

## **Teneurs et flux de métaux toxiques dans l'Aulne et ses affluents ; impact des activités minières historiques de Huelgoat-Poullaouen**

Toxic metal levels and fluxes in the Aulne River and its tributaries; impact of historical mining activities of Huelgoat-Poullaouen

Camille Guérin<sup>1</sup>, Matthieu Waeles<sup>1</sup>, Marie-Laure Rouget<sup>2</sup> and Nicolas Briant<sup>3</sup>

(1) Univ Brest, CNRS, IRD, Ifremer, LEMAR, F-29280 Plouzane, France

(2) Univ Brest, UMS 3113, IUEM, F-29280 Plouzané, France

(3) Ifremer-LBCM, F-44300 Nantes, France

### **RÉSUMÉ**

Dans cette étude, nous avons quantifié les concentrations en métaux toxiques (Zn, Pb, Cd, Cu et As) dans les eaux de l'Aulne et ses principaux affluents. L'objectif était de dresser un bilan actuel des flux dissous et particulaires à l'exutoire de l'Aulne et d'estimer la contribution des bassins drainant les anciens sites miniers de Huelgoat-Poullaouen. Nos résultats indiquent non seulement des concentrations importantes de Pb, Zn et Cd dans les affluents drainant les anciennes mines (Rivière d'Argent et ruisseau de Poullaouen) mais aussi une contamination générale de l'Aulne en ces 3 éléments, ce qui classe cette rivière parmi les plus polluées de France au même titre que le Lot ou la Seine. A contrario, nos résultats ne constatent pas d'anomalie marquée en Cu ou en As et les teneurs enregistrées pour ces 2 métaux sont proches de celles trouvées pour d'autres systèmes drainant des bassins versant agricoles. Notre étude souligne également une contribution importante de petits cours d'eau aux flux global de certains métaux (e.g. 15% dans le cas du Poullaouen pour le Pb) et permet donc d'envisager un assainissement global de l'Aulne et de la Rade de Brest en s'attaquant prioritairement à ces petits cours d'eaux.

### **ABSTRACT**

In this study, we quantified the concentrations of toxic metals (Zn, Pb, Cd, Cu and As) in the waters of the Aulne River and its main tributaries. The objective was to assess the dissolved and particulate fluxes at the Aulne outlet and to estimate the contribution of the basins draining the former mining sites of Huelgoat-Poullaouen. Our results indicate not only significant concentrations of Pb, Zn and Cd in the tributaries draining the former mines (Rivière d'Argent and Poullaouen Stream) but also a general contamination of the Aulne in these 3 elements, which ranks this river among the most polluted in France in the same order as the Lot or the Seine. On the other hand, our results do not show any marked anomaly in Cu or As and the levels recorded for these two metals are close to those found in other systems draining agricultural catchments. Our study also highlights the significant contribution of small streams to the overall flux of certain metals (e.g. 15% in the case of the Poullaouen for Pb) and therefore makes it possible to envisage a global remediation of the Aulne River and the Bay of Brest by targeting these small watercourses as a priority.

### **KEYWORDS**

Aulne River, Bay of Brest, Fluxes, Mining, Toxic metals

## 1 INTRODUCTION

Si les sédiments du littoral breton présentent des teneurs en éléments trace métalliques (ETM) proches du fond géochimique, il n'en va pas de même pour les sédiments de la Rade de Brest. Dans ce système de nombreux métaux toxiques (Pb, Cd, Zn, Ag...) sont présents à des concentrations qui dépassent largement les concentrations associées à des effets toxiques (ERL) suivant les critères d'évaluation OSPAR (Chiffolleau 2017).

Les anciennes activités minières de Huelgoat-Poullaouen (XVIIIe et XIXe siècle) sur le bassin versant (BV) de l'Aulne sont potentiellement responsables de cette contamination en ETM. Cependant cette hypothèse n'a pour l'instant pas été vérifiée et les flux actuels d'ETM en provenance de ces anciennes mines ne sont pas connus. Il doit cependant être mentionné que quelques analyses ponctuelles en ETM dissous ont été effectuées par le BRGM à la fin des années 1990 (Lemière et Clozel, 2000) dans quelques petits cours d'eau situés juste en aval de la mine de Locmaria-Berrien. Ces observations mettent notamment en évidence des teneurs particulièrement élevées en Pb (100-800 µg/L) et en Cd (10-20 µg/L) dans la phase dissoute.

