



Traçage des sources de sédiments à l'amont des hydrosystèmes agricoles : apport de la géochimie élémentaire, du rapport Sr/ Sr et des radionucléides

Marion Le Gall

► To cite this version:

Marion Le Gall. Traçage des sources de sédiments à l'amont des hydrosystèmes agricoles : apport de la géochimie élémentaire, du rapport Sr/ Sr et des radionucléides. Géochimie. Université Paris Saclay (COmUE), 2016. Français. NNT : 2016SACL355 . tel-01412184

HAL Id: tel-01412184

<https://theses.hal.science/tel-01412184>

Submitted on 8 Dec 2016

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

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

NNT : 2016SACLS355

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
L'UNIVERSITE PARIS SUD

ÉCOLE DOCTORALE N° 579
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences
SMEMaG

Spécialité de doctorat :
Terre solide : géodynamique des enveloppes supérieures, paléobiosphère

Par

Marion Le Gall

Traçage des sources de sédiments à l'amont des hydro systèmes agricoles : apport de la géochimie élémentaire, du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des radionucléides

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 21 Octobre 2016 :

Composition du Jury :

M. GAILLARDET Jérôme
M. POULENARD Jérôme
M. MINELLA Jean
M. NEGREL Philippe
M. SALVADOR-BLANES Sébastien
M. ROY BARMAN Matthieu
Mme NAHUM Carole
Mme AYRAULT Sophie
M. EVRARD Olivier

Prof. Univ. Paris 7 (IPGP, Paris, France)
Prof. Univ. Savoie-Mont-Blanc (EDYTEM, Le Bourget du Lac, France)
Prof. Univ. Fed. de Santa Maria (Dep. des Sols, Santa Maria, Brésil)
Directeur adjoint de la Direction des Laboratoires (BRGM, France)
MC Univ. François Rabelais (GéHCO, Tours, France)
Prof. Univ. Versailles Saint-Quentin (LSCE, Gif-sur-Yvette, France)
Responsable MRIS « Environnement et Géosciences » (DGA, France)
DR CEA (LSCE, Gif-sur-Yvette, France)
CR CEA (LSCE, Gif-sur-Yvette, France)

Rapporteur
Rapporteur
Examinateur
Examinateur
Examinateur
Président
Invitée
Directrice de thèse
Co-directeur de thèse

Remerciements

A l'issue de ces trois années de thèse, c'est avec un grand plaisir que je rédige ces quelques lignes pour remercier l'ensemble des personnes qui ont contribué de près ou de plus loin à ce travail.

En premier lieu, merci aux divers organismes financeurs, sans qui cette thèse n'aurait pas été possible : le CEA, la DGA, l'Agence de l'Eau Loire-Bretagne et le Capes-Cofecub.

Mes premiers remerciements vont à mes directeurs de thèse, Sophie Ayrault et Olivier Evrard. Merci pour la confiance que vous m'avez accordée, pour votre investissement dans mes travaux et votre intérêt au quotidien, j'ai beaucoup appris à vos côtés et je souhaite à tout doctorant d'être aussi bien entouré ! Merci Sophie pour avoir guidé la partie géochimie de mes travaux, je n'avais que six mois d'expérience dans le domaine en arrivant et ne me sentais pas forcément à la hauteur, tu as cru en moi dès le début, m'as accordé toute ta confiance et je t'en remercie. Merci Olivier pour ta disponibilité au quotidien, ta réactivité et tes nombreuses relectures. Un grand merci également pour m'avoir donné l'opportunité et la chance de voyager et de découvrir d'autres horizons. Ce serait un plaisir de travailler de nouveaux avec vous dans le futur.

Je remercie Jérôme Gaillardet et Jérôme Poulenard pour avoir accepté de rapporter ce manuscrit ainsi que Jean Minella, Philippe Négrel, Matthieu Roy-Barman et Sébastien Salvador-Blanes, pour leur participation au jury de ma thèse. Merci pour vos commentaires constructifs.

Je remercie également les membres de mon comité de pilotage de thèse, Cécile Quantin, Philippe Négrel, Sébastien Salvador-Blanes, Oldrich Navratil. Les réflexions autour de mes travaux ont constitué des étapes importantes dans l'avancement de mes travaux de thèse.

Un grand merci à Louise Bordier pour son aide précieuse au laboratoire sans laquelle je n'aurais jamais pu amasser autant de données. Tu as toujours su te rendre disponible quel que soit le moment, j'ai beaucoup appris à tes côtés au cours de ces trois années et t'en suis reconnaissante ! Merci à Irène Lefèvre pour son aide concernant les comptages en spectrométrie gamma, je regrette d'ailleurs de ne pas y avoir consacré plus de temps. Merci à Patrick Laceby pour m'avoir initiée à la modélisation appliquée au traçage des sédiments mais aussi pour ses très nombreuses relectures d'articles, qui je l'espère m'ont permis de progresser en anglais ! Merci à François Thil et Arnaud Dapoigny pour leur temps consacré aux analyses d'isotopie du strontium.

Je tiens également à remercier les Tourangeaux et Orléanais, Anthony Foucher, Sébastien Salvador-Blanes, Louis Manière, Olivier Cerdan et Rosalie Vandromme. Anthony et Sébastien, qui m'ont initiée aux rudiments de la géologie et de la pédologie. Merci Anthony pour m'avoir consacré autant de temps, même en fin de thèse, que cela soit pour aller sur le terrain ou pour répondre à mes (trop) nombreuses questions sur le bassin du Louroux. Merci Sébastien pour ta participation à mes comités de thèse, pour tes relectures d'articles, pour tes nombreuses questions et remises en questions, j'espère t'avoir persuadé de l'intérêt du

strontium ! Merci Louis pour les collectes d'échantillons, pour ta réactivité et ton aide à distance concernant l'hydrologie du bassin.

Merci également à l'équipe brésilienne. Jean Minella et Tales Tiecher, je suis ravie d'avoir eu l'opportunité de travailler avec vous. Un grand merci pour votre gentillesse, votre accueil chaleureux au Brésil et votre réactivité lors de la phase de rédaction malgré la distance !

J'ai également une pensée pour Corinne Casiot et Eléonore Resongles qui m'ont initiée au monde de la Recherche et m'ont donné l'envie de me lancer dans une thèse.

Je remercie les doctorants du dernier étage sans qui la thèse n'aurait pas eu la même saveur. Un grand merci aux anciens, Romain et Pierre (et les parties de soccer physics), Elian (et son carot cake), Hugo ('sous l'océan' pour travailler c'est top), Wiem (son thé à la menthe), Cindy (un énorme merci pour nos longues soirées au labo et nos retours en RER qui m'ont paru bien plus courts), Dariouche (et son légendaire sens de l'orientation), mais aussi aux plus jeunes, Alison, Marion, Hugo, Laurine, Claire, Lise, Rana qui ont égayé cette dernière année de thèse grâce à leur bonne humeur (et leurs bavardages pour certaines...) ! Enfin un grand merci à mes 'co-bureaux', Naoufel et Jens pour leur plus ou moins zen attitude en tout circonstance, vous m'avez supportée, moi mais aussi mon stress assez récurrent. Merci à tous pour les bons moments passés au labo mais aussi et heureusement en dehors !

Je remercie les amis du quotidien pour les moments de détente, Dimitri, Céline, Jérémy, Nicolas, Marion... car la vie ne se limite pas uniquement à la thèse ! En effet, rien de tel qu'un week-end Normand, une bonne glace Gardoise ou une sortie canoé dans les Calanques pour se détendre !

Pour conclure, quelques mots à mon entourage. Un grand merci à mes parents qui m'ont toujours encouragée et poussée dans mes études et qui acceptent depuis déjà sept ans la distance et mes trop peu nombreux retours dans l'Est de la France. A Mathilde et à mes grands-parents pour leurs coups de fil réguliers et leur affection. Enfin, merci Alexandre pour ta patience indéfectible dans les moments de doute, pour ton soutien au cours de ces trois parfois longues années et pour ta complicité au quotidien. Nous avons surmonté la distance (et les nombreux aléas de la SNCF) mais aussi deux thèses en simultanée et j'en suis fière !

TABLE DES MATIERES

Introduction générale	9
Chapitre 1. Synthèse bibliographique : érosion des sols et traçage des sédiments dans les bassins versants	21
1. Dynamique sédimentaire et érosion des sols en contexte agricole	21
1.1 L'érosion des sols, processus et facteurs	21
1.2 Transport et transfert des sédiments en rivière	25
1.3 Quantification de l'érosion des sols	26
1.4 Enjeux et conséquences de l'érosion et du transport sédimentaire.....	28
1.4.1. Les plaines agricoles du Nord-Ouest de l'Europe, cas du bassin versant du Louroux (Indre-et-Loire, France)	29
1.4.2. Les zones agricoles subtropicales du sud du Brésil, cas du bassin de Guaporé (Rio Grande do Sul, Brésil)	33
1.4.3. Les conséquences de l'érosion des sols	38
2. Le traçage des sédiments	40
2.1 Approche	40
2.2 Sources de particules et sédiments.....	41
2.3 Natures et propriétés des sources de particules et des sédiments	42
2.4 Utilisation de modèles de mélange pour quantifier les sources de sédiments	43
3. L'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) et les radionucléides émetteurs gamma (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) comme traceurs des sources de particules	45
3.1 L'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), traceur lithologique de l'origine des particules.....	45
3.2 Les retombées atmosphériques de radionucléides émetteurs gamma (^{137}Cs , ^{210}Pb , ^7Be), traceurs spatio-temporels des particules.....	52
3.2.1. Le césum-137 comme traceur spatial de l'origine des particules	52
3.2.2. Le beryllium-7 et le plomb-210, traceurs temporels des particules	54
4. Références bibliographiques Chapitre 1	58
Chapitre 2. Présentation des sites d'étude – Matériels et Méthodes	69
1. Le bassin du Louroux (Indre-et-Loire, France), caractéristiques et échantillonnage	71

Table des matières

1.1	Localisation, description et historique du site	71
1.1.1.	Topographie et climat	71
1.1.2.	Réseau hydrographique	73
1.1.3.	Occupation des sols, évolution du paysage	76
1.2	Méthodes d'échantillonnage	78
2.	Le bassin de Guaporé (Rio Grande do Sul, Brésil), caractéristiques et échantillonnage.....	82
2.1	Localisation, description et historique du site	82
2.1.1.	Topographie et climat	82
2.1.2.	Géologie et pédologie	84
2.2	Méthodes d'échantillonnage	87
3.	Géochimie des éléments majeurs et traces et rapport isotopique du strontium.....	91
3.1	Géochimie des éléments majeurs et traces	91
3.1.1.	Minéralisation des échantillons	91
3.1.2.	Mesure de concentrations élémentaires par ICP-QMS.....	93
3.2	Géochimie isotopique du strontium	97
3.2.1.	Séparation chimique du strontium.....	97
3.2.2.	Mesures isotopiques par MC-ICP-MS.....	98
4.	Mesure d'activités par spectrométrie gamma	102
4.1	Principe de la spectrométrie gamma	102
4.2	Fonctionnement du détecteur et comptage en spectrométrie gamma	103
4.3	Préparation des échantillons.....	104
5.	Références bibliographiques Chapitre 2	105
Chapitre 3. Sources et dynamiques spatiales et temporelles des matières en suspension dans le bassin du Louroux, apports du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des radionucléides ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$.....	109	
1.	Examining suspended sediment sources and dynamics during flood events in a drained catchment using radiogenic strontium isotope ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios).....	112
1.1	Introduction	113
1.2	Material and methods	115

Table des matières

1.2.1.	Study site	115
1.2.2.	Sampling	117
1.2.3.	Sample processing and analysis	118
1.3	Results	121
1.3.1.	Spatial variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in sources (bedrock and soil samples).....	121
1.3.2.	Hydrological and geochemical characterizations of suspended sediment samples	122
1.3.3.	Relationship between $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratios in source and suspended sediment samples – end-member selection	124
1.3.4.	Preliminary quantification of source contributions to suspended sediment.....	127
1.4	Discussion	128
1.4.1.	Temporal variability of suspended sediment characteristics and source effect....	128
1.4.2.	Variations in source contributions to suspended sediment and modelling implications	131
1.4.3.	Sediment transfer through the drainage network	131
1.5	Conclusions.....	133
2.	Références bibliographiques Chapitre 3, article <i>Chemical Geology</i>	134
3.	Investigating temporal dynamics of suspended sediment during flood events with ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ measurements in a drained lowland catchment.....	137
3.1	Introduction.....	137
3.2	Results	139
3.2.1.	Flood characteristics.....	139
3.2.2.	Evolution of radionuclide activities (^7Be and 210Pb_{xs}) in suspended sediment....	141
3.2.3.	Evolution of the fraction of recently eroded particles during the five flood events	
	141	
3.2.4.	Intra-event variations of the fraction of recently eroded particles during the 2016 flood events.....	143
3.3	Discussion	144
3.3.1.	Hydro-sedimentary processes and sediment sources	144

Table des matières

3.3.2. Temporal dynamics of suspended sediment within floods and during successive flood events.....	145
3.3.3. Spatial variations of suspended sediment during a flood event.....	145
3.3.4. The use of ^{7}Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ to investigate suspended sediment dynamics	146
3.3.5. Sediment transport in drained catchments and management implications	146
4. Références bibliographiques Chapitre 3, article <i>Scientific Reports</i>	149
Chapitre 4. Traçage des sources de particules dans l'étang du Louroux, utilisation du ^{137}Cs et du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	153
1. Quantifying sediment sources in a lowland agricultural catchment pond using ^{137}Cs activites and radiogenic $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios.....	156
1.1 Introduction.....	157
1.2 Material and methods.....	160
1.2.1. Study site	160
1.2.2. Sample processing and laboratory analysis	162
1.2.3. Mineralogical characterization (SEM-EDS and X-ray diffraction).....	164
1.2.4. Source discrimination.....	165
1.2.5. Distribution modeling.....	165
1.3 Results	166
1.3.1. ^{137}Cs concentrations in source and sediment samples	166
1.3.2. Geochemical discrimination of potential sediment sources.....	167
1.3.3. Temporal variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in core sediment samples	170
1.3.4. Mineralogical characterization and selective extraction performed on selected core and pond sediment samples	170
1.3.5. Modeling results.....	171
1.4 Discussion	172
1.4.1. Surface and channel bank source contributions	172
1.4.2. Tributary contributions to pond sediment.....	174
1.4.3. Implications for sediment tracing, catchment management and future studies ...	176
1.5 Conclusions.....	177

Table des matières

2. Références bibliographiques Chapitre 4	178
Chapitre 5. Traçage des sources de particules dans le bassin de Guaporé (Brésil) : utilisation de la géochimie élémentaire et du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	185
1. Tracing sediment sources in a subtropical agricultural catchment of Southern Brazil cultivated with conventional and conservation farming practices	188
1.1 Introduction.....	189
1.2 Material and methods.....	191
1.2.1. Study site	191
1.2.2. Sampling	192
1.2.3. Hydrological characteristics.....	193
1.2.4. Sample processing and laboratory analysis	193
1.2.5. Source discrimination and modelling	194
1.3 Results	195
1.3.1. Geochemical discrimination of sediment sources	195
1.3.2. Modelling results	197
1.4 Discussion	199
1.4.1. Spatial and temporal variations of sediment sources	199
1.4.2. Management implications.....	201
1.5 Conclusions.....	203
2. Discussion complémentaire sur les paramètres utilisés pour discriminer les différents types de sols	204
3. Références bibliographiques Chapitre 5	208
Chapitre 6. Discussion, conclusions générales et perspectives	213
1. Bassin du Louroux.....	213
2. Bassin de Guaporé.....	216
3. Perspectives générales	226
4. Références bibliographiques Chapitre 6	228
ANNEXE A – Chapitre 3 – Supplementary Material <i>Chemical Geology</i>	231

Table des matières

ANNEXE B – Chapitre 3 – Supplementary Material <i>Scientific Reports</i>.....	236
ANNEXE C – Chapitre 4 – Supplementary Material <i>Science of the Total Environment</i>	239
ANNEXE D – Chapitre 5 – Supplementary Material <i>Land Degradation and Development</i>	248
LISTE DES FIGURES.....	251
LISTE DES TABLEAUX	258



Introduction générale

Introduction générale

Contexte et problématique

- **L'érosion hydrique, processus majeur de dégradation des sols**

Le **sol** est une ressource naturelle non renouvelable à l'échelle de la vie humaine. Soumise à divers processus de dégradation, cette ressource est vulnérable. Sa durabilité, ses fonctions écologiques, sa biodiversité et donc les services écosystémiques qu'elle peut rendre (stockage de carbone...) sont de plus en plus menacés par l'intensification des activités anthropiques. En effet, les sols sont à la base de la production alimentaire mondiale mais ils permettent également la production de carburants. Or, pour satisfaire les besoins alimentaires et énergétiques d'une population mondiale croissante (estimée à 8,1 milliard de personnes en 2025 et à 9,6 milliards en 2050 d'après l'Organisation des Nations Unies), les sols sont de plus en plus intensivement utilisés et les divers usages concurrentiels (agriculture, pâturage, foresterie...) auxquels ils sont soumis, couplés à une urbanisation croissante (en 2050, 66% de la population mondiale vivra en zone urbaine, ce qui correspond à une augmentation de 12% d'après l'Organisation des Nations Unies), engendrent leur dégradation. Actuellement, à l'échelle mondiale, 33% des terres sont modérément ou gravement dégradées par l'érosion, la salinisation, le compactage, l'acidification et la contamination des sols.

L'érosion est reconnue à l'échelle mondiale comme le facteur majeur de leur dégradation. En effet, la *Food and Agriculture Organization of the United Nations* (FAO) estime qu'entre 25 et 40 milliards de tonnes de sol provenant des couches superficielles sont érodées chaque année, ce qui entraîne une réduction considérable des rendements agricoles, mais aussi de la capacité du sol à stocker et recycler le carbone, les nutriments et l'eau. Parmi les différentes formes d'érosion (hydrique, éolienne, chimique, biologique), **l'érosion hydrique** est la forme d'érosion majoritaire.

