoff <i>et al.</i> , 2017	GESB	Grands cours d'eau	3 semaines	Terrain	COT	TBBPA et dérivés	Non	Pas de quantification du DM-TBBPA (produit de la O-méthylation du TBBPA) dans les MES
Macedo-Neto <i>et al.</i> , 2017	TIMS	Moyen cours d'eau	30 jours	Terrain	Granulométrie PT	Métaux : Al, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, La, Mg, Mn, Na, Nb, Ni, P, Pb, Sc, Sn, Sr, Th, Ti, V, Y, Zn, Zr	Non	
Perks <i>et al.</i> , 2017	TIMS modifié	Moyen cours d'eau	1 mois	Terrain	Flux		Non	
Rüdel <i>et al.</i> , 2017	GESB	Grands cours d'eau	3 mois	Terrain	COT	HBCD	Non	Evocation de la dégradation du HBCD dans le sédiment, mais le cas des MES n'est pas abordé Mise en évidence de différences de répartition isomérique entre MES/sédiment et biote
Droppo <i>et al.</i> , 2018	TIMS	Grands cours d'eau	28 à 64 jours	Terrain	Granulométrie	CAP	Non	

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Masson <i>et al.</i> , 2018	GESB	Grand cours d'eau	2 semaines	Terrain	Granulométrie COP	PCB Hg	CFC	<p>Particules prélevées par piège plus grossières que par CFC</p> <p>Pas de variation significative dans les concentrations en PCB quantifiées entre piège et CFC</p> <p>Dégradation de la matière organique dans le piège pourrait affecter les teneurs en COP</p>
Doriean <i>et al.</i> , 2019	PASS (piège avec pompe)	Petits cours d'eau	14 et 53 heures	Labo/Terrain	Granulométrie	Aucun	Piège à particules TIMS	<p>Efficacité de piégeage d'environ 80% au moins, avec une distribution granulométrique similaire à la source</p> <p>Distributions granulométriques similaires entre PASS et TIMS</p>
Lucic <i>et al.</i> , 2019	TIMS	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie COT	Métaux	Non	Evocation de l'effet des conditions physicochimiques dans le TIMS ; réactions de floculations qui influencent la granulométrie des particules prélevées (plus grande proportion de particules plus grossières)
Mokwe-Ozonzeadi <i>et al.</i> , 2019	TIMS	Petit cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie LOI	Métaux	Non	Attire l'attention sur les effets possibles (non déterminés et étudiés de façon approfondie) d'un stockage à long terme des MES dans le piège
Keßler <i>et al.</i> , 2020	TIMS modifié	Grand cours d'eau	1 mois	Terrain	Granulométrie COT PP	Métaux HAP PCB	CFC	Teneurs en COT légèrement plus faibles dans les échantillons prélevés par piège par rapport à l'échantillonnage CFC ; attribuées à une dégradation de la matière organique

Publication	Type de piège	Type de milieu	Durée de déploiement	Labo/Terrain	Paramètres globaux	Contaminants	Comparaison à un échantillonnage MES de référence	Commentaires / Résultats pertinents
Pulley <i>et al.</i> , 2019	TIMS	Moyen cours d'eau	Imprécis, au moins 1 mois	Terrain	Granulométrie LOI	Aucun	Non	