Lors de ce travail, nous avons procédé à une étude spatiale large de certains ETM toxiques (Zn, Pb, Cd, Cu et As) dans le BV de l'Aulne. Ainsi, les teneurs en ces ETM ont été examinées le long de l'Aulne (Aulne amont puis partie canalisée) ainsi qu'à l'exutoire des principaux affluents de l'Aulne (Rivière d'argent, Ellez, Hyères, Ster Goanez, Douffine et Poullaouen). Les prélèvements de phase dissoute et de matières en suspension (MES) ont été effectués à plusieurs reprises et dans différentes conditions hydrologiques au cours du premier trimestre 2020. Notre objectif principal était de dresser un bilan des flux actuel en ETM sur le BV de l'Aulne. Il s'agissait en particulier de comparer les flux d'ETM en provenance des anciens sites miniers à ceux apportés par le reste du BV de l'Aulne.

## 2 METHODES

### 2.1 Zone d'étude

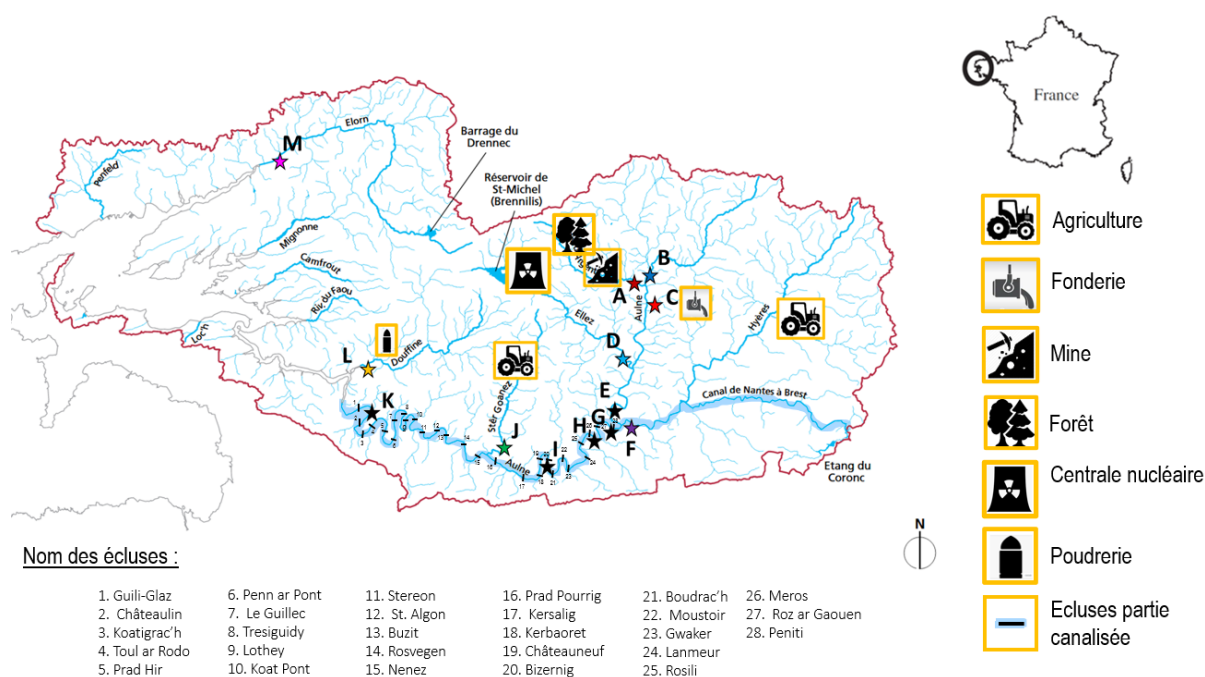


Figure 1 : Carte du bassin versant de la rade de Brest, localisation du tronçon canalisé de l'Aulne et des 28 écluses et sites d'échantillonnages A = Rivière d'Argent; B = Aulne amont - Kastell ar Valy ; C =Ruisseau de Poullaouen ; D =Ellez ; E = Aulne-Pont Triffen ; F = Hyères; G = Aulne - Koad an Traon ; H = Aulne - Kerganévet ; I = Aulne - Châteauneuf du Faou ; J = Ster Goanez ; K = Aulne - Châteaulin ; L = Douffine; M = Elorn.

L'Aulne est un fleuve côtier de 144 km de long possédant un bassin versant de 1875 km<sup>2</sup> ; il représente le principal flux d'eau douce pour la Rade de Brest. Ses principaux affluents sont de l'amont vers l'aval : la rivière d'Argent, l'Ellez, l'Hyères, le Ster Goanez et la Douffine (Figure 1).