Ce phénomène de mise en mouvement des particules de sol sous l'action des gouttes de pluie et du ruissellement se traduit en contexte agricole par une baisse des rendements et de la fertilité des sols et, dans certains cas, par la destruction des semences et la formation de ravines. En plus des pertes en terres engendrées et des dégâts causés aux productions agricoles, les particules transportées sont susceptibles d'atteindre le réseau hydrographique, entraînant une hausse de la turbidité et favorisant la sédimentation, le colmatage et l'envasement des cours d'eau et des retenues. Un transfert accru de contaminants (pesticides, métaux et métalloïdes, composés organiques...) préférentiellement associés à la fraction fine des particules est souvent observé (Owens et al., 2005). Ainsi, la baisse significative de la qualité écologique des cours d'eau s'avère être une conséquence négative majeure de l'érosion.

Introduction générale

Dans ce contexte, pour mettre en place des mesures efficaces de lutte contre l'érosion des sols, il est nécessaire de développer des méthodes de **traçage sédimentaire** pour améliorer l'identification des sources de particules et mieux contraindre leur dynamique à l'échelle du bassin versant. Cette thèse porte ainsi sur le traçage des sources de sédiments à l'amont de deux hydrosystèmes agricoles localisés en France et au Brésil.



Figure 1. Fonctions essentielles des sols et principales menaces qui pèsent sur cette ressource (FAO).

- **L'érosion des sols en contexte agricole, cas particuliers de deux bassins versants**

Le cas particulier des plaines agricoles européennes

L'érosion est reconnue en Europe comme le facteur le plus important de dégradation des sols. En effet, 17% de la surface de l'Europe est affectée à des degrés divers par l'érosion hydrique (Commission of the European Communities, 2006). Le taux moyen de formation des sols est estimé entre 30 et 120 t.km².an⁻¹ (Verheijen et al., 2009) alors que des taux d'érosion diffuse compris entre 120 et 360 t.km².an⁻¹ et nettement supérieurs à celui de formation des sols ont été estimés à l'échelle de l'Europe (Cerdan et al., 2010).

De plus, la Directive Cadre sur l'Eau (DCE) adoptée en 2000 (2000/60/CE) qui définit un cadre communautaire visant à garantir la protection des habitats naturels et des masses d'eau superficielles (douces et côtières) et souterraines avait pour objectif d'atteindre pour 2015 un « bon état » écologique et chimique des masses d'eau. Il s'agissait de promouvoir et de garantir une ressource durable en prévenant la détérioration des masses d'eau, mais aussi en l'améliorant et en la restaurant si nécessaire de manière à conserver ou à atteindre cet objectif de « bon état ». L'altération de la morphologie des cours d'eau, suite par exemple à des travaux de recalibrage qui induisent un écoulement uniforme et favorisent l'incision des cours d'eau, constitue l'un des principaux obstacles à l'atteinte de ce « bon état » écologique.

C'est dans ce contexte d'érosion des sols et de dégradation des cours d'eau que s'inscrivent les travaux développés sur le bassin du Louroux (Indre-et-Loire, France). En effet, le colmatage et l'envasement des cours d'eau se sont intensifiés au cours des dernières décennies suite aux modifications des pratiques agricoles (installation de réseaux de drainage, remembrements massifs...) qui ont engendré une augmentation des apports de matière solide aux rivières. Actuellement, des incertitudes demeurent quant aux sources de particules qui transitent au sein des bassins versants agricoles drainés. Les drains peuvent en effet faciliter le transfert des particules, mais des interrogations subsistent : les particules qui sont transportées dans les drains proviennent-elles de la surface ou de la profondeur des sols ? Enfin, en contexte drainé ou non, une fois transférées dans les rivières, les particules se déposent-elles dans le chenal avant d'être remises en suspension (laissant la possibilité à des processus physico-chimiques de se mettre en place) ou alors sont-elles directement transportées vers l'exutoire ?

Pour répondre à ces questions, trois projets successifs ont été financés par l'Agence de l'Eau Loire-Bretagne (AELB). Les travaux réalisés sur le bassin du Louroux au cours de cette thèse s'inscrivent dans le cadre du projet *Drastic* (Modélisation de l'érosion et du transfert sédimentaire dans les bassins versants drainés et validation spatio-temporelle) qui fait suite aux projets *Verseau* et

TrackSed, qui visaient à investiguer les liens entre érosion, connectivité et dégradation des masses d'eau. Ces deux projets ont permis la création d'une carte de l'aléa érosion et de la connectivité entre versants et cours d'eau à l'échelle de la région Loire-Bretagne. Ces études ont pointé le manque de données nécessaires à la quantification des processus sédimentaires à l'échelle du bassin versant. Dans ce contexte, le bassin versant du Louroux, localisé en Indre-et-Loire, a été instrumenté pour développer une méthodologie opérationnelle de caractérisation des sources de sédiments et de quantification des flux de particules. Le projet *Drastic* vise à poursuivre l'acquisition de données hydrosédimentaires sur le bassin du Louroux, à développer un modèle d'érosion et de transfert sédimentaire adapté aux bassins cultivés et drainés, et à calibrer et valider sur les plans spatial et temporel le modèle développé. Pour y parvenir, les sources doivent être clairement discriminées et la dynamique des particules bien appréhendée. Les travaux de cette thèse s'intègrent dans cette dernière partie du projet. L'ensemble de cette étude repose sur un partenariat entre le laboratoire GéHCO (GéoHydroSystèmes Continentaux) de l'Université de Tours, le BRGM (Bureau de Recherches Géologiques et Minière) et le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement) et fait suite aux travaux de thèse d'Anthony Foucher (2015), au cours desquels le bassin versant du Louroux a été instrumenté.

Le cas particulier des zones agricoles subtropicales du sud du Brésil

L'essor agricole du Brésil, et notamment la forte expansion de la culture du soja avec une croissance de la production de cette culture de 60% entre 2008 et 2014, ont fait du Brésil l'un des poids lourds de l'économie agricole mondiale. Cet essor s'est accompagné d'une intensification des pratiques agricoles et, donc, d'une forte détérioration des sols. L'érosion des sols est devenue l'un des facteurs majeurs de leur dégradation. Conscients des dégâts économiques (destruction des récoltes, perte de productivité) et environnementaux engendrés par l'érosion des sols, le gouvernement a mis en place dès les années 1990 des programmes (« *Program Against Rural Poverty* » ou PARP) visant à améliorer la gestion des terres agricoles, à réduire l'érosion ainsi que les transferts de sédiments en promouvant une agriculture durable et la protection des ressources naturelles. Cependant, les principes de l'agriculture de conservation n'ont pas été toujours rigoureusement suivis (semis-direct dans le sens de la pente la plus forte, couvert végétal trop faible...) et même si les taux d'érosion ont été considérablement réduits, les transferts de particules et de contaminants associés (pesticides, engrais...) vers l'hydrosystème ont été renforcés (Minella et al., 2008).

L'État méridional du Rio Grande do Sul, l'un des plus agricoles du pays, est directement impacté par cette problématique. Avant la mise en place de l'agriculture de conservation et à travers les six

millions d'hectares cultivés, le taux moyen d'érosion était estimé à 4000 t.km².an⁻¹ (Guerra et al., 2014). Actuellement, sur les versants cultivés, les taux d'érosion ont certes été réduits mais ils restent élevés (140 à 270 t.km².an⁻¹ d'après Didoné et al., 2014) et des débats demeurent quant à l'origine des particules qui transitent et colmatent les cours d'eau qui alimentent la lagune littorale de Porto Alegre.

Pour répondre à ces interrogations et fournir des explications quant à l'origine des particules, le projet « *Quantifying erosion rates and sediment sources in a catchment of southern Brazil* », financé par le programme franco-brésilien CAPES-COFECUB a été mis en place entre l'Université Fédérale de Santa Maria au Brésil et le LSCE. Il vise à tester l'utilisation de traceurs (radionucléides, géochimie) pour identifier les sources et quantifier la redistribution des sédiments dans des bassins versants agricoles afin de recommander des pratiques de conservation des sols pertinentes pour réduire les conséquences environnementales néfastes engendrées par l'arrachement des particules de sols. Trois volets constituent ce projet qui vise à (1) évaluer l'efficacité de l'utilisation des radionucléides pour quantifier la redistribution des sédiments, (2) identifier les sources de particules et (3) tester et valider des modèles mathématiques de simulation de l'érosion des sols pour évaluer l'impact de différentes mesures de conservation. Les travaux menés au cours de cette thèse sur le bassin de Guaporé participent au second volet de ce projet et visent à identifier les sources lithologiques des particules. Le traçage lithologique développé sur le bassin de Guaporé fait suite aux travaux de thèse de Tales Tiecher (2015), aux cours desquels l'ensemble des échantillons utilisés dans le cadre de la présente thèse ont été collectés, ont consisté à tracer les sources de particules selon l'usage des sols dans plusieurs bassins versants agricoles du Rio Grande do Sul.

Objectifs, démarche entreprise et organisation du manuscrit

• Objectifs

Ce travail de thèse a pour objectif de développer une approche de traçage des particules combinant des mesures d'isotopie du strontium (⁸⁷Sr/⁸⁶Sr), de concentrations élémentaires et de radionucléides (¹³⁷Cs, ⁷Be, ²¹⁰Pb) pour améliorer l'identification des sources de particules et contraindre leurs temps de transfert au sein des bassins versants. Les différentes propriétés de ces traceurs sont utilisées pour répondre à trois questions : quelles sont les sources lithologiques des particules (⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ; composition élémentaire), de quel compartiment des sols (¹³⁷Cs ; surface ou subsurface) proviennent-elles et quelle est leur dynamique temporelle (⁷Be, ²¹⁰Pb)?

Pour répondre à ces interrogations, deux bassins versants aux caractéristiques contrastées ont été sélectionnés pour y développer et y tester des méthodes originales de traçage des particules. Ces

travaux de thèse se sont d'abord focalisés sur le **bassin versant du Louroux** (24 km^2), localisé dans le bassin hydrographique de la Loire, en Indre-et-Loire, caractérisé par une agriculture intensive, par une surface drainée très importante (95% de la surface agricole utile) et par une topographie très plane. Au sortir de la Seconde Guerre Mondiale, l'agriculture a connu un développement sans précédent qui s'est traduit par la mutation des systèmes agricoles (remembrements, recalibrage des cours d'eau, mécanisation des cultures, installation d'un réseau de drainage...). Ces modifications se sont traduites sur le bassin du Louroux par une forte augmentation des flux de matières. Des taux actuels d'érosion connectée de l'ordre de 90 à $102 \text{ t.km}^2.\text{an}^{-1}$ ont été estimés (Foucher et al., 2014).

Les méthodes de traçage développées, et plus particulièrement l'utilisation de l'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) pour le traçage des sources de particules, ont été ensuite appliquées à un second site d'étude : le **bassin versant agricole de Guaporé** (2000 km^2), localisé au sud du Brésil et caractérisé par un climat plus érosif, une topographie plus accentuée et la présence de sols latéritiques. Dans cette région, les terres ont été mises en culture pour la première fois dans les années 1960, et une modification radicale des pratiques agricoles s'est opérée au cours des dernières décennies avec le développement de la monoculture intensive du soja. Le bassin de Guaporé est maintenant caractérisé par deux modes de cultures contrastés. L'amont du bassin est dédié à la culture intensive du soja. L'application du semis direct ainsi que le maintien d'un couvert végétal minimal sont censés y limiter la sensibilité des sols à l'érosion. En revanche, l'aval du bassin est dédié à une agriculture familiale traditionnelle (tabac, maïs...) plus ancienne, le labour y est pratiqué et l'application de méthodes de conservation des sols y est beaucoup moins développée. Des taux actuels d'érosion compris entre 140 et $270 \text{ t.km}^2.\text{an}^{-1}$ ont été estimés à l'exutoire du bassin (Didoné et al., 2014).

Une fois les sources de particules identifiées, celles-ci ont été quantifiées grâce au développement de modèles de mélange incorporant concentrations élémentaires, rapports isotopiques ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), et radionucléides selon la problématique envisagée (*i.e.* traçage lithologique des particules et/ou identification du compartiment de sol à la source des particules).

In fine, il s'agit également de développer des outils de traçage de particules efficaces pour apporter des informations aux gestionnaires et leur faciliter l'élaboration de recommandations pour une meilleure conservation des sols et pour lutter efficacement contre l'érosion des sols en contexte agricole.

- **Démarches entreprises**

L'approche envisagée de traçage des particules repose sur la méthode dite du *fingerprinting*. Celle-ci consiste à mesurer et à comparer les caractéristiques physiques et/ou chimiques des particules transitant en rivière et de leurs sources potentielles.

Différentes campagnes d'échantillonnages ont été réalisées en amont et pendant la thèse pour caractériser les particules et leurs sources. Ces travaux de thèse se sont d'abord attachés à identifier les sources de particules et à étudier leur dynamique au sein du bassin versant du Louroux.

Sur le bassin du Louroux, un échantillonnage de la surface des sols ($n=36$) et des berges ($n=17$) qui constituent les principales sources potentielles de particules a été réalisé dans l'ensemble du bassin entre 2012 et 2014 de manière à couvrir les différentes lithologies rencontrées. Des échantillons de matières en suspension (MES) ont été prélevés lors de trois crues (2013-2014) sur les principaux affluents de l'étang ($n=19$) et une carotte de 1,10 m de longueur ($n=20$) ainsi que des sédiments de surface ($n=42$) ont été collectés dans ce dernier. Des mesures géochimiques (élémentaire et isotopique) et de spectrométrie gamma ont été réalisées sur l'ensemble de ces échantillons.

Très instrumenté, d'une superficie limitée et caractérisé par une lithologie contrastée (*i.e.* carbonates vs silicates), le bassin pilote du Louroux constitue un site idéal pour le développement d'une méthode robuste de traçage des particules combinant mesures d'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) et de radionucléides. En effet, l'identification et la quantification des sources de particules ont pu être menées avec rigueur en menant une étude multi-échelles (spatiale et temporelle). Celle-ci s'est d'abord intéressée à l'identification des sources de MES et l'étude de leur dynamique au cours de trois crues, puis à la discrimination et la quantification des sources spatiales et temporelles des sédiments accumulés dans l'étang du Louroux, à l'exutoire du bassin versant. Une attention particulière a été portée à la remise en perspective de l'évolution des contributions spatiales et temporelles des différentes sources de sédiments faisant suite aux modifications des pratiques agricoles sur le bassin au cours des dernières décennies.

Une fois la méthodologie développée et validée à l'échelle du Louroux, les travaux de thèse se sont focalisés sur le bassin de Guaporé où cette méthodologie a été transposée. Un échantillonnage des sources potentielles de sédiments ($n=84$) a été réalisé de manière à couvrir les différents types (Ferralsol, Nitisol, Acrisol, Luvisol et Leptosol) et usages de sols du bassin, et des échantillons de sédiments ont été collectés dans des trappes en amont ($n=15$) et à l'exutoire du bassin ($n=8$) sur la rivière Guaporé entre 2012 et 2014. En raison de la faible quantité de matière disponible, seules des mesures géochimiques ont été réalisées sur ces échantillons. Les sources de particules ont été identifiées grâce à l'apport de la géochimie élémentaire et de l'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$). Les

paramètres les plus discriminants des différents types de sols ont été utilisés pour estimer la contribution respective de chaque type de sol aux sédiments grâce à des modèles de mélange. Les variations observées ont été étudiées et expliquées en lien avec l'évolution des conditions hydrologiques de la rivière Guaporé. Une spécificité de ce bassin réside dans la distinction entre sols amont, caractérisés par la culture intensive du soja et le recours à une agriculture de conservation, et sols aval, où de petites exploitations agricoles familiales pratiquent l'agriculture sans mesures coordonnées de conservation des sols. Ainsi, l'un des enjeux de ce travail a résidé dans la discrimination des sources de particules selon la lithologie mais aussi selon le type d'agriculture pour pouvoir clairement identifier les contributeurs majeurs de particules à l'hydrosystème.

Enfin, outre le développement d'une méthode originale de traçage des particules, ces travaux de thèse ont visé à améliorer la compréhension de l'origine des flux de matière générés par l'érosion des sols dans divers contextes agricoles et des processus de transfert du sol vers la rivière pour préconiser des mesures efficaces de lutte contre l'érosion.

- **Organisation du manuscrit**

Ce manuscrit est organisé en six chapitres. Le travail réalisé a été valorisé sous la forme de quatre articles scientifiques soumis ou publiés dans des revues internationales, et incorporés dans les chapitres 3, 4 et 5 de ce manuscrit.

Le **chapitre 1** consiste en une synthèse bibliographique portant sur l'érosion des sols, la dynamique sédimentaire et le traçage des particules dans les bassins versants agricoles. Cet état de l'art décrit de manière non-exhaustive les processus érosifs et les transferts de sédiments dans les plaines agricoles du Nord-Ouest de l'Europe et les terres agricoles subtropicales du sud du Brésil. Le principe de la méthode du *fingerprinting* et les traceurs utilisés sont également présentés.

Le **chapitre 2** présente les principales caractéristiques des deux bassins versants sélectionnés. L'ensemble des échantillonnages réalisés en amont ou au cours de la thèse est exposé. La préparation des échantillons et les méthodes analytiques employées (géochimie des éléments majeurs et traces, géochimie isotopique du strontium et spectrométrie gamma) sont également décrites.

Les **chapitres 3 et 4** portent sur les travaux menés au cours de la première partie de cette thèse sur le bassin du Louroux. Le chapitre 3 se focalise sur les sources et la dynamique temporelle des matières en suspension qui transitent au sein du bassin du Louroux. Ce travail a fait l'objet d'un premier article soumis à *Chemical Geology*, intitulé « *Examining suspended sediment sources and dynamics during flood events in a drained catchment using radiogenic strontium isotope ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)* » et d'un

Introduction générale

second article qui sera prochainement soumis à *Scientific Reports* et qui est intitulé « *Investigating temporal dynamics of suspended sediment during flood events with ^{7}Be and $^{210}Pb_{xs}$ measurements in a drained lowland catchment* ». Le chapitre 4 porte sur l'identification des sources des sédiments accumulés dans l'étang du Louroux, à l'exutoire du bassin. Cette étude a été publiée dans l'article « *Quantifying sediment sources in a lowland agricultural catchment pond using ^{137}Cs activities and radiogenic $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratios* » paru dans *Science of the Total Environment*.

Le **chapitre 5** constitue la seconde partie de cette thèse qui vise à tester la méthode de traçage des particules développée dans les chapitres précédents. Les travaux présentés portent sur le traçage des sources de particules dans le bassin de Guaporé (Brésil) à partir du rapport $^{87}Sr/^{86}Sr$ et de la géochimie élémentaire, et ont fait l'objet de la soumission d'un article intitulé « *Tracing sediment sources in a subtropical catchment of Southern Brazil cultivated with conventional and conservation practices* » et soumis à *Land Degradation and Development*.

Enfin, la dernière partie de ce manuscrit s'attache à récapituler l'ensemble des résultats obtenus au cours de cette thèse et à les mettre en **perspective** au travers d'une **discussion** et d'une **conclusion générales** qui constituent le **chapitre 6** de ce manuscrit.

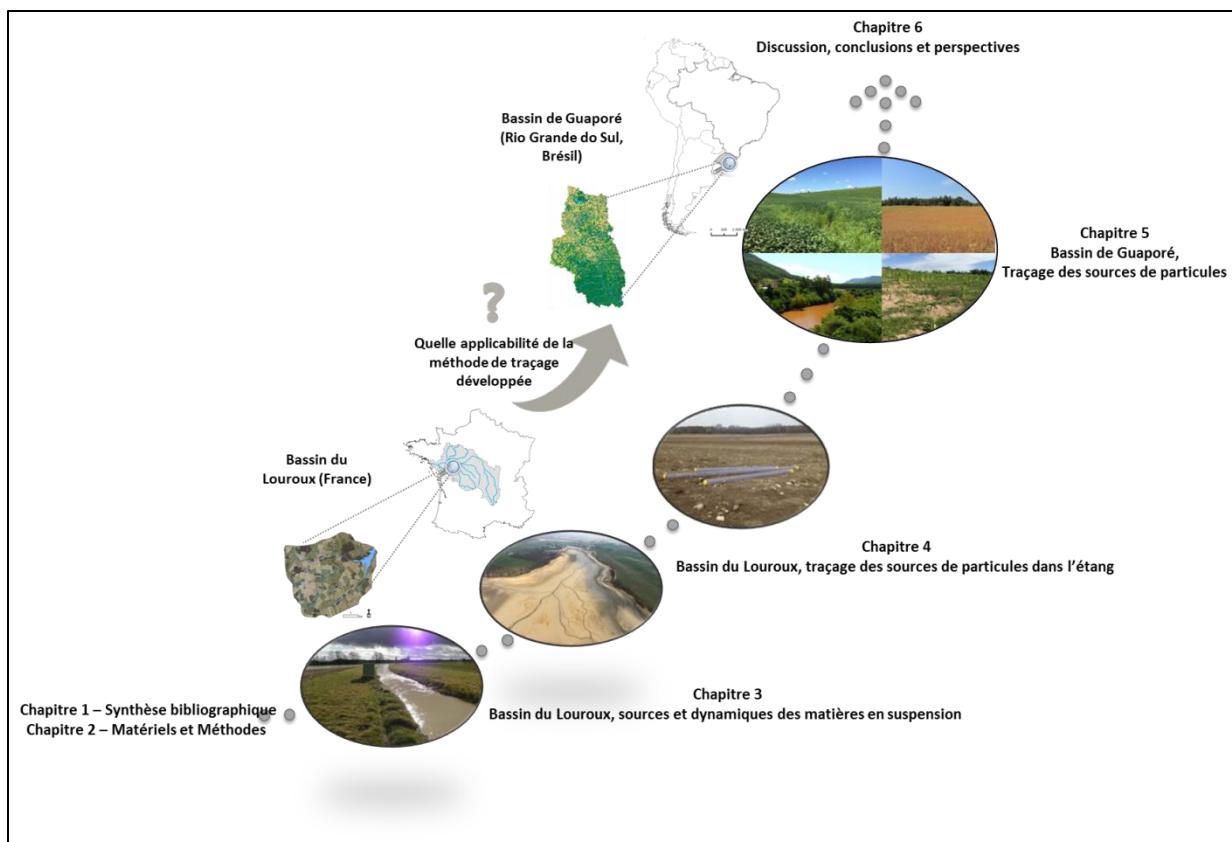


Figure 2. Organisation du manuscrit.

Références bibliographiques

- Cerdan, O. et al., 2010. Rates and spatial variations of soil erosion in Europe: A study based on erosion plot data. *Geomorphology*, 122(1-2): 167-177.
- Commission of the European Communities, 2006. Communication from the Commission to the Council, the European Parliament, the european economic and social Committee and the Committee of the regions - Impact assessment of the thematic strategy on soil protection. .
- Didoné, E.J., Minella, J.P.G., Reichert, J.M., Merten, G.H., Dalbianco, L., de Barros, C.A.P., Ramon, R., 2014. Impact of no-tillage agricultural systems on sediment yield in two large catchments in Southern Brazil. *Journal of Soils and Sediments*, 14(7): 1287-1297.
- Foucher, A., 2015. Reconstruction de la cascade sédimentaire en contexte de plaine agricole drainée : Sources, voies de transfert et stockage de matière dans le bassin versant du Louroux (Indre-et-Loire) - Univresité François Rabelais de Tours, Ecole doctorale EMSTU, Thèse, 203 pp.
- Guerra, A.J.T., Fullen, M.A., Jorge, M.C.O., Alexandre, S.T., 2014. Soil erosion and conservation in Brazil. *Anuário do Instituto de Geociências - UFRJ*, 37(1): 81-91.
- Minella, J.P.G., Walling, D.E., Merten, G.H., 2008. Combining sediment source tracing techniques with traditional monitoring to assess the impact of improved land management on catchment sediment yields. *Journal of Hydrology*, 348(3-4): 546-563.
- Owens, P.N., Batalla, R.J., Collins, A.J., Gomez, B., Hicks, D.M., Horowitz, A.J., Kondolf, G.M., Marden, M., Page, M.J., Peacock, D.H., Petticrew, E.L., Salomons, W., Trustrum, N.A., 2005. Fine-grained sediment in river systems: environmental significance and management issues. *River Research and Applications*, 21(7): 693-717.
- Tiecher, T., 2015. Fingerprinting sediment sources in agricultural catchments in southern Brazil, Universidade Federal de Santa Maria, Graduate programm in soil science - Université de Poitiers, Ecole doctorale Gay Lussac, Thèse, 275 pp.
- Verheijen, F.G.A., Jones, R.J.A., Rickson, R.J., Smith, C.J., 2009. Tolerable versus actual soil erosion rates in Europe. *Earth-Science Reviews*, 94(1-4): 23-38.

CHAPITRE 1

Synthèse bibliographique

Chapitre 1. Synthèse bibliographique : érosion des sols et traçage des sédiments dans les bassins versants

Ce chapitre présente une synthèse de la littérature existante sur l'érosion des sols et le traçage des sédiments dans les bassins versants. En effet, les processus gouvernant l'érosion des sols diffèrent fortement selon les échelles de temps et d'espace étudiées, et les outils associés au traçage des particules dans ces différents contextes sont très nombreux et variés. Cette synthèse n'a pas vocation à être exhaustive et elle se concentrera sur les zones géographiques étudiées dans ce travail et la période de temps correspondant aux grandes mutations des pratiques agricoles. Ce chapitre est divisé en trois sections portant successivement sur la dynamique sédimentaire et l'érosion des sols en contexte agricole, puis sur les méthodes de traçage des sédiments et sur les traceurs choisis pour discriminer et quantifier les sources de sédiments dans les bassins versants sélectionnés dans cette thèse.

1. Dynamique sédimentaire et érosion des sols en contexte agricole

1.1 L'érosion des sols, processus et facteurs

Les sols sont naturellement soumis à des processus d'érosion. Les sols agricoles sont particulièrement affectés par l'érosion hydrique, qui constitue un phénomène de mise en mouvement des particules sous l'impact des gouttes de pluies et du ruissellement. Une fois détachées, les particules sont transportées de l'amont des versants vers l'aval où elles peuvent se déposer et/ou atteindre le réseau hydrographique. Seul le phénomène d'érosion hydrique est présenté et discuté dans cette synthèse. En effet, même si d'autres formes d'érosion telles que l'érosion éolienne sont capables de mobiliser les particules de sol, celle-ci reste faible dans les bassins versants sélectionnés et est donc considérée comme négligeable.

Le détachement des particules de sol se fait sous l'action directe de la pluie (McIntyre, 1958). Quatre mécanismes dont l'intensité varie selon la nature du sol et l'intensité de l'évènement pluvieux participent à leur désagrégation et à leur transport (Le Bissonnais, 2000; Le Bissonnais and Le Souder, 1995; Le Souder, 1990). (1) **L'éclatement** intervient suite à l'humectation rapide des agrégats. L'air est piégé au sein des agrégats, la pression interne s'élève et les agrégats se désagrègent. L'éclatement dépend de la teneur en eau initiale des agrégats et de leur porosité. Les sols argileux, du fait de leur faible porosité et de leur importante capacité de rétention en eau, sont moins affectés par ce phénomène que les sols sableux et limoneux (Le Bissonnais, 1988). (2) **La désagrégation mécanique** sous l'impact des gouttes de pluie fragmente les agrégats et détache les particules de

leur surface. Ce mécanisme, prédominant à partir du moment où les sols sont saturés, nécessite une pluie d'une certaine énergie, variable selon la nature des sols. L'énergie cinétique des gouttes de pluie n'est plus absorbée par les sols, mais transformée en une force de cisaillement qui génère le détachement des particules de sol (Al-Durrah and Bradford, 1982). (3) **La désagrégation par gonflement différentiel** résulte de phénomènes de gonflement et de retrait de l'eau présente suite à l'humectation et à la dessiccation des sols (argileux en particulier). Ces phénomènes entraînent la microfissuration des agrégats et participent à la réduction du diamètre moyen de la taille des particules (Le Bissonnais and Le Souder, 1995). (4) **La dispersion physico-chimique** résulte de la réduction des forces d'attraction entre particules colloïdales lors de l'humectation et dépend de la taille et de la valence des cations présents qui peuvent former des ponts entre les particules chargées négativement.

Une fois désagrégées, les particules se déplacent par effet « *splash* ». Sous l'action directe des gouttes de pluie, les particules mises en mouvement peuvent être projetées jusqu'à quelques dizaines de centimètres et générer d'importants déplacements de terre à la surface du sol. Le déplacement des particules s'accompagne d'une réorganisation structurale, la surface du sol peut passer d'un état poreux à un état compact, formant une croûte de battance qui diminue la vitesse d'infiltration de l'eau dans le sol et favorise alors la formation de ruissellement (Figure 1.1).



Figure 1.1. Etat fragmentaire des sols après travail (a), effet « *splash* » avec mise en mouvement des particules sous l'action des gouttes de pluie (b), formation d'une croûte sédimentaire (c), ruissellement en nappe et érosion diffuse (d) (a, b, c, d'après le mémoire d'HDR d'O. Evrard (2014) ; d, photographie A. Foucher).

L'eau, en ruisselant à la surface du sol, exerce une force de cisaillement et arrache des particules qui sont transportées par la lame d'eau. Le ruissellement dépend de la nature du sol et de son état de surface et se forme généralement lorsque l'intensité de la pluie est supérieure à la capacité d'infiltration du sol (ruissellement hortonien) ou lorsqu'il pleut sur un sol déjà saturé (ruissellement par saturation) (Fournier, 1972; Horton, 1945; Morgan et al., 1986). L'écoulement des particules le long des versants est d'autant plus intense que la pente est forte. Cet écoulement peut engendrer la formation de rigoles (quelques centimètres de profondeur), et lorsqu'il se concentre, la formation de ravines (d'une dizaine de centimètres à plusieurs mètres). Les particules de sol ainsi détachées et transportées ou non via le réseau hydrographique peuvent s'accumuler et sédimerter en aval.

L'érosion hydrique dépend de facteurs naturels tels que les conditions climatiques, topographiques, les propriétés physico-chimiques des sols, le degré de couverture végétale mais aussi de facteurs anthropiques et notamment des pratiques agricoles. L'ensemble de ces facteurs sont pris en compte dans l'équation universelle des pertes en sol (*Universal Soil Loss Equation – USLE*) (Wischmeier and Smith, 1978) qui permet d'estimer les pertes en terre annuelles moyennes à long terme pour des placettes de sol de dimensions données.

L'importance du facteur **climat** se traduit par l'intensité, le cumul et la fréquence des précipitations. Le potentiel érosif d'une pluie se traduit par sa capacité à éroder les particules du sol et il dépend majoritairement de l'intensité des précipitations qui influe directement sur la formation du ruissellement et donc sur le détachement des particules du sol par effet « *splash* ». Plus le cumul des précipitations est important, plus les quantités de sédiments érodés et exportés sont élevées. Enfin, la fréquence des précipitations (répartition saisonnière) est également importante. A titre d'exemple, des pluies hivernales fréquentes et de faible intensité n'auront pas le même impact que des orages de printemps, ou que de fortes pluies survenant après une longue période de sécheresse.

La **topographie** des bassins versants constitue un facteur majeur de l'érosion des sols. L'inclinaison, la longueur et la forme de la pente d'un bassin influent en effet directement sur l'érosion. Plus l'inclinaison d'une pente est forte (>5%), plus l'énergie cinétique du ruissellement est élevée et plus celui-ci est à même d'éroder les particules du sol (Kirby, 1969; Zingg, 1940). Ce phénomène est d'autant plus intense que la pente est longue. En effet, le ruissellement est susceptible de prendre de la vitesse le long de la pente pour se concentrer en aval et engendrer une érosion sous forme de rigoles et de ravines (Valentin et al., 2005). En revanche, sur des pentes faibles (1 à 2%), l'écoulement aura plutôt tendance à s'infiltrer dans le sol et à favoriser le dépôt et la sédimentation des particules transportées. Cependant, lorsque l'intensité des pluies est supérieure à la capacité d'infiltration des sols, l'excédent d'eau s'accumule en surface, et engendre un ruissellement.

La **lithologie et le couvert pédologique** des bassins versants impactent également l'érosion des sols. L'érodabilité d'un sol correspond à sa capacité à résister aux processus d'érosion et dépend de sa composition et de sa structure. Les propriétés physico-chimiques du sol (texture, cations échangeables, cohésion entre particules) sont des paramètres majeurs pour caractériser l'érodabilité d'un sol.

Les sols d'un bassin offrent une résistance à l'érosion qui varie selon leurs caractéristiques. En effet, leur stabilité structurale dépend de divers facteurs. Les plus souvent évoqués dans la littérature sont la texture (teneur en argiles), la minéralogie des argiles, les teneurs en matière organique, en cations, en oxydes de fer et d'aluminium et en carbonates des sols (Le Bissonnais & Le Souder, 1995).

A titre d'exemple, des sols riches en limons et en sables sont particulièrement sensibles à l'érosion. La faible cohésion des particules de sol qui les constituent facilite leur désagrégation sous l'action des gouttes de pluie (Kwaad, 1977). Ce phénomène, surtout observé en domaine agricole, engendre une diminution de la porosité du sol et réduit considérablement l'infiltration de l'eau dans le sol. De plus, certains éléments chimiques interviennent également pour déterminer la stabilité et la sensibilité des sols face à l'érosion. Le calcium est par exemple connu pour favoriser la formation d'agrégats et donc stabiliser les sols. Le sodium en revanche joue plutôt le rôle de dispersant et contribue à la désagrégation des particules de sol (Wuddivira & Camps-Roach, 2007).

Le **couvert végétal** joue un rôle protecteur face à l'érosion des sols. En effet, la végétation protège la surface du sol et forme un obstacle aux gouttes de pluie. Le détachement des particules par effet « *splash* » est ainsi limité et la vitesse du ruissellement, réduite (Le Bissonnais et al., 2005). En particulier, les racines jouent un rôle de stabilisation en maintenant les particules du sol en place et en limitant leur arrachement (Patin et al., 2012). Le couvert végétal évolue au cours de l'année, la sensibilité des sols agricoles face à l'érosion est dès lors plus élevée avant la mise en culture des parcelles, lorsque le sol est dépourvu de couvert végétal et, ce, jusqu'à ce que les cultures soient suffisamment denses pour protéger le sol de l'impact des gouttes de pluie (Evrard et al., 2008; Zhongming et al., 2010). Il est également important de noter que la teneur en matière organique d'un sol influe aussi sur sa stabilité. En effet, de fortes teneurs en matière organique issue de la décomposition des végétaux améliorent la stabilité des agrégats du sol face à l'érosion (Annabi et al., 2011; Six et al., 2002).

L'érosion des sols est, enfin, directement liée aux **activités humaines**. En effet, l'occupation des sols et les modifications des paysages agricoles, avec la mise en place de bandes enherbées ou de haies, ont tendance à réduire l'érosion des sols (Verheijen et al., 2009). Cependant, certaines pratiques peuvent aussi induire une érosion accélérée des sols. C'est notamment le cas lorsque les sols sont

cultivés dans le sens de la plus forte pente ou lorsque les pratiques agricoles impliquent le recours à un travail mécanique intense des sols (labour) (Lindstrom et al., 1992; Van Oost et al., 2009).