L'occupation du sol sur le bassin versant de l'Aulne est majoritairement dominée par des activités agricoles (81%). Les zones naturelles (forêts, landes...) comptent pour 16% alors que les zones urbaines représentent ~3%. Parmi les principaux affluents de l'Aulne, le bassin versant de la rivière d'argent se distingue par de plus grandes étendues forestières (26%). Le bassin versant de l'Ellez abrite quant à lui une part importante de landes, broussailles et tourbières (21%) tandis que l'Hyères et le Ster Goanez possèdent des bassins versants essentiellement agricoles (86% et 94%, respectivement). Les anciennes activités d'extractions minières de la région de Huelgoat (XVIIIe et XIXe siècle) se situent principalement sur le bassin versant de la Rivière d'Argent (rive droite de l'Aulne). Il est à noter que le petit bassin versant de Poullaouen (9,1 km<sup>2</sup>), situé sur la rive gauche de l'Aulne, abritait également une mine ainsi que la principale fonderie de la région. En plus de ces activités minières, il faut aussi signaler d'autres activités historiques sur le BV de l'Aulne, l'ancienne poudrerie de Pont de Buis située sur la partie aval de la Douffine et de l'ancienne centrale nucléaire de Brennilis située sur la partie amont de l'Ellez.

## 2.2 Prélèvements et analyses

Les prélèvements ont été effectués en début d'année 2020 sur 13 sites répartis le long de l'Aulne et à l'exutoire des principaux affluents (Figure 1). Ils correspondent à différentes conditions hydrologiques : 9 Jan – 40 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> (série 9) ; 20 Jan – 75 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> (série 20) ; 3 Fev – 85 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> (série 34) et 18 Fev – 125 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> (série 49). Les échantillons ont été collectés en subsurface et ont été immédiatement filtrés sur place. Cette filtration immédiate est primordiale pour éviter la floculation des ETM ou leur adsorption sur les parois des contenants (Waeles et al., 2015). La phase dissoute a été récupérée après filtration sur filtres seringues (0,22 µm, MF-Millipore). La phase particulaire a été récupérée sur des filtres prépesés (0,45 µm, HATF Millipore) puis conservés dans des Petrislides (Millipore). Avant utilisation, les filtres, les contenants et les différents systèmes de filtration ont été rincés plusieurs fois à l'eau ultrapure (>18,2 M Milli-Q, Millipore), puis stockés/rincés à l'acide nitrique 2% (suprapur, Merck) puis de nouveaux rincés à l'eau ultrapure. Les éléments particuliers ont été déterminés après digestion du filtre à 105°C (4 h) dans 2 mL d'acide nitrique 65% (Suprapur, Merck). Les mesures ont ensuite été effectuées sur des mélanges dilués (2,5% HNO<sub>3</sub>). Les éléments dissous sont quant à eux mesurés après acidification des solutions (2,5% HNO<sub>3</sub>). Les mesures en ETM ont été réalisées à l'aide d'un spectromètre de masse quadripôle (X-series II, Thermo Scientific, Pôle Spectrometrie Ocean) avec une précision meilleure que 3% (Pb), 5% (Cu, Zn, Cd) et 10% (As).

## 3 RESULTATS ET DISCUSSION

### 3.1 Teneurs en ETM dans l'Aulne et ses affluents

Deux groupes d'éléments peuvent être distingués quant aux différences spatiales observées c'est-à-dire celles entre les différents cours d'eau du BV de l'Aulne : Zn-Pb-Cd d'une part et Cu-As d'autre part.

Les teneurs dissoutes et particulières les plus faibles de Zn-Pb-Cd sont observées dans l'Aulne amont (B) et dans les affluents de l'Aulne non-influencés par les apports miniers (Ellez, Hyères, Ster Goanez et Douffine ; points D, F, J et L). Dans ces cours d'eau, les concentrations pour la phase dissoute et la phase particulaire sont généralement comprises dans la gamme 10-100 nM pour Zn, 1-4 nM pour Pb et 0,1-0,4 nM pour Cd. A l'inverse, les affluents de l'Aulne impactés par les activités minières présentent des teneurs très élevées en ces 3 ETM. Par exemple, les teneurs moyennes en Zn, Pb et Cd dissous pour la rivière d'argent (A) sont respectivement de 540±90 nM, 38±11 nM et 2,6±0,5 nM ; pour le ruisseau de Poullaouen (C), celles-ci sont respectivement de 3300±300 nM, 100±25 nM et 10,3± 0,7nM. En réponse aux apports du bassin minier, les eaux de l'Aulne s'enrichissent significativement (augmentation d'un facteur 3 à 10) entre l'Aulne amont (B) et Pont Triffen (E). Dans la partie canalisée de l'Aulne (points G, H, I et K), les teneurs restent relativement élevées mais avec des valeurs légèrement inférieures à celles observées à Pont Triffen (E). Cette différence est principalement expliquée par la dilution des eaux de l'Aulne avec celles de l'Hyères, affluent majeur de l'Aulne au débit équivalent à ce dernier.

Dans le cas du Cu et As, les teneurs diffèrent peu entre les cours d'eau. On note cependant des valeurs minimales en Cu dans les cours drainant les BV les moins agricoles (Rivière d'argent, Ellez et Douffine) et des valeurs maximales pour le ruisseau de Poullaouen (C). Pour l'As, les valeurs minimales sont observées dans la partie aval du BV l'Aulne, i.e. Douffine (L) et Aulne à Châteaulin (K), tandis que les valeurs maximales sont observées dans l'Aulne supérieure, i.e. Rivière d'Argent (A) et Ellez (D).