1.2 Transport et transfert des sédiments en rivière

Les particules de sols érodées sont redistribuées au sein des bassins versants sur de plus ou moins longues distances et peuvent être transportées par le réseau hydrographique lors de phases successives de transport, de dépôt et de remobilisation.

La mobilisation et le transport des sédiments dans les cours d'eau dépendent de la connectivité des versants avec l'hydrosystème, mais aussi de l'intensité et la durée des événements pluvieux, et donc des conditions hydro-climatiques (Koiter et al., 2013a; Smith et al., 2014). Le transport des particules dépend de la vitesse d'écoulement de l'eau et de la taille des particules (Govers, 1995). Une sélectivité granulométrique s'opère lors de leur transport, les particules fines ($<63 \mu\text{m}$) sont préférentiellement érodées et transportées en suspension au sein de la colonne d'eau sur de plus longues distances que les particules plus grossières ($<2 \text{ mm}$), plus difficiles à éroder et transportées par saltation et charriage au bas de la colonne d'eau (Figure 1.2).

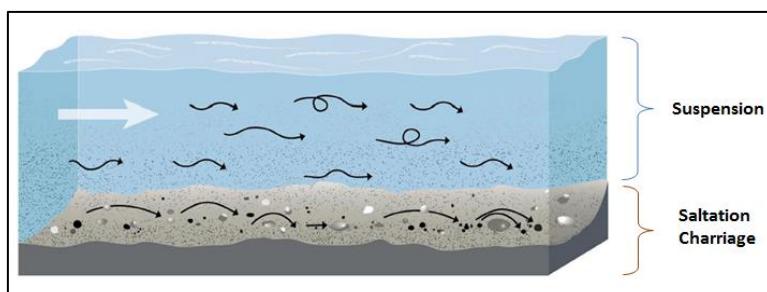
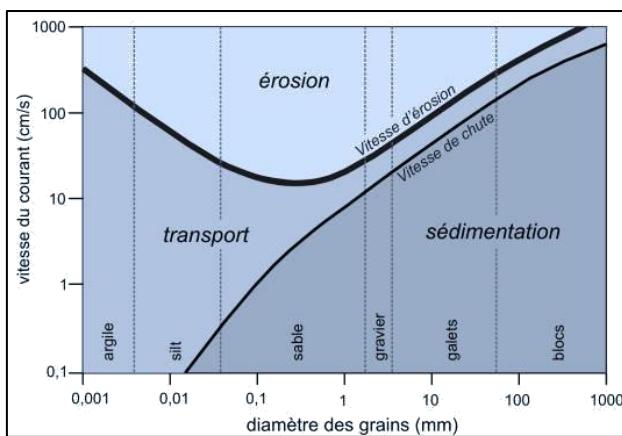


Figure 1.2. Transport des particules par suspension, saltation et charriage (MOOC « Des rivières et des Hommes »).

Les particules transportées finissent par se déposer et sédimerter en aval d'une parcelle agricole, dans un fossé, sur une route ou au sein du réseau hydrographique selon l'environnement considéré. Elles se déposent successivement selon leur granulométrie et la vitesse d'écoulement de l'eau. Les particules les plus grossières sont les plus rapides à sédimerter alors que les plus particules plus fines parcourent de plus grandes distances (Issa et al., 2006). Ce phénomène est particulièrement bien décrit par le diagramme de Hjulström qui illustre le comportement des particules au sein d'un écoulement liquide selon leur taille et leur vitesse (Hjulström, 1935) (Figure 1.3).

Figure 1.3. Diagramme de Hjulström (d'après theses.univ-lyon2.fr)

1.3 Quantification de l'érosion des sols

La quantification et la modélisation de l'érosion des sols ont pour but d'estimer les pertes de terre pour guider la mise en place de mesures de conservation du sol et limiter les départs de sol sur les versants. De nombreux modèles d'érosion existent et permettent d'estimer différents risques, qu'il s'agisse d'un aléa érosion (probabilité d'occurrence de l'érosion des sols) (Hessel et al., 2014; Le Bissonnais et al., 2002), de quantifier des flux de particules (Evrard et al., 2010b; Gay et al., 2014; Sogon et al., 1999) ou encore de spatialiser les taux d'érosion et d'accumulation des sols et d'évaluer l'impact de certaines mesures pour lutter contre l'érosion, comme l'installation de bandes enherbées (Blake et al., 1999; Lacoste et al., 2014; Minella et al., 2014; Walling et al., 2002).

La quantification et la modélisation de l'érosion des sols s'inscrivent dans une démarche pluridisciplinaire. En effet, l'étude des processus d'érosion se situe à l'interface de diverses disciplines : l'hydrologie (précipitations, écoulements de surface), la pédologie (états de surface des sols, propriétés physico-chimiques des sols) et l'agronomie (pratiques agricoles). Leur variabilité spatio-temporelle constitue une difficulté majeure dans la modélisation de l'érosion des sols. Les phénomènes érosifs ne sont en effet pas uniformes dans le temps et dépendent des saisons, des événements extrêmes ou encore des cycles des cultures. De même, une variabilité spatiale s'opère selon les types de culture, la nature des sols ou encore la topographie. De nombreux modèles ont été développés mais ils diffèrent selon la complexité de l'objectif à atteindre, la disponibilité des données d'entrée du modèle et les processus décrits par ce dernier. Le choix du modèle le plus approprié dépendra de l'objectif fixé, des données disponibles et des caractéristiques du site étudié.

Deux types de modèles sont couramment utilisés : les modèles empiriques basés sur l'équation universelle des pertes en terre (USLE) et les modèles déterministes à base physique qui cherchent à quantifier et cartographier l'érosion en se basant sur la description des paramètres et des processus

de l'érosion. La plupart de ces modèles reposent sur deux paramètres essentiels : l'érosivité et l'érodabilité. L'érosivité de la pluie ou du ruissellement correspond à la capacité de l'agent érosif concerné à détacher et à transporter des particules sous son action alors que l'érodabilité d'un sol correspond à sa sensibilité face à un agent érosif, il s'agit donc d'un paramètre intrinsèque au sol soumis à l'érosion. Ainsi, chaque modèle est développé selon un objectif précis, et aucun modèle ne peut être considéré comme applicable à toute situation.

A titre d'exemple, le modèle d'aléa érosion MESALES a permis de montrer qu'en France, près de 18% des sols sont considérés comme présentant un risque d'érosion moyen à fort (Figure 1.4) et à l'échelle de l'Europe, 26 millions d'hectares seraient affectés par l'érosion hydrique des sols (GIS SOL) et des taux d'érosion moyens compris entre 120 et 360 t.km².an⁻¹ seraient caractéristiques des zones arables (Cerdan et al., 2010).

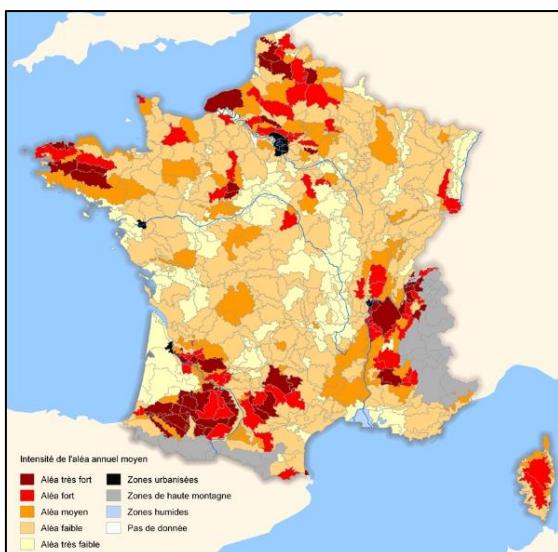


Figure 1.4. Carte de l'aléa d'érosion des sols en France estimé à l'aide du modèle MESALES (Modèle d'évaluation spatiale de l'aléa d'érosion des sols) développé par l'INRA (GIS SOL, 2000).

La géochimie constitue un outil complémentaire pour la compréhension des mécanismes d'altération et des processus d'érosion des sols. En effet, l'étude des interactions entre érosion, climat et géodynamique grâce aux traceurs géochimiques contribue à caractériser la dynamique des cycles biogéochimiques du carbone, des éléments majeurs et à l'état de traces sur de longues périodes et de rendre compte des impacts anthropiques sur ces cycles biogéochimiques (Goddéris et al., 2014; Oelkers et al., 2012; Pokrovsky et al., 2012).

Les processus d'altération des sols, l'évolution spatio-temporelle des sédiments et leur transport dans les rivières ont été étudiés notamment grâce aux traceurs géochimiques de la chaîne de l'uranium (Chabaux et al., 2006; DePaolo et al., 2012) ou aux isotopes stables tels que le bore, le calcium, le lithium, le magnésium ou la silice (Dellinger et al., 2014; Pogge von Strandmann et al.,

2012; Schmitt et al., 2012). Contrairement à certaines de ces études qui s'intéressent aux taux d'érosion ou de dénudation à long terme, seule l'érosion contemporaine des sols est étudiée dans ce manuscrit.

1.4 Enjeux et conséquences de l'érosion et du transport sédimentaire

A l'échelle mondiale, la FAO estimait en 2008 que 20% des terres cultivées (310 Mha), 30% des forêts et 20% des prairies étaient soumises à un mode de dégradation des sols. En parallèle, le programme GLASOD (*Global Assessment of Human-Induced Soil Degradation*) a développé une carte mondiale de la dégradation des sols et identifié quatre degrés de dégradation allant d'une faible à une extrême dégradation des sols (Figure 1.5).

L'érosion des sols est reconnue comme le phénomène mondial majeur de leur dégradation. Ainsi, deux sites d'études sensibles au phénomène d'érosion et aux caractéristiques contrastées ont été sélectionnés pour développer de nouvelles méthodes de traçage sédimentaire. D'après la carte mondiale de dégradation des sols, les bassins du Louroux (24 km², Indre-et-Loire, France) et de Guaporé (2000 km², Rio Grande do Sul, Brésil) sont soumis au phénomène d'érosion hydrique, à des degrés divers. En effet, le bassin du Louroux, localisé en Loire moyenne et caractéristique des plaines agricoles du Nord-Ouest de l'Europe, se situe dans une région où les sols sont définis comme faiblement dégradés alors que les sols du bassin de Guaporé, caractéristique des zones agricoles subtropicales du sud du Brésil, sont considérés comme très fortement dégradés. Cependant, malgré ces degrés de dégradation différents, des taux actuels d'érosion de 90-102 t.km⁻².an (Foucher et al., 2014) et de 140 t.km⁻².an (Didoné et al., 2014) ont été respectivement estimés à l'exutoire des bassins du Louroux et de Guaporé. Ainsi, ces deux bassins où les caractéristiques en termes de superficie, de climat, de pédologie, d'occupation des sols et de pratiques agricoles varient considérablement induisent des processus d'érosion et des transferts de sédiments différents. Du fait de cette forte variabilité, ces deux zones d'étude constituent un choix judicieux pour le développement de méthodes originales de traçage des particules et pour l'étude de leur dynamique. Les caractéristiques de ces deux sites d'études seront détaillées dans le second chapitre de ce manuscrit.

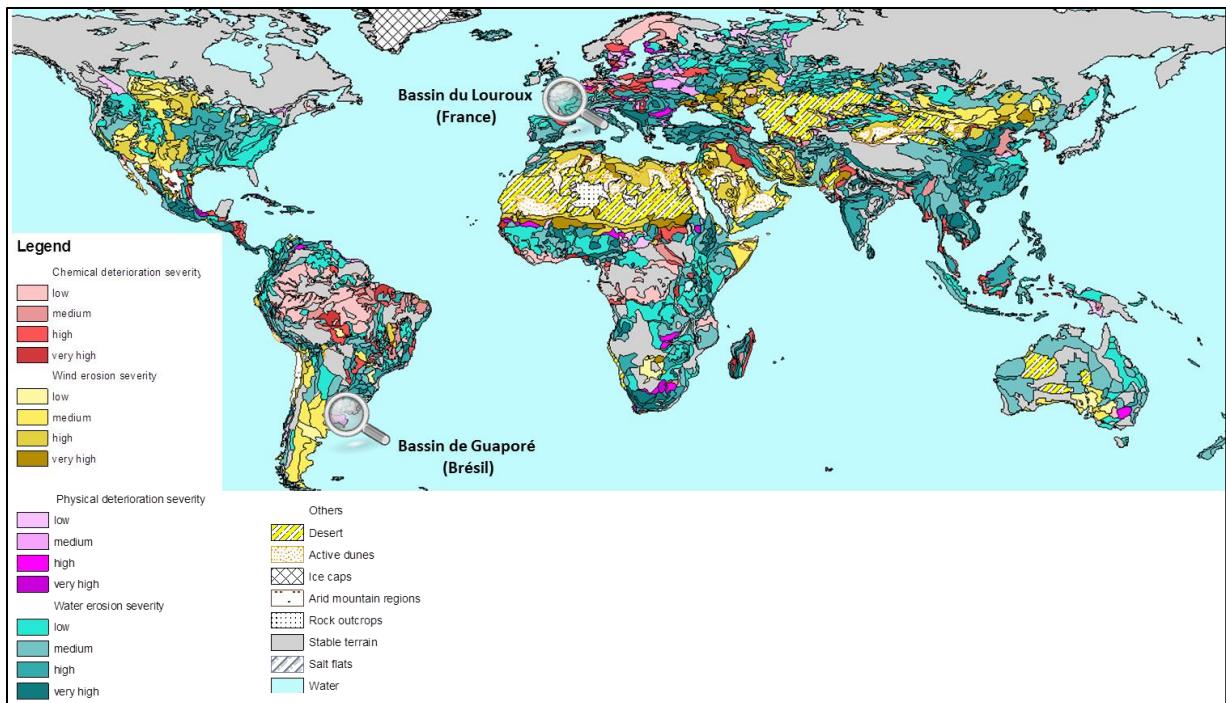


Figure 1.5. Carte mondiale contemporaine de la dégradation des sols induite par l'homme (d'après GLASOD) et localisation des deux sites d'étude sélectionnés (France, Brésil).

1.4.1. Les plaines agricoles du Nord-Ouest de l'Europe, cas du bassin versant du Louroux (Indre-et-Loire, France)

- *L'avènement de l'agriculture moderne en France*

A l'issue de la seconde guerre mondiale, l'agriculture a connu un développement sans précédent en Europe. Au sortir de la guerre, la France se reconstruit et réorganise son agriculture en la modernisant. En quelques décennies, les paysages agricoles européens et français sont bouleversés. Pour accroître la production agricole et atteindre l'autosuffisance alimentaire, de nouveaux systèmes culturels se développent (Antrop, 2005). La révolution agricole repose sur plusieurs principes fondamentaux que sont l'accroissement de la production végétale et animale, et l'augmentation de la surface des exploitations (Flamant, 2010). C'est ainsi que les petites fermes laissent peu à peu la place à des entreprises agricoles gérées de manière à augmenter les rendements et la productivité (Desriers, 2007).

Les paysages ruraux sont redéfinis et la taille des exploitations augmente considérablement. Cette politique de remembrement intensif est particulièrement menée dans les plaines agricoles céréalières françaises. Le regroupement et l'agrandissement des parcelles engendrent une mécanisation quasiment systématique des campagnes. Pour accroître les rendements, l'utilisation massive d'intrants (amendements, engrais et produits phytosanitaires) et la spécialisation de la production (monoculture) se généralisent.

Ces mutations agricoles ont, en l'espace de quelques décennies, fait de la France le premier producteur agricole de l'Union Européenne. Cependant, à partir du milieu des années 1980, cette agriculture intensive qualifiée de productiviste est de plus en plus soumise aux critiques des consommateurs, massivement informés par les médias. En effet, les crises sanitaires successives (ex. crise de la vache folle en 1996) et la dégradation de la qualité de l'environnement (pollution des eaux, des sols...) ont engendré une prise de conscience quant aux limites de l'agriculture intensive. C'est dans ce contexte que la problématique de la préservation des hydrosystèmes et de la ressource sol émerge en France et plus largement en Europe (Flamant, 2010).

- *L'érosion des sols, conséquence majeure de l'intensification de l'agriculture*

La littérature s'est intéressée dès le début des années 1980 aux conséquences de l'agriculture intensive et plus généralement de l'anthropisation galopante sur la qualité des écosystèmes (Dearing et al., 1981; Forstner and Wittmann, 1981; Lindstrom et al., 1992; Meybeck and Helmer, 1989). En plus de la dégradation de la qualité écologique des cours d'eau, l'érosion des sols constitue une des conséquences directes de l'intensification des pratiques agricoles.

En effet, les phénomènes érosifs, de plus en plus récurrents, constituent un des processus majeurs de dégradation des sols et menacent directement leur durabilité (Commission of the European Communities, 2006). L'érosion des sols est particulièrement intense dans les zones agricoles où les aménagements sur les versants, en augmentant la connectivité entre les sources de particules et les cours d'eau, induisent des transferts de matière accrus. Cette notion de connectivité sédimentaire établit le lien entre les sources et les « puits » de particules. Elle est de plus en plus prise en compte explicitement dans les études d'érosion (Gay et al., 2015). La connectivité sédimentaire décrit le potentiel des particules érodées à être transférées des versants jusqu'aux rivières. Ainsi, un versant peut être vulnérable à l'érosion mais si celui-ci n'est pas en lien direct avec le cours d'eau, la connectivité est faible. En revanche, un versant soumis à une érosion faible mais directement connecté à un cours d'eau présente une forte connectivité et donc un risque environnemental plus élevé à certaines périodes hydrologiques de l'année (Rickson, 2014). Ces phénomènes ne sont pas uniquement caractéristiques des plaines agricoles françaises et européennes, mais de l'ensemble des zones agricoles. Les remembrements massifs des années 1960, la suppression des haies, la mise en place de fossés ou encore l'accroissement de la surface des cultures qui laissent les sols nus en hiver sont autant de facteurs défavorables responsables d'une érosion accélérée et d'un transfert accru de sédiments vers les cours d'eau.

- *Cas particulier des plaines agricoles*

Les plaines agricoles ont longtemps été considérées comme peu sensibles à l'érosion si on les compare à des régions aux reliefs plus contrastés. De ce fait, peu d'études portent sur le transfert de particules en contexte de plaine. La dynamique et le transfert de sédiments ont en effet plutôt été étudiés en contexte montagneux (Vanmaercke et al., 2011) ou dans des zones agricoles plus contrastées où polyculture et élevage coexistent (Foster and Walling, 1994; Verstraeten and Poesen, 2001).

Les modifications des pratiques agricoles et d'usages des sols mises en œuvre après la seconde guerre mondiale ont notamment facilité la mise en culture des zones humides initialement peu propices à l'agriculture. Cela a été le cas du bassin de plaine du Louroux, localisé en Loire moyenne, où les sources de sédiments et leur transfert sont étudiés dans cette thèse. Pour rendre possible la culture céréalière et faciliter l'évacuation de l'eau en excès qui stagne dans les zones humides, de vastes réseaux de drainage enterrés ont été installés à partir des années 1950 et de nombreux cours d'eau ont été créés ou recalibrés pour faciliter le transfert de l'eau. L'assainissement des parcelles est réalisé par les drains qui permettent une connexion directe entre la parcelle et le réseau hydrographique (Penven and Muxart, 1995). Ceux-ci induisent une forte connectivité entre sources et puits de particules. Les premières études sur le transfert des particules dans les plaines agricoles montrent que, dans ces zones à la topographie très plane, les drains constituaient une voie préférentielle de transfert des particules. En effet, dans le cadre d'études de traçage sédimentaire, des mesures de propriétés magnétiques, de géochimie élémentaire et/ou de ^{137}Cs ont montré que les particules érodées proviendraient majoritairement de l'érosion de la surface des sols et transiteraient via les drains avant d'être exportées vers le réseau hydrographique (Russell et al., 2001; Walling et al., 2002). Cependant, ces études restent peu nombreuses et il est nécessaire d'approfondir les connaissances sur le transfert des sédiments dans ces plaines agricoles soumises à une agriculture intensive pour préserver les sols et limiter le transfert des particules et de la pollution d'origine agricole qui peut en résulter. Dans ces zones agricoles, trois sources potentielles de particules ont été identifiées : les particules issues de l'érosion de la surface des sols, celles qui proviennent de l'érosion des berges, et la matière qui transite par le réseau de drainage (Collins et al., 2012; Russell et al., 2001; Sogon et al., 1999; Walling, 2005; Walling et al., 2008) (Figure 1.6).

Comme indiqué précédemment, l'érosion des sols affecte près de 17% du territoire européen (GIS SOL) et les taux moyens d'érosion diffuse et en ravine sont compris entre 120 et 360 $\text{t}.\text{km}^{-2}.\text{an}^{-1}$ (Cerdan et al., 2010). Le taux moyen de formation des sols est en revanche estimé entre 30 et 120 $\text{t}.\text{km}^{-2}.\text{an}^{-1}$ et le seuil de tolérance des sols à l'érosion en Europe (qui marque la limite à partir de

laquelle on érode davantage de matière qu'il n'en est produit) est estimé à $140 \text{ t.km}^{-2}.\text{an}^{-1}$ (Verheijen et al., 2009).

L'érosion de la **surface des sols** est décrite dans la plupart des études de traçage comme la source majoritaire de particules dans les zones agricoles européennes (Haddadchi et al., 2013). Plusieurs facteurs détaillés précédemment (paragraphe 1.1) contrôlent l'érosion de la surface des sols qui atteint par exemple des valeurs comprises entre 85 et 95% au Royaume-Uni (Walling, 2005).

L'érosion des **berges** constitue également une source de particules non négligeable et est majoritairement influencée par la dynamique fluviale (Henshaw et al., 2013). Le détachement des particules dépend de la vitesse du courant, de sa turbulence et des variations du niveau d'eau dans le chenal. Généralement, son pouvoir érosif est plus intense lors de crues et elle présente, par conséquent, une forte dynamique saisonnière (Knighton, 1973). Cette source contribue donc de manière variable aux flux de particules transportés par les cours d'eau. En Europe, et plus particulièrement au Royaume-Uni, les berges ne contribuent que peu aux flux de matière, avec des contributions de l'ordre de 15-20% (Walling, 2005). Cette source de particules peut cependant être majoritaire dans d'autres environnements, comme par exemple en Australie, où l'érosion des berges constitue la source majoritaire de particules avec des contributions souvent supérieures à 90% (Caitcheon et al., 2012; Olley et al., 2012).

Les **drains** restent la source de particule la moins étudiée et la plus soumise à discussion (King et al., 2014). En effet, doivent-ils être considérés comme une source ou comme une simple voie de transfert de particules ? Russel et al. (2002) ont par exemple montré que leur contribution au transport des particules pouvait être comprise entre 27 et 55% au sein d'un bassin agricole du Royaume-Uni. D'autres études se sont plutôt focalisées sur la dynamique des particules érodées et ont montré que celles qui transitent par les drains proviendraient de l'horizon de labour, donc de la surface des sols, et migreraient via des macropores et/ou des cracks sédimentaires pour atteindre les drains lorsque les sols sont saturés en eau (Foucher, et al., 2015 ; Jagercikova et al., 2014; Oygarden et al., 1997; Sogon et al., 1999; Walling et al., 2002).

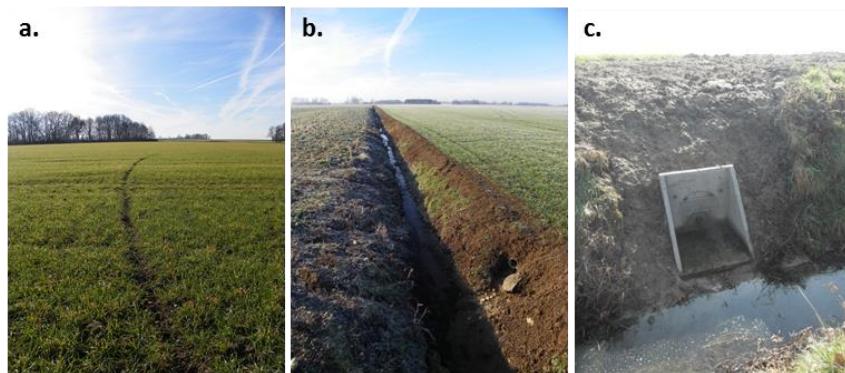


Figure 1.6. Erosion de la surface des sols (a), des berges (b) et transport de particules par le réseau de drainage (c) en contexte de plaine agricoles (Photographies, A. Foucher).

1.4.2. Les zones agricoles subtropicales du sud du Brésil, cas du bassin de Guaporé (Rio Grande do Sul, Brésil)

Le Brésil est devenu en quelques décennies une grande puissance agricole mondiale et l'un des premiers exportateurs mondiaux de soja et de canne à sucre. Cet essor agricole s'est aussi accompagné de conséquences environnementales non négligeables qui se sont traduites par une pression de plus en plus importante sur la ressource en eau et sur les sols sensibles à l'érosion (Merten and Minella, 2013).

L'État méridional du Rio Grande do Sul est l'un des États les plus agricoles du pays. Son économie repose majoritairement sur l'agriculture au travers de la production de soja, de blé, de maïs, de haricots et de riz. En 2012/2013, l'État de Rio Grande do Sul a produit près de 12,5 millions de tonnes de soja (CONAB, 2013) soit plus que la production totale du Paraguay, 6^{ème} exportateur mondial de soja (IBGE; Maciel et al., 2015). Cet essor agricole est le résultat de migrations rurales successives qui commencèrent dès le XIX^{ème} siècle.

- *Le développement agricole du Rio Grande do Sul aux XIX^{ème} et XX^{ème} siècles*

La hausse de la demande mondiale en denrées agricoles, liée à l'augmentation de la population mondiale et à l'élévation du niveau de vie des pays émergents, a engendré une forte croissance du secteur agricole au Brésil. Le climat doux et humide et le relief favorable de l'État de Rio Grande do Sul ont largement contribué à son essor agricole.

L'arrivée dès le début du XIX^{ème} siècle de colons européens (allemands et italiens majoritairement) est à l'origine de la création d'une forte communauté rurale. Le climat, caractérisé par des pluies abondantes réparties sur l'ensemble de l'année et des températures annuelles modérées, présente

des caractéristiques favorables au développement de l'agriculture qui peut être pratiquée en toute saison selon la nature du sol et le relief (Corbonnois et al., 2014).

Jusqu'au début des années 1820, les zones rurales étaient essentiellement dédiées à l'élevage dans les prairies natives du Rio Grande do Sul. Avec l'immigration européenne (allemande à partir de 1824 et italienne à partir de 1875), une agriculture familiale basée sur la polyculture émerge. L'espace agricole est alors partagé entre élevage dans les prairies de l'ouest de l'État et cultures sur les plateaux, dans le reste de l'État.

Au XX^{ème} siècle, en réponse à l'augmentation de la demande mondiale en produits agricoles, les surfaces cultivées se sont agrandies au détriment des pâturages, et des changements de cultures se sont opérés. Les systèmes agricoles sont de plus en plus mécanisés et fondés sur la monoculture. Les éleveurs se sont peu à peu retrouvés en concurrence avec de nouveaux exploitants agricoles et les pressions anthropiques sur le milieu se sont considérablement amplifiées. Depuis la fin du XX^{ème} siècle, la riziculture pluviale a poursuivi son expansion, tout comme celle du soja. Les espaces les moins productifs, tels que les prairies et les terres dégradées, ont peu à peu été transformés en forêts d'eucalyptus utilisées pour la production de pâte à papier.

- *L'érosion des sols, conséquence directe de l'intensification de l'agriculture brésilienne*

L'intensification de l'agriculture au Brésil s'est traduite par une forte détérioration des sols. En effet, l'explosion de la production agricole dans les années 1990 s'est accompagnée d'une augmentation croissante de la pression anthropique sur la ressource sol, et l'érosion est devenue le facteur principal de leur dégradation (Guerra et al., 2014).

Des études réalisées dans l'État voisin du Santa Catarina ont montré qu'un schéma-type pouvait être proposé pour illustrer cette forte dégradation des sols (Figure 1.7). Au premier stade, l'utilisation massive d'engrais et d'intrants permet une augmentation des taux de production agricole, la détérioration des sols et les pertes de matière organique qui en découlent ne sont pas encore visibles. Au second stade, l'utilisation excessive de machines agricoles se traduit par un tassage des sols, les taux de nutriments chutent et la productivité baisse considérablement. Enfin, au troisième stade, l'érosion est inévitable, les rendements s'effondrent et la ressource sol s'en retrouve considérablement détériorée (FAO, 2001).

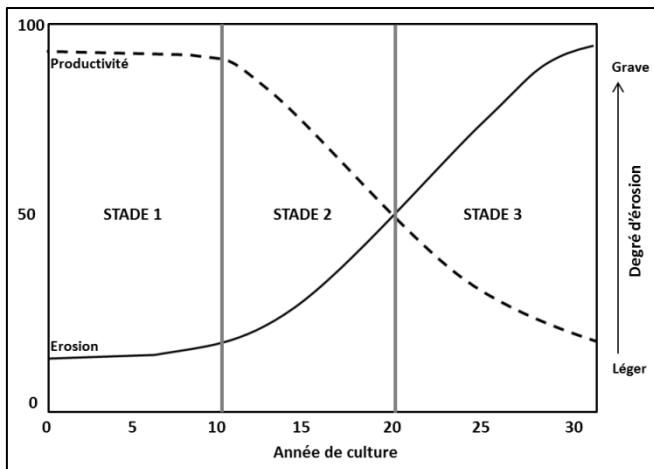


Figure 1.7. Diagramme illustrant le schéma de détérioration des sols brésiliens (d'après FAO, les cultures de couverture au Brésil, 2001).

L'agriculture moderne, développée à partir des années 1970 dans les États du sud du Brésil, s'est accompagnée de l'utilisation massive d'engrais, de pesticides et de machines agricoles. Elle est responsable de l'accélération de l'érosion des sols et de la baisse significative des rendements. En effet, l'utilisation systématique de matériels agricoles lourds favorise la formation d'une couche de sol compacte, elle réduit considérablement l'infiltration de l'eau dans le sol et favorise le ruissellement de surface. Les sols nus pendant l'hiver et soumis à des pluies intenses sont d'autant plus sensibles à l'érosion, l'absence de végétation limite le recyclage des éléments nutritifs des sols, qui sont de plus en plus lixivier et appauvris biologiquement par le manque de rotation des cultures. Pour contrer ces effets, les engrais ont été massivement utilisés. Cette mauvaise gestion des sols est à l'origine de leur dégradation physique, chimique et biologique.

La dégradation des sols est d'autant plus importante qu'à la fin des années 1990, 250 millions d'hectares, soit 28% de la surface du territoire brésilien, étaient dédiés à l'agriculture (Tiecher, 2015) et qu'entre 1996 et 2006, les surfaces agricoles ont augmenté de 80% (Merten and Minella, 2013). Cette augmentation massive des surfaces agricoles est le résultat de divers facteurs socio-économiques (création du Mercosur, libéralisation de la politique commerciale brésilienne...)

Les études sur l'érosion des sols dans cette région du globe restent peu nombreuses. Cependant, les taux d'érosion dépassent souvent les $50 \text{ t.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ et peuvent même atteindre $100 \text{ t.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ (Guerra et al., 2014) faisant du Brésil l'un des « hotspots » mondiaux de l'érosion des sols. Dans l'État de Rio Grande do Sul, un taux d'érosion moyen de $40 \text{ t.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$ a été estimé pour l'ensemble des six millions d'hectares cultivés (Schmidt, 1989).

- *L'agriculture de conservation pour lutter contre l'érosion des sols*

L'agriculture de conservation, promue par la FAO depuis les années 1970, se définit comme l'ensemble des techniques culturales destinées à maintenir et à améliorer le potentiel agronomique des sols, tout en conservant un système productif performant et viable économiquement. Sur le long terme, la rentabilité économique est augmentée et les apports d'intrants (engrais...) réduits. Le Brésil est devenu l'un des leaders de l'agriculture de conservation en Amérique du Sud (Speratti et al., 2015), au travers notamment du développement de l'agriculture par semis direct.

Le semis direct permet, comme son nom l'indique, de semer sans travailler le sol. La structure du sol est améliorée et les coûts de production et surtout, les pertes en sol, sont réduits. Associé à la mise en place de cultures de couverture et à la rotation des cultures, il permet d'améliorer la qualité agronomique des sols. Les sols sont ainsi davantage protégés, moins tassés (l'eau s'y infiltre plus facilement) et enrichis en nutriments, ce qui se traduit par une augmentation des rendements.

Au Brésil, le recours au semis direct a commencé dès le début des années 1970 pour lutter contre la dégradation croissante des sols mais, surtout, pour des raisons économiques. Les États du sud du Brésil ont eu massivement recours à l'agriculture de conservation. Actuellement, au sein du Rio Grande do Sul, 90% des terres cultivées sont soumises à la technique du semis direct (Didoné et al., 2014).

L'agriculture de conservation a surtout été développée au sein des grandes exploitations agricoles et l'a beaucoup moins été dans les zones de production familiales, peu mécanisées et où les sols sont fortement dégradés (Schaller, 2013). De plus, seule une faible proportion des agriculteurs a correctement suivi les principes fondamentaux de l'agriculture de conservation, et la sensibilité des sols à l'érosion ainsi que les transferts de particules vers l'aval se sont accentués (Merten et al., 2015). En effet, la quasi-monoculture du soja, qui néglige la rotation des cultures, combinée à l'application du semis direct dans le sens de la plus forte pente et en maintenant un couvert végétal insuffisant pour protéger les sols, constituent les causes principales de l'échec de la politique de conservation des sols dans certaines régions du Brésil. Ainsi, même si l'agriculture de conservation est amenée à réduire les pertes en sol, celles-ci sont supposées rester importantes même si elles demeurent plus faibles que celles qui sont générées par l'agriculture conventionnelle. Malgré ces pertes de sol avérées, les agriculteurs considèrent que les taux d'érosion des sols sont négligeables depuis la mise en place de pratiques de conservation si on les compare aux pertes générées en appliquant un mode d'agriculture conventionnel (Tiecher, 2015).

Dans ce contexte, il est nécessaire d'identifier clairement les sources des particules érodées pour investiguer l'impact de l'application inappropriée ou intégrale des pratiques de conservation des sols sur la qualité des sols et des eaux s'écoulant en aval.

L'étude de l'impact de l'agriculture de conservation sur les transferts de sédiments dans deux bassins versants de l'État de Rio Grande do Sul a montré que, lors de crues importantes, les mesures de protection des sols mises en place par les agriculteurs ne sont pas suffisantes pour réduire le ruissellement et l'érosion des sols agricoles (Didoné et al., 2014). En effet, des taux d'érosion de 140 et 270 t.km².an⁻¹ ont été estimés à l'exutoire des bassins de Conceição (800 km²) et de Guaporé (2000 km²). Même si ces taux d'érosion restent largement inférieurs à ceux fournis par Guerra et al. (2014) pour l'ensemble du Brésil (5000 à 10000 t.ha⁻¹.an⁻¹) dans les années 1990, avant la mise en place de l'agriculture de conservation, ils restent similaires à ceux estimés en Europe (Cerdan et al., 2010) et soulignent l'importance d'étudier les sources et transferts de particules dans ce contexte.

Dans ces zones agricoles subtropicales, trois sources majeures de particules ont été identifiées : les particules issues de l'érosion de la surface des sols cultivés, celles qui proviennent des berges ou encore des routes non-asphaltées (Figure 1.8).