### 3.2 Comparaison des teneurs avec celles d'autres fleuves

Les teneurs dissoutes à l'exutoire de l'Aulne ont été comparées aux moyennes mondiales (Gaillardet et al., 2003) ainsi qu'à celles d'autres fleuves européens soumis à des impacts anthropiques variés. Il est à souligner que l'exutoire de l'Aulne (K), juste en amont de l'estuaire, est situé à environ 100 km de la zone minière. Bien que l'influence des bassins miniers soit très atténuée en ce point, les comparaisons montrent :

- Une forte contamination en Zn et Pb, avec des teneurs ~20 fois supérieures aux moyennes mondiales. Dans le cas du Pb, les teneurs de l'Aulne à l'exutoire (6 nM) sont comparables à celles observées dans le Rhin dans les années 1980 et sont donc supérieures à celles enregistrées généralement pour des systèmes sous influence industrielle (e.g. Rhône, Escaut, Seine ou Tamise) voire des systèmes sous influence minière (Lot ou Tamar). Dans le cas du Zn (140 nM) les teneurs sont du même ordre de grandeur que celles observées pour la Seine, la Tamise ou le Lot.
- Une contamination modérée en Cd avec des teneurs proches des moyennes mondiales, d'un ordre de grandeur plus élevées que celles de la Léna (système non perturbé) et plus élevées que celles généralement rencontrés dans des systèmes agricoles (Dordogne, Loire, Penzé).
- Une contamination très limitée en Cu et As, avec des teneurs proches des moyennes mondiales, peu élevées par rapport à la Léna et du même ordre de grandeur que celles observées dans différents systèmes agricoles.

### 3.3 Flux

Les flux totaux (dissous+particulaire) pour les différents affluents de l'Aulne et le long de l'Aulne (points B, E et K) sont présentés dans le tableau 1. En cohérence avec des concentrations relativement homogènes sur l'ensemble du bassin versant, les flux de Cu et As à l'exutoire de l'Aulne (K) correspondent approximativement aux flux cumulés depuis l'amont. Dans le cas de Pb, Zn et Cd, la rivière d'Argent et le ruisseau de Poullaouen, malgré leur faible débit (4,6 et 0,6 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>), représentent une bonne partie du flux à l'exutoire (36%, 27% et 26%). Ce résultat permet donc d'envisager un assainissement global de l'Aulne et de la Rade de Brest en s'attaquant prioritairement à ces petits cours d'eaux. La comparaison entre le cumul des flux aux points A, B, C et D avec le flux au point E pour ces trois ETM indique que notre échantillonnage n'a pas permis de couvrir la totalité des apports miniers. D'autres sources superficielles ou souterraines du bassin de Huelgoat-Poullaouen alimentent probablement l'Aulne avant Pont Triffen. Dans le cas de Pb, ces apports non échantillonnés représentent une source comparable à celle des cours d'eaux miniers échantillonnés (environ 8,5 kg j<sup>-1</sup>).

Tableau 1 : Flux (kg j<sup>-1</sup>) de Pb, Cd, Zn, As et Cu total (dissous+particulaire) dans les principaux affluents de l'Aulne et en différents points de l'Aulne (B, E et K)

	F (Zn)	F (Pb)	F (Cd)	F (Cu)	F (As)
Aulne-Amont (B)	10	1,1	0,06	1,6	0,9
Riv. d'argent (A)	14	4,8	0,12	0,4	0,4
Ruiss. Poullaouen (C)	12	3,1	0,07	0,2	0,04
Ellez (D)	3,4	0,5	0,03	0,7	1,3
Aulne-Pont Triffen (E)	70	18	0,56	3,7	2,9
Hyères (F)	25	2,4	0,20	4	2,8
Ster Goanez (J)	2	0,4	0,03	0,7	0,3
Aulne-Châteaulin (K)	97	22	0,74	11	6
Douffine (L)	8,1	0,7	0,04	0,9	0,4

### REFERENCES

Chiffolleau, J. F. (2017). La contamination chimique sur le littoral Loire-Bretagne. Résultats de 35 années de suivi du Réseau d'Observation de la Contamination Chimique.

Gaillardet, J., Viers, J., & Dupré, B. (2003). Trace elements in river waters. *Treatise on geochemistry*, 5, 605.

Waeles, M., Pernet-Coudrier, B., Rouget, M. L., Liorzou, C., & Riso, R. D. (2015). Stream chemical dynamic and metal accumulation in a temperate watershed affected by agricultural practices (Penzé, NW France). *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 29(19), 1795-1804