L'érosion de la **surface des sols cultivés** est décrite dans diverses études de traçage comme la source majoritaire de particules dans les bassins agricoles du Sud du Brésil (Minella et al., 2009; Tiecher et al., 2015). Des contributions comprises entre 55 et 68% ont été calculées au sein de petits bassins agricoles ruraux (Paolo et al., 2007) et une contribution moyenne de 88% a été estimée au sein d'un bassin où cultures intensives et traditionnelles coexistent (Tiecher, 2015).

L'érosion des **berges** constitue une source de particules dont la contribution est fortement variable. Contrairement aux bassins européens, des contributions élevées qui dépendent de la dynamique fluviale peuvent être observées dans les bassins brésiliens (contributions comprises entre 10 et 78% (Tiecher, 2015). Des effondrements de berges en fin de crue et, dans de moindres proportions, le piétinement de celles-ci par les troupeaux qui paissent à proximité des cours d'eau peuvent expliquer ces fortes contributions.

Enfin, Minella et al. (2007) et Tiecher et al. (2014) ont montré qu'en plus des sols agricoles et des berges, les **routes** constituaient également une source de particules non négligeable. Elles jouent en effet un rôle important dans le transfert des sédiments en augmentant la connectivité entre les versants et les rivières. Des contributions comprises entre 43 et 69% ont été estimées lorsque sols cultivés et routes étaient considérés comme sources, et des valeurs variant entre 28 et 38% ont été calculées lorsque les berges étaient également considérées comme une source de particules.

Ces trois sources majoritaires de particules présentent des contributions variables dans l'espace et/ou le temps, et leur contribution respective dépend de la superficie du bassin étudié et de ses caractéristiques hydrologiques, topographiques... Les sols cultivés tendent à constituer la source majoritaire de particules. La contribution des berges, plus faible, dépend significativement des conditions hydrologiques et les processus d'érosion des routes restent les moins contraints. Enfin, les contributions de ces trois sources de particules dépendent également des pratiques agricoles. En effet, il a été montré que de bonnes pratiques de conservation des sols pouvaient réduire les contributions des sols cultivés et des routes (de 62 à 54% et de 36 à 24%, respectivement) au profit de l'érosion des berges (Minella et al., 2008).



Figure 1.8. Sources potentielles de particules : sols cultivés - monoculture intensive du soja (a) et culture traditionnelle du tabac (b), berges (c) et routes non-asphaltées (d) (Photographies a et b, M. Le Gall ; c et d, T. Tiecher).

1.4.3. Les conséquences de l'érosion des sols

Les dégâts occasionnés par l'érosion des sols se traduisent par une baisse de la qualité des sols. Les rendements agricoles diminuent suite à l'arrachement des plants et des semis. De plus, on observe la formation de rigoles et/ou de ravines, une baisse de la biodiversité et de la teneur en matière organique des sols, une perte de la couche superficielle fertile des sols en amont et le recouvrement des plants en aval ou la génération de coulées de boue suite au dépôt des particules érodées sur les routes ou dans les habitations (Bakker et al., 2004; Boardman et al., 2003; Evrard et al., 2007). Les particules transportées sont susceptibles d'atteindre les rivières et d'y engendrer un envasement des cours d'eau et des réservoirs (Dearing et al., 1981; Vörösmarty et al., 2003). On observe également des conséquences négatives pour la qualité de l'habitat des écosystèmes aquatiques et celle des ressources en eau. En effet, un transport massif de particules réduit la pénétration de la lumière (Owens et al., 2005) et comble les habitats de la faune aquatique. De plus, les pesticides, les engrains et de nombreux autres contaminants (métaux lourds, composés organiques persistants, hydrocarbures aromatiques polycycliques...) apportés par les intrants ou par les retombées atmosphériques s'adsorbent aux particules, engendrent une baisse de la qualité physico-chimique

des cours d'eau et sont responsables de la pollution diffuse des eaux de surface agricoles (Ayraut et al., 2012; Gateuille et al., 2014; Horowitz, 2008; Walling, 1988; Withers and Hodgkinson, 2009).

Les modifications des pratiques agricoles ont largement dégradé et continuent à détériorer la ressource en sol et les écosystèmes aquatiques. La Commission Européenne a identifié l'érosion comme l'une des huit menaces majeures pesant sur les sols et elle a estimé indispensable d'adopter une stratégie globale pour protéger les sols en luttant notamment contre l'érosion. Malgré cette prise de conscience, aucune directive n'a été instaurée pour lutter efficacement contre l'érosion, la protection des sols étant considérée comme un problème local et non global par certains états membres de la Commission Européenne (Montanarella, 2015). Cependant, la lutte contre l'érosion engendre des coûts importants. Dans un souci d'économies, il est plus judicieux de limiter le départ des particules de sols en amont plutôt que de gérer les effets provoqués par leur transfert vers l'aval des zones érodées.

2. Le traçage des sédiments

2.1 Approche

Pour déterminer l'origine spatiale et la dynamique temporelle des sédiments transportés de l'amont des bassins versants vers les rivières, de nombreuses techniques de *fingerprinting* ont été développées (Davis and Fox, 2009; Guzmán et al., 2013; Haddadchi et al., 2013; Koiter et al., 2013b; Walling, 2005). Un intérêt croissant pour le *fingerprinting* est observé depuis le début des années 1970. Celui-ci s'est traduit par un nombre croissant de publications portant sur le sujet (Figure 1.9). Cet engouement s'inscrit dans un contexte scientifique où l'on cherche à mieux contraindre la dynamique des particules transportées par les cours d'eau, à quantifier les flux de sédiments et à évaluer leurs impacts en aval (Walling, 2013). La technique du *fingerprinting* est un outil indispensable pour la compréhension de ces phénomènes, la protection des milieux aquatiques et la mise en place d'outils de gestion et d'aménagement du territoire efficaces qui répondent le mieux possible aux problèmes d'envasement et de colmatage des cours d'eau.

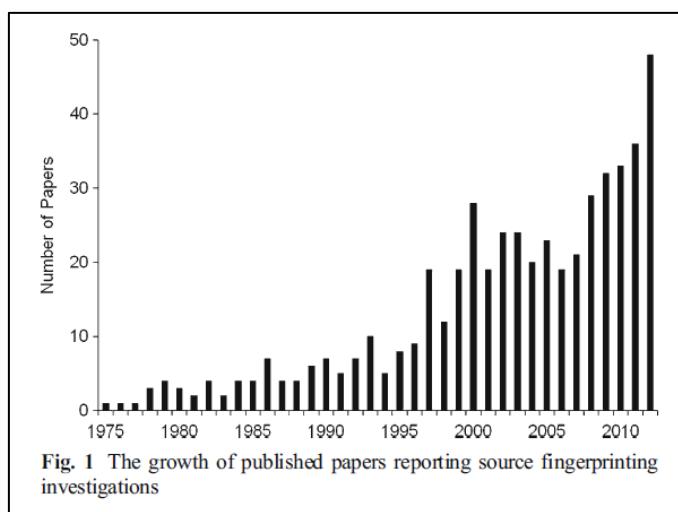


Figure 1.9. Augmentation du nombre de publications utilisant la technique du *fingerprinting* pour le traçage des particules depuis le début des années 1970 d'après Walling et al. (2013).

Le traçage des particules repose sur un constat initial : les dépôts de sédiments constituent un enregistrement des processus qui se sont succédés depuis la mobilisation des particules à l'amont des versants jusqu'à leur sédimentation en aval. La méthode du *fingerprinting* consiste à mesurer un ensemble de propriétés physiques et/ou chimiques à la fois dans des sources potentielles de sédiments en amont du bassin versant et dans les particules transportées par le réseau hydrographique vers l'exutoire du bassin, puis à identifier une ou plusieurs propriétés capables de discriminer ces différentes sources. Enfin, l'utilisation de modèles permet *in fine* d'estimer la contribution relative des différentes sources identifiées au transport de particules (Figure 1.10).

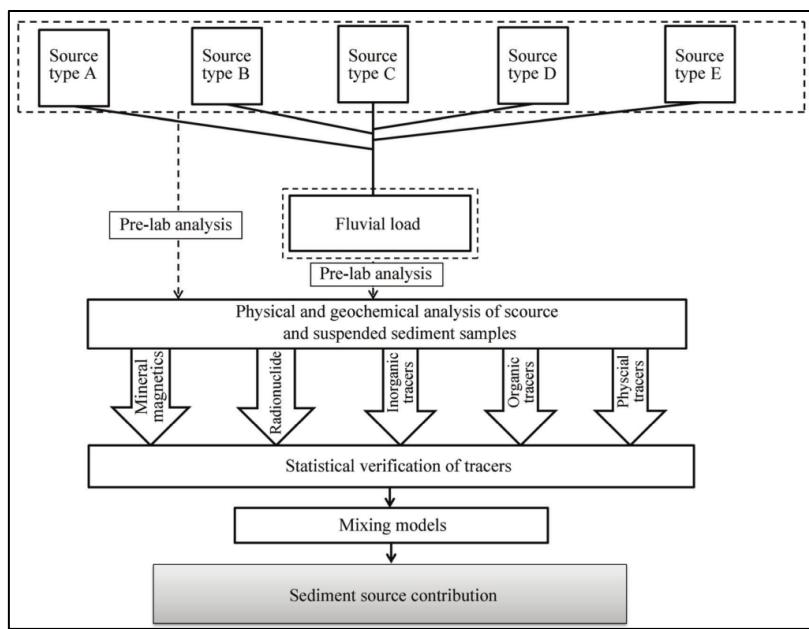


Figure 1.10. Schéma global des étapes requises pour le traçage des sédiments (Haddadchi et al., 2013).

2.2 Sources de particules et sédiments

Les études de *fingerprinting* reposent sur l'échantillonnage de sédiments et de sources potentielles de particules. D'une étude à l'autre, selon la zone d'étude et la problématique, les méthodes et les modes d'échantillonnage varient. Cependant, la plupart des études se focalisent sur la fraction des particules inférieure à 63 µm. En effet, cette fraction fine est susceptible d'être transportée par le réseau hydrographique sur de longues distances et elle joue le rôle de vecteur dans le transport de nombreux contaminants (pesticides, métaux, composés organiques...) (Walling, 2005).

Les sources potentielles des particules érodées et déposées en aval sous forme de sédiments peuvent être définies de diverses manières selon les caractéristiques du bassin étudié. En effet, l'usage des sols (Caitcheon et al., 2012; Collins et al., 1997; Minella et al., 2004; Tiecher et al., 2015), mais aussi la pédologie ou la géologie (Evrard et al., 2011; Laceby and Olley, 2014; Olley and Caitcheon, 2000; Wilkinson et al., 2015), peuvent être utilisés comme autant de moyens de définir les sources potentielles des sédiments (Haddadchi et al., 2013).

Comme pour les sources de particules, la nature des sédiments collectés varie d'une étude à l'autre. Généralement, l'échantillonnage de matières en suspension (MES) est privilégié. Les MES reflètent directement les événements érosifs dont elles sont issues et sont souvent préférées aux sédiments déposés dans le lit des cours d'eau (« *bed sediments* »). Cependant, selon la quantité de matériel nécessaire pour les analyses à réaliser et dans un souci d'optimisation de temps, des sédiments peuvent être collectés par le biais de trappes à sédiments (Evrard et al., 2011; Koiter et al., 2015;

Walling et al., 2008), dans des réservoirs (barrages, étang...) (Foster et al., 2007; Nosrati et al., 2011) ou encore au niveau de plaines d'inondation (Hughes et al., 2009; Lepage et al., 2016).

2.3 Natures et propriétés des sources de particules et des sédiments

La méthode du *fingerprinting* repose sur la comparaison de propriétés physico-chimiques mesurées au sein des sédiments et de leurs sources potentielles. Ces propriétés sont nombreuses et peuvent être regroupées en quatre catégories principales : propriétés géochimiques (concentrations élémentaires, rapports isotopiques...), biogéochimiques (composés organiques, biomarqueurs...), physiques (paramètres minéralogiques, magnétiques...) et nucléaires (éléments radioactifs...) (Koiter et al., 2013b) (Figure 1.11). Pour discriminer n sources, $n-1$ propriétés sont requises (Walling, 2013).

Pour être utilisées en tant que traceurs de l'origine des particules, les propriétés sélectionnées doivent faire face à une condition essentielle : la conservativité du traceur de la source jusqu'au sédiment au fil des étapes successives de dépôt et de remobilisation des particules lors de leur transfert de l'amont vers l'aval du bassin. Parce que la méthode du *fingerprinting* repose sur la comparaison directe entre sources et particules, les propriétés retenues doivent pouvoir être comparées sans qu'aucun biais ne soit introduit.

Cependant, il est fréquent que les particules érodées présentent une distribution granulométrique plus fine que celle des sources (Koiter et al., 2013). Les processus érosifs engendrent une sélectivité granulométrique lors du détachement préférentiel de certaines particules ou encore lors de leur transport. Les particules fines sont plus facilement détachées et elles sont transportées sur de plus longues distances que les particules plus grossières. Pour s'affranchir de ce tri granulométrique, certains auteurs ont proposé de tamiser les échantillons de sources à 63 µm (Collins et al., 1998; Owens and Walling, 2002) et parfois même à 20 µm, 10 µm (Caitcheon et al., 2012; Laceby and Olley, 2014; Wilkinson et al., 2013) ou 2 µm (Hatfield and Maher, 2009). D'autres études ont mis en place des facteurs de correction universels, essentiellement basés sur des mesures de surface spécifique (*Specific Surface Area – SSA*) ou de la teneur en carbone organique (TOC) (Collins et al., 1996; Collins et al., 1998; Horowitz and Elrick, 1987). Cependant, Smith and Blake, (2014) ont montré que l'application de ces facteurs linéaires de manière « universelle » pouvait introduire un biais encore plus important qu'avant correction. Ainsi, seuls des facteurs de correction spécifiques à chaque site d'étude et à chaque traceur peuvent être mis en place et utilisés de manière cohérente (Foucher et al., 2015).

Enfin, en plus du caractère conservatif du traceur, un second point essentiel concerne la représentativité des sources échantillonnées. En effet, l'échantillonnage des sources n'est jamais

exhaustif et doit donc être étudié au préalable pour optimiser au mieux la collecte des échantillons (Haddadchi et al., 2013).

Une fois les sources de particules et les sédiments échantillonés, les propriétés discriminantes déterminées, des modèles statistiques de mélange sont utilisés pour estimer la contribution de chaque source aux sédiments.

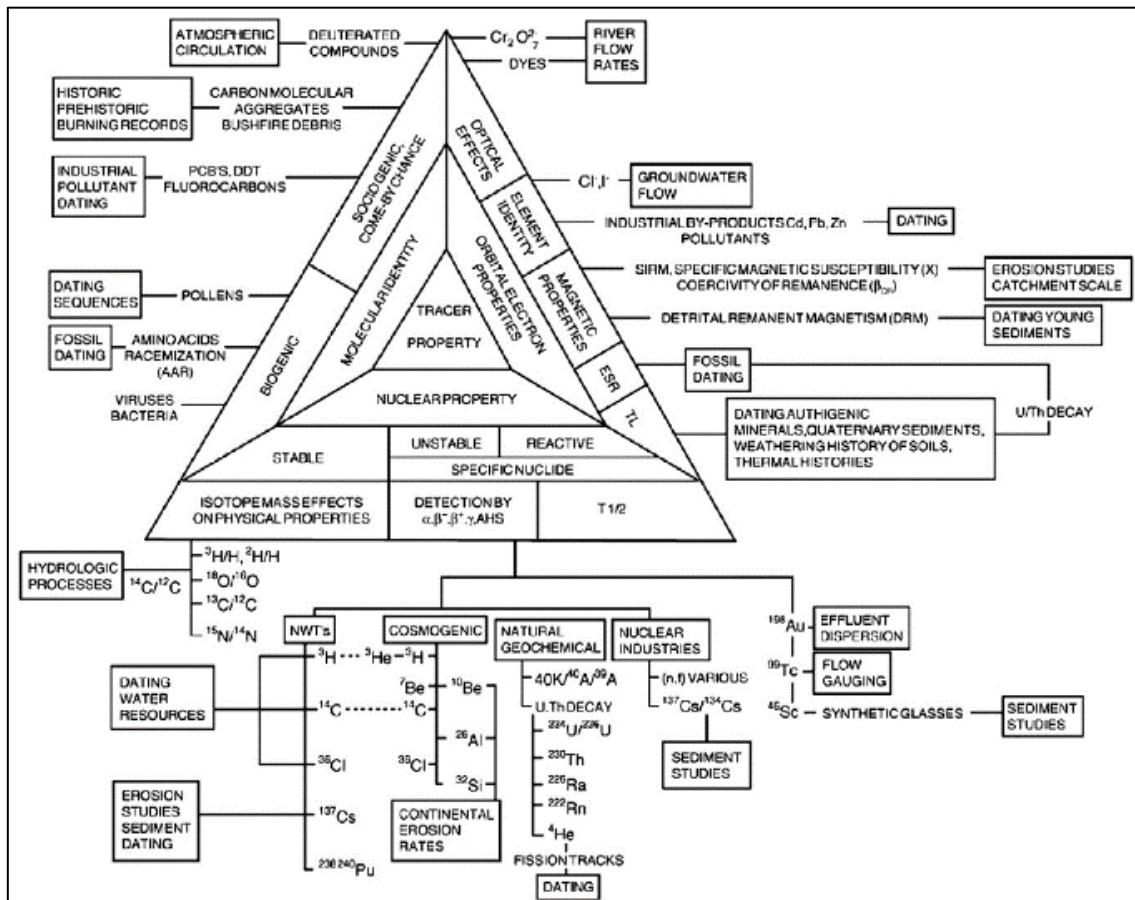


Figure 1.11. Propriétés fondamentales des matériaux terrestres utilisées pour la datation et le traçage des sources de sédiments (Koiter et al. (2013), d'après Foster and Lees (2000)).

2.4 Utilisation de modèles de mélange pour quantifier les sources de sédiments

Des modèles de mélange multivariés sont couramment utilisés dans les études de *fingerprinting* pour estimer la contribution relative des différentes sources identifiées aux sédiments.

Des tests statistiques sont généralement réalisés préalablement à l'utilisation de modèles de mélange pour ne conserver que les paramètres qui discriminent au mieux les sources de sédiments (Collins et al., 1997; Walling, 2005). Les paramètres retenus sont ensuite introduits dans les modèles de mélange pour estimer la contribution de chaque source aux sédiments (Haddadchi et al., 2013).

De nombreux types de modèles de mélange ont été développés (Collins et al., 1996; Collins et al., 2010a; Collins et al., 2010b; Hughes et al., 2009; Laceby and Olley, 2014) avec pour objectif de déterminer la contribution, nommée x , d'une source à un échantillon ou un groupe d'échantillons de sédiment(s) tout en minimisant les erreurs. Deux contraintes essentielles doivent être respectées : la contribution de chaque source doit être comprise entre 0 et 100% et la somme des contributions des différentes sources doit être égale à 100%.

Certains modèles récemment développés utilisent les distributions de probabilités des différentes propriétés discriminées et mesurées dans les sources plutôt que la seule moyenne ou médiane de celles-ci, de manière à mieux représenter la variabilité intra-source (Laceby and Olley, 2014; Olley et al., 2013). Les modèles utilisent ensuite une approche Monte-Carlo (Hughes et al., 2009; Pulley et al., 2016) et/ou des algorithmes génétiques (Collins et al., 2012) pour déterminer la valeur optimale de la contribution de chaque source en minimisant les erreurs de manière à obtenir la meilleure qualité d'ajustement du modèle (*Goodness Of Fit –GOF*). Aussi, malgré la variété des modèles de mélange développés, Haddadchi et al. (2013) ont montré que, pour un jeu de données déterminé, les contributions des différentes sources calculées varient d'un modèle à l'autre dans des proportions acceptables.

Les paragraphes suivants présentent les différents traceurs choisis pour étudier les transferts de sédiments dans les deux bassins agricoles sélectionnés.

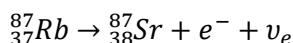
3. L'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) et les radionucléides émetteurs gamma (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) comme traceurs des sources de particules

3.1 L'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), traceur lithologique de l'origine des particules

Le strontium, isotopes et principales caractéristiques

La géochimie des isotopes radiogéniques concerne deux domaines principaux, la géochronologie et le traçage isotopique. La géochronologie consiste à dater des roches et à identifier différents évènements de l'histoire de la Terre, alors que le traçage isotopique s'attache à utiliser les variabilités isotopiques induites au cours du temps par la désintégration des isotopes radiogéniques pour étudier l'origine, les proportions mais aussi la nature et l'intensité des processus d'altération et d'érosion (interactions eau-roches...). Ainsi, le concept de traceur isotopique repose sur la comparaison entre la quantité d'un isotope radiogénique et celle d'un isotope non-radiogénique du même élément, c'est par exemple le cas du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, qui peut être utilisé comme traceur isotopique.

Le strontium est un alcalino-terreux aux propriétés chimiques proches de celles du calcium. Élément trace naturellement présent dans l'environnement, il présente une concentration moyenne de 350 $\mu\text{g.g}^{-1}$ au sein de la croûte continentale supérieure (Taylor and McLennan, 1995). Son rayon ionique (1,13 Å), proche de celui du calcium (0,99 Å), lui confère la capacité de se substituer au calcium dans les minéraux calciques tels que les plagioclases, l'apatite, le gypse, l'anhydrite et les carbonates où il est localisé préférentiellement. Il est également présent en de plus faibles concentrations au sein de minéraux potassiques (Capo et al., 1998). Le strontium possède quatre isotopes stables : ^{88}Sr (82,53%), ^{86}Sr (9,87%), ^{87}Sr (7,04%) et ^{84}Sr (0,56%) et un isotope artificiel radioactif, le ^{90}Sr , émis en très faibles quantités dans l'environnement par des réactions de fission. Le ^{87}Sr , radiogénique, est issu de la désintégration radioactive (β^-) du ^{87}Rb , dont la demi-vie radioactive est de $48,8 \cdot 10^9$ ans :



Les abondances relatives des différents isotopes du strontium sont donc variables. Elles dépendent de l'abondance du ^{87}Sr et donc de celle du ^{87}Rb . Le rubidium est un métal alcalin aux propriétés chimiques proches de celles du potassium. Présent en plus faibles concentrations que le strontium au sein de la couche supérieure de la croûte terrestre (concentration moyenne de $112 \mu\text{g.g}^{-1}$ (Taylor and McLennan, 1995)), il se substitue facilement au potassium dans les minéraux potassiques (muscovites, biotites, feldspaths potassiques...). Il possède deux isotopes : ^{85}Rb (72,17%) et ^{87}Rb

(27,83%). La relation entre ces deux éléments découle directement de la loi fondamentale de décroissance radioactive :

$$^{87}\text{Sr}_t = ^{87}\text{Sr}_{t_0} + ^{87}\text{Rb}_t(e^{\lambda t} - 1)$$

Où ($^{87}\text{Sr}_t$) est la quantité de strontium présent dans la roche à l'instant t , ($^{87}\text{Sr}_0$) la quantité de strontium initialement présent lors de la formation de la roche, $^{87}\text{Rb}_t(e^{\lambda t}-1)$ la quantité de ^{87}Sr produit par désintégration du ^{87}Rb , λ la constante de désintégration de ^{87}Rb , soit $1,42 \cdot 10^{-11}$ ans $^{-1}$ et t est le temps écoulé. En utilisant le ^{86}Sr , élément stable non radiogénique, l'équation ci-dessus devient :

$$\frac{^{87}\text{Sr}_t}{^{86}\text{Sr}_t} = \frac{^{87}\text{Sr}_{t_0}}{^{86}\text{Sr}_{t_0}} + \frac{^{87}\text{Rb}_t}{^{86}\text{Sr}_t}(e^{\lambda t} - 1)$$

Les deux inconnues du système sont le temps t et le rapport ($^{87}\text{Sr}_t/^{86}\text{Sr}_t$). En effet, les processus de différenciation des roches magmatiques impliquent des variations des quantités de Rb et de Sr des produits issus de cette différenciation mais pas du rapport isotopique initial ($^{87}\text{Sr}_{t_0}/^{86}\text{Sr}_0$). Ainsi, deux roches issues du refroidissement du même magma ont le même rapport initial ($^{87}\text{Sr}_{t_0}/^{86}\text{Sr}_0$) mais des rapports ($^{87}\text{Sr}_t/^{86}\text{Sr}$) et ($^{87}\text{Rb}_t/^{86}\text{Sr}_t$) différents qui peuvent être mesurés. En effet, par des mesures de la composition isotopique en strontium dans la roche totale et au sein des minéraux de cette même roche, il est possible de résoudre le système et de déterminer l'âge de la roche. Ainsi, l'abondance en ^{87}Sr dans un matériau géologique donné dépend de son âge et du rapport des teneurs en Rb et en Sr.

Strontium et rubidium sont des éléments dits incompatibles (qui présentent une affinité avec le liquide) (Albarède, 2003). Lors des processus de cristallisation fractionnée et/ou de fusion partielle, ces éléments ont tendance à se concentrer dans le magma (fraction liquide) plutôt qu'au sein des minéraux cristallisés. Le rubidium est cependant plus incompatible que le strontium. Ainsi, strontium et rubidium subissent des fractionnements importants au cours des processus géologiques. Les variations observées de la concentration en strontium et en rubidium induisent une variation du rapport Rb/Sr et donc du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ au sein des roches. Du fait de leurs caractéristiques contrastées, le strontium aura tendance à s'intégrer aux minéraux calciques alors que le rubidium aura tendance à s'intégrer aux minéraux tels que les feldspaths potassiques et les micas.

Le rapport isotopique $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesuré dans une roche dépend du temps écoulé depuis la fermeture du système et du rapport initial Rb/Sr. En effet, plus le ^{87}Rb est abondant, plus il y a formation de ^{87}Sr au cours du temps, ce qui se traduit par une modification du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$.

Le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ s'avère être un bon indicateur de l'âge des roches et de sa composition géochimique. De plus, pour des éléments dont la masse est proche de 80, les effets de fractionnement isotopique ne sont pas détectables et sont donc considérés comme négligeables (Bullen and Kendall, 1998; Graustein, 1989). Ainsi, le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, peut être utilisé comme

traceur isotopique des phénomènes d'altération des roches au sein d'un bassin versant et plus généralement comme traceur dans les études environnementales (Aberg, 1995).

Le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, traceur des processus d'altération

Au sein d'un écosystème donné, le strontium provient de deux sources majoritaires : les dépôts atmosphériques et l'altération des minéraux des roches.

Le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des dépôts atmosphériques est contrôlé par celui des océans. Or le temps de mélange des océans ($<10^3$ ans) est relativement court par rapport à celui du strontium (4.10^6 ans) dans les océans, par conséquent le rapport isotopique $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des océans peut être considéré comme constant pour une période donnée (Wadleigh et al., 1985) et celui des dépôts atmosphériques peut donc être considéré comme peu variable. En revanche, le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des précipitations (pluie, neige) varie selon celui des poussières atmosphériques présentes localement ainsi que d'une zone géographique à une autre (Aberg et al., 1989; Dupré et al., 1993; Pearce et al., 2015; Probst et al., 2000).

Comme expliqué précédemment, les minéraux d'une roche donnée ont des rapports Rb/Sr et $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ variables. Le rapport isotopique du strontium libéré par altération d'une roche reflète donc la contribution des différents minéraux de cette roche mais pas forcément la signature globale de la roche (Aberg et al., 1989; Bullen et al., 1997). En effet, cette signature dépend du degré d'altérabilité des minéraux d'une roche (Blum et al., 1993).

Ainsi, lors de phénomènes d'interaction eau-roche, la signature isotopique de la fraction libérée est différente de la roche et/ou des minéraux altérés, en lien avec leur résistance à l'altération par un fluide. Tous les minéraux ne s'altèrent pas à la même vitesse, comme l'a montré Goldich (1938) au travers de sa séquence d'altération des minéraux (Figure 1.12). Les minéraux formés en dernier lieu par différenciation magmatique sont les plus stables vis-à-vis de l'altération, alors que les minéraux cristallisés rapidement sont les premiers à être altérés.

En termes de signatures isotopiques, le strontium solubilisé issu de l'altération de la roche est moins radiogénique que le strontium de la roche non altérée à l'exception du strontium des argiles résiduelles issues de l'altération des roches, dont la signature $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ est beaucoup plus radiogénique.

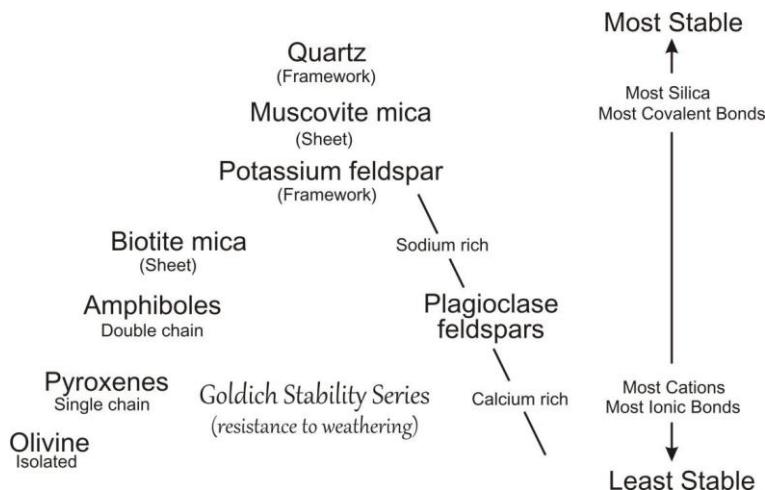


Figure 1.12. Série de Goldich (1938), établissement de l'ordre de résistance des minéraux à l'altération.

Pour pouvoir être utilisés en tant que traceurs, les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des roches altérées doivent présenter une variabilité suffisante au regard de la précision analytique disponible pour pouvoir être distingués et interprétés en termes de sources (Capo et al., 1998). Compte tenu du développement des méthodes analytiques, de très faibles variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ peuvent être interprétées et, ce, quel que soit l'écosystème étudié.

Bon nombre d'études s'intéressent aux signatures isotopiques du strontium dans la fraction dissoute pour apporter des informations sur l'origine et les contributions des différentes sources transportées par la charge dissoute des rivières, en lien avec les processus d'érosion chimique (altération eau-roche). A l'échelle du bassin versant, les variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ dans la fraction dissoute ont été explorées dans divers contextes géologiques, que ce soit dans des bassins composés de roches silicatées, granitiques, carbonatées ou évaporitiques, mixtes ou non (Petelet-Giraud et al., 1998; Semhi et al., 2000) ou encore au sein d'hydrosystèmes anthropisés (Böhlke and Horan, 2000; Douglas et al., 2002; Martin and McCulloch, 1999; Probst et al., 2000).

Les isotopes du strontium ont été largement utilisés pour des études menées sur de grands bassins versants tels que l'Amazone, le Congo ou les fleuves de l'Himalaya pour rendre compte des processus d'érosion chimique (Chabaux et al., 2001; Gaillardet et al., 1997; Karim and Veizer, 2000; Krishnaswami et al., 1992; Négrel et al., 1993; Pande et al., 1994; Viers et al., 2000) mais aussi pour établir des bilans à l'océan (Goldstein and Jacobsen, 1987; Stein et al., 2000; Taylor and Lasaga, 1999). Les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ sont également employés pour étudier les processus d'interaction entre eaux de surface et eaux souterraines (Brenot et al., 2008; Eikenberg et al., 2001; Petelet-Giraud et al., 2007) et pour étudier les circulations souterraines dans des aquifères plus ou moins profonds (Bakari et al., 2013; Gosselin et al., 2004). Enfin, les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ constituent un outil important en paléohydrologie. Comme expliqué précédemment, le rapport isotopique $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des océans peut

être considéré comme constant pour une période donnée. Aussi, le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ d'un carbonate marin donné est supposé être identique à celui de l'eau de mer au moment de sa formation s'il n'a subi aucun processus d'altération (Faure, 1986). Cette propriété permet un enregistrement de la signature des eaux au moment de la précipitation du matériau étudié et est utilisée dans des études de stratigraphie et pour la datation des carbonates (Elderfield, 1986; Jones et al., 1994; Koepnick et al., 1990; McArthur et al., 1994).

En revanche, les rapports isotopiques du strontium ont été peu utilisés pour étudier les processus d'érosion physique et/ou de transport de particules via la charge particulaire (matière en suspension, sédiments...) des cours d'eau et, ce, quelle que soit leur taille (Douglas et al., 1999; Garçon et al., 2014; Grosbois et al., 1999; Roddaz et al., 2014; Viers et al., 2008). A l'échelle du bassin versant, la composition chimique et isotopique des particules transportées par les cours d'eau reflète directement les lithologies drainées mais aussi les impacts anthropiques, notamment ceux qui sont liés à l'utilisation d'engrais dans les bassins versants agricoles (Böhlke and Horan, 2000; Négrel, 1997).

Les rapports isotopiques du strontium s'avèrent être un bon traceur des sources de particules transportées par l'hydrosystème. En effet, les particules transportées sous forme de matières en suspension (MES) et de sédiments de fond sont constituées de minéraux primaires (quartz...) et secondaires (argiles...) mais aussi de matériel biogénique. Leur transport au sein de la colonne d'eau dépend des conditions hydrodynamiques du milieu. Aussi, plusieurs études ont montré qu'un tri des minéraux selon leur taille, leur densité et leur vitesse s'opère lors de leur transport (paragraphe 1.2). Ce tri minéralogique est susceptible d'induire des variations importantes de la signature isotopique en strontium au sein de la fraction particulaire (Bouchez et al. 2011). La plupart des études ayant eu recours à des mesures isotopiques dans la fraction particulaire se basent sur le fait que les signatures de cette fraction reflètent directement celles de leur source/roche mère. Cependant, démontrer l'existence d'une variabilité des signatures isotopiques entre sédiments et sources nécessite la mise en place d'études pour contraindre et caractériser l'importance de cette variabilité et du tri minéralogique et/ou granulométrique qui s'opère lors du transport des particules. Ces études nécessitent un schéma d'échantillonnage très précis et un grand nombre d'analyses, coûteuses en temps d'expérimentateur et en temps machine, des contraintes qui ont peut-être freiné le développement de ces études.

Ci-contre sont répertoriées quelques études présentant les variations des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des concentrations en strontium pour différents types d'environnements et de roches (Table 1.1, Table 1.2).

Table 1.1. Exemples de variations des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des concentrations en strontium dans l'environnement (dissous, particulaire, précipitations, eau de mer, engrais).

Type d'échantillon	Localisation	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	Sr	Référence
Dissous (rivière)	France, bassin de Strengbach (Alsace) (0,8 km ²)	0,7245-0,7254	10-14,4 µg/L	(Aubert et al., 2002)
	États-Unis, Alaska	0,70422-0,74041	0,31-6,50 µmol/L	(Brennan et al., 2014)
	Brésil, bassin de l'Amazone (6,15.10 ⁶ km ²)	0,708776-0,733172	4,3-46,8 µg/L	(Gaillardet et al., 1997)
	Japon, bassin d'Usogawa (119,7 km ²)	0,71072-0,712224	21-108 µg/L	(Hosono et al., 2007)
	Inde/Pakistan, bassin de l'Indus (1,1.10 ⁶ km ²)	0,709764-0,713384	1,748-4,970 µmol/L	(Karim and Veizer, 2000)
	Bassin du Congo (3,8.10 ⁶ km ²)	0,708753-0,735788	0,01-0,66 µmol/L	(Négrel et al., 1993)
Dissous (eaux souterraines)	France, bassin de la Garonne (52 000 km ²)	0,708000-0,713246	51-321 µg/L	(Semhi et al., 2000)
	France, Brévilles (Val d'Oise) (3 km ²)	0,708207-0,709205	1,14-4,25 µmol/L	(Brenot et al., 2008)
	Allemagne, Bitterfeld/Wolfen	0,70924-0,71347	182-1224 µg/L	(Petelet-Giraud et al., 2007)
Particulaire/Sédiments	France, vallée du Rhin, Alsace	0,70866-0,70878	370-418 µg/L	(Eikenberg et al., 2001)
	France, bassin de la Loire (Orléans) (117 800 km ²)	0,711256-0,716691	37-477 mg/kg	(Négrel and Grosbois, 1999)
	Bassin du Congo (3,8.10 ⁶ km ²)	0,722574-0,733976	40-78 mg/kg	(Négrel et al., 1993)
	Japon, bassin de Haïchi	0,7086-0,7315	40-440 mg/kg	(Asahara et al., 2006)
	Brésil, bassin de l'Amazone (6,15.10 ⁶ km ²)	0,713612-0,741082	83-276 mg/kg	(Viers et al., 2008)
	Bangladesh, bassin du Gange	0,755340-0,782400	48-115 mg/kg	(Garçon et al., 2014)
Précipitations	France, bassin de la Garonne (52 000 km ²)	0,71869-0,72054	51-321 µg/L	(Semhi et al., 2000)
	Bassin du Congo (3,8.10 ⁶ km ²)	0,710351-0,713258	0,01-0,043 µmol/L	(Dupré et al., 1993)
	France, Massif Central	0,709198-0,713143	0,017-0,121 µmol/L	(Négrel and Roy, 1998)
Eau de mer moderne		0,7092	7,620	(Goldstein and Jacobsen, 1988) (Capo and DePaolo, 1992) (Holland, 1984)
Engrais	Engrais utilisés en Espagne	0,70335-0,715216	-	(Vitoria et al., 2004)

Table 1.2. Exemples de variations des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des concentrations en strontium dans différents types de roches.

Matériaux géologiques	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	Sr	Référence
Croûte continentale	0,716		(Goldstein and Jacobsen, 1988)
Granodiorite	0,70712	559 mg/kg	
<i>Biotite</i>	0,87045	16,6 mg/kg	
<i>Plagioclase</i>	0,70606	717 mg/kg	
<i>Feldspaths K</i>	0,70724	904 mg/kg	(Blum et al., 1993)
<i>Hornblende</i>	0,70676	41 mg/kg	
<i>Apatite</i>	0,70618	449 mg/kg	
Granite	0,74492	-	
<i>Biotite</i>	0,83087	-	
<i>Plagioclase</i>	0,74022	-	
<i>Feldspaths K</i>	0,75503	-	(de Souza et al., 2010)
Gneiss	0,71081	-	
<i>Biotite</i>	0,72962	-	
<i>Plagioclase</i>	0,71013	-	
<i>Feldspaths K</i>	0,71132	-	
Calcaire marneux (Lutécien)	0,707769	166 mg/kg	(Brenot et al., 2008)
Calcaire argileux (Lutécien)	0,707779	427 mg/kg	
Craie (Crétacé)	0,70747-0,707769	-	
Carbonate	0,708681-0,708739	-	(Sun et al., 2011)
Gypse	0,707919-0,708740	-	
Calcaire	0,70742-0,70804	-	(Christian et al., 2011)
Basaltes océaniques	0,702-0,707	-	(Faure, 1986)
Basalte	0,70367-0,70472	-	(McCulloch et al., 2003)
Basalte	0,70561-0,70608	430-468 mg/kg	(Gilg et al., 2002)
Basalte	0,705735-0,705999	400-536 mg/kg	(Innocent et al., 1997)
Rhyodacite	0,72491	136 mg/kg	(Gilg et al., 2002)

3.2 Les retombées atmosphériques de radionucléides émetteurs gamma (^{137}Cs , ^{210}Pb , ^7Be), traceurs spatio-temporels des particules

Les trois radionucléides retenus pour le traçage des particules au cours de cette thèse sont le césium-137 (^{137}Cs), le beryllium-7 (^7Be) et le plomb-210 (^{210}Pb) (Figure 1.14). Ces radionucléides, émetteurs gamma, se fixent aux aérosols de l'atmosphère et retombent au sol par les précipitations et les retombées sèches (Caillet et al., 2001; He and Walling, 1996; McNeary, 2003). Ils s'adsorbent alors rapidement et presque irréversiblement aux particules du sol (Gil-Garcia et al., 2009; Taylor et al., 2012) et peuvent être utilisés comme traceurs de ces dernières.

3.2.1. Le césium-137 comme traceur spatial de l'origine des particules

Le césium 137 (^{137}Cs) est un radionucléide artificiel émis dans l'environnement par les essais thermonucléaires des années 1950-1960 et par les accidents nucléaires, comme ceux des centrales de Tchernobyl en Ukraine en 1986 et de Fukushima-Dai-ichi au Japon en 2011. Produit de fission de l'uranium, introduit par l'homme en quantités importantes dans l'atmosphère et longtemps détectable dans l'environnement du fait de sa période de demi-vie de 30 ans, le ^{137}Cs est couramment utilisé dans les études environnementales (hydrologiques, écologiques, biologiques...). Du fait de ses apports ponctuels et locaux à l'atmosphère, les retombées de ^{137}Cs au sol par les précipitations sont réparties de manière hétérogène à la surface du globe (Figure 1.13).

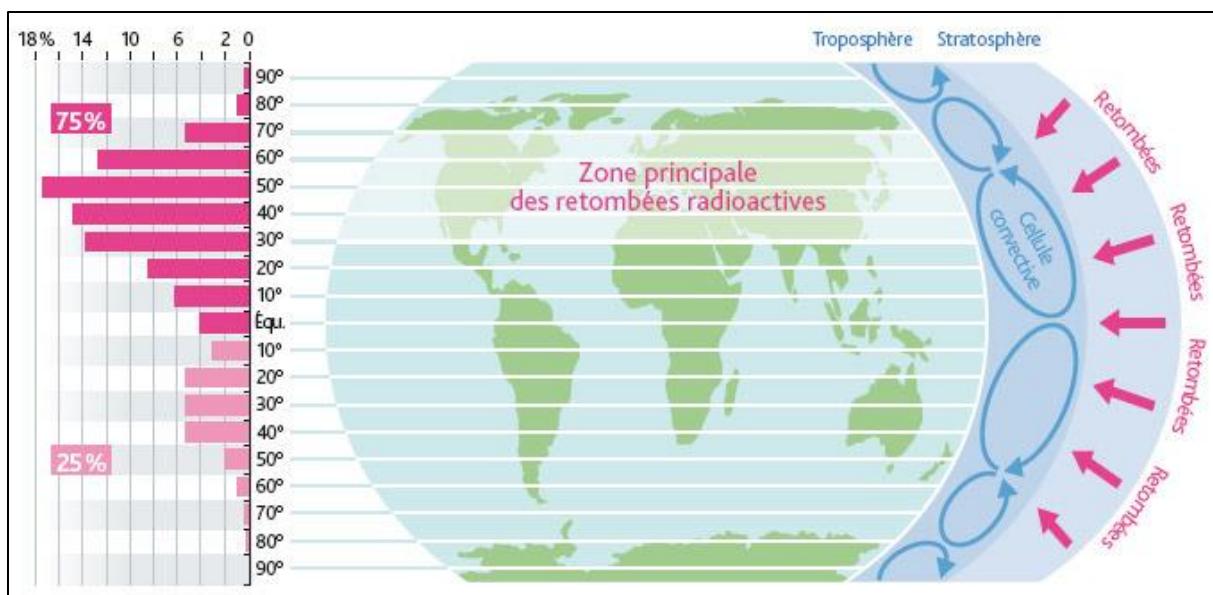


Figure 1.13. Répartition mondiale des retombées radioactives selon la latitude (Source : IRSN).

Une fois retombé au sol, le ^{137}Cs s'adsorbe rapidement et de manière quasiment irréversible aux particules fines de sol (He and Walling, 1996), ce qui lui permet d'être utilisé comme un traceur de l'érosion des sols.

Dans un profil de sol non-perturbé, les retombées en ^{137}Cs sont concentrées dans les premiers cm à la surface du sol (Jagercikova et al., 2014) et diminuent de manière exponentielle avec la profondeur. Un sol labouré présente en revanche une concentration en ^{137}Cs homogénéisée sur l'épaisseur de la couche de sol labourée (Figure 1.15). Le ^{137}Cs s'avère être un bon traceur de la surface des sols. Un appauvrissement en ^{137}Cs à la surface d'un sol cultivé peut aussi refléter sa vulnérabilité à l'érosion dans différents contextes agricoles. En effet, sa redistribution spatiale permet de localiser et d'estimer l'importance des pertes ou des accumulations de sols. Dans ce cas, le déplacement des particules de sol est estimé en comparant l'activité en ^{137}Cs du site étudié à l'activité d'un site « témoin » non érodé (une prairie située sur une crête par exemple). Une activité inférieure à celle du site témoin est interprétée comme reflétant une perte de sol, alors qu'une activité supérieure indique un apport supplémentaire de particules de sol. Des modèles de conversion qui prennent en compte l'apport initial de ^{137}Cs (depuis son introduction par les essais nucléaires) permettent alors d'estimer des taux de redistribution de sol ($\text{t.ha}^{-1}.\text{an}^{-1}$) (Lacoste et al., 2014; Schuller et al., 2007; Walling et al., 2002).

Cependant, l'hétérogénéité spatiale des retombées de ^{137}Cs et sa désintégration au cours du temps constituent deux limites majeures à son utilisation en tant que traceur des particules. Les accidents nucléaires ont par exemple induit une redistribution hétérogène du ^{137}Cs qui dépend des circulations atmosphériques et des précipitations au moment de l'accident. A titre d'exemple, en Europe de l'Ouest, lorsque des mesures en ^{137}Cs sont réalisées pour estimer des taux de redistribution de sol, les apports liés à l'accident de Tchernobyl doivent obligatoirement être pris en compte si les retombées ont été significatives dans la zone d'étude (Golosov et al., 2012). Une autre limite à son utilisation comme traceur est liée à l'absence de retombées atmosphériques chargées en ^{137}Cs depuis les années 1970 suite à la signature de divers traités sur la limitation des essais nucléaires atmosphériques. Ainsi, dans certaines régions du globe, notamment dans l'hémisphère Sud, les activités en ^{137}Cs sont devenues particulièrement faibles et limitent son utilisation en tant que traceur de particules, sauf si un accès à des laboratoires à très bas bruit de fond est possible (Everett et al., 2008; Mabit et al., 2008).

3.2.2. Le beryllium-7 et le plomb-210, traceurs temporels des particules

Le beryllium 7 (^7Be) est un radionucléide cosmogénique produit dans l'atmosphère par interaction entre les rayonnements cosmiques et les atomes d'azote et d'oxygène (Lal et al., 1958; Papastefanou and Ioannidou, 2004). Il présente un temps de demi-vie de 53,3 jours. Sa courte demi-vie lui confère la propriété de pouvoir être utilisé comme un traceur de l'érosion récente des sols. En effet, il est particulièrement utilisé pour étudier le transport des sédiments sur de courtes périodes caractérisées par des pluies plus ou moins intenses (Matisoff et al., 2002; Matisoff et al., 2005).

Le plomb-210 (^{210}Pb) est issu de la chaîne de désintégration de l'uranium-238, naturellement présent dans le sol. Au cours de sa désintégration, du radon-222 gazeux est produit. Celui-ci s'échappe en partie du sol vers l'atmosphère où il se désintègre en une succession de radionucléides aux demi-vies très courtes qui produisent le ^{210}Pb d'une période de 22,3 ans. Ce ^{210}Pb s'ajoute à celui produit dans le sol par désintégration de l'uranium-238. Le plomb 210 de l'atmosphère se retrouve en excès par rapport au plomb-210 du sol, produit en équilibre séculaire avec le matériau parental. La différence entre ces deux plombs est nommée excès de plomb-210 (noté $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$). Dans la suite du manuscrit, seul le plomb-210 en excès sera utilisé pour caractériser les échantillons de sols et de sédiments. Contrairement au ^{137}Cs , les apports de ^{210}Pb sont continus dans le temps même si des variations peuvent être observées sur le long terme (apports par les pluies et par la fonte des neiges notamment ; origine des masses d'air). Le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ est souvent utilisé conjointement avec le ^{137}Cs pour apporter une information complémentaire sur le long terme (100 ans) et il présente l'avantage de pouvoir être quantifié sans difficulté dans l'hémisphère sud où les inventaires en ^{137}Cs sont souvent faibles. De plus, du fait de son origine naturelle et de ses apports continus, son utilisation n'est pas limitée par sa demi-vie, comme cela peut être le cas pour le ^{137}Cs (Mabit et al., 2008).

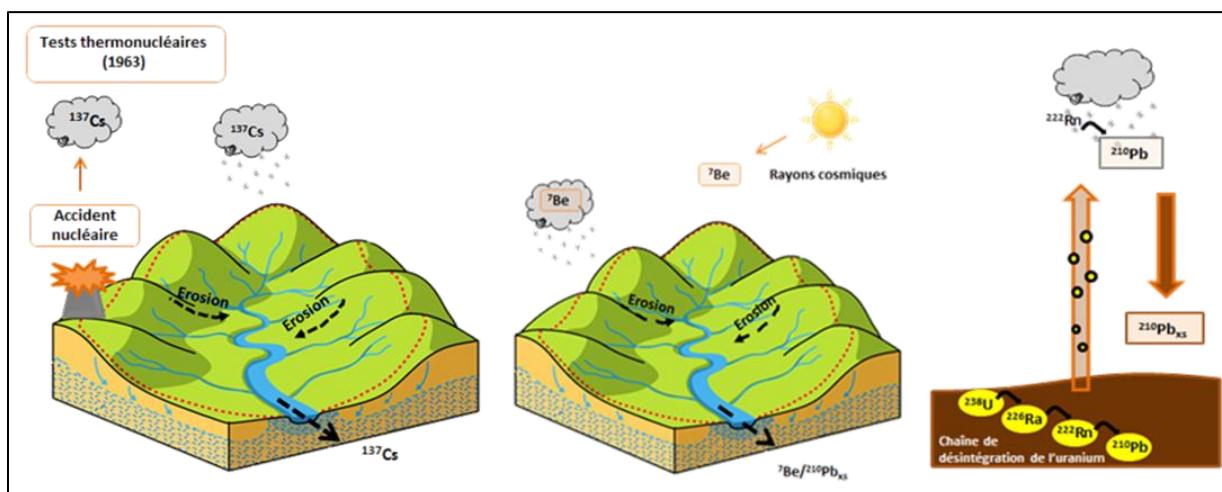


Figure 1.14. Schéma présentant l'origine du ^{137}Cs , du ^7Be et du ^{210}Pb .

Comme pour le ^{137}Cs , les activités en ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ sont maximales dans les premiers centimètres à la surface des sols non perturbés. Le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, grâce à sa demi-vie plus longue, migre plus profondément que le ^7Be dans le sol et présente une répartition similaire à celle du ^{137}Cs (Figure 1.15). Dans les terres remaniées, les stocks de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ sont homogénéisés dans la partie supérieure de la couche de sol affectée par le labour (Porto et al., 2014).

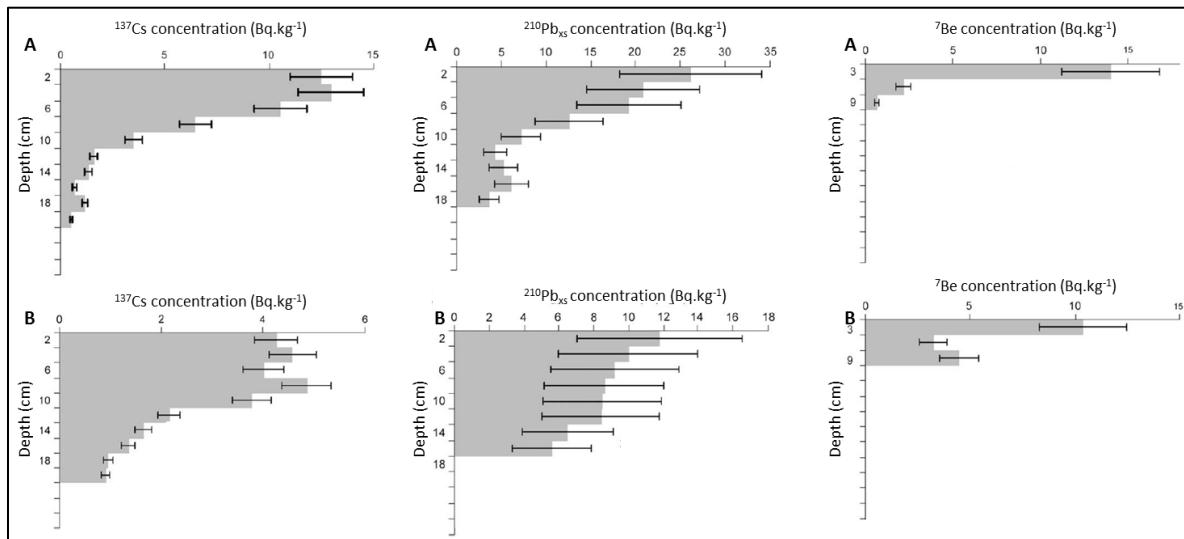


Figure 1.15. Redistribution verticale des activités en ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ et ^7Be dans un sol non perturbé (A) et dans un sol labouré (B) au Maroc (incertitudes, 2σ) (d'après Mabit et al., 2008).

Ces deux radioéléments sont utilisés de manière conjointe (Gartner et al., 2012; Le Cloarec et al., 2007). Comme pour le ^{137}Cs , un appauvrissement peut refléter des pertes de sol (Mabit et al., 2008). Ces deux radionucléides sont aussi couramment utilisés pour contraindre la dynamique temporelle des sédiments et quantifier la proportion de sédiments récemment érodés et remis en suspension ainsi que leur temps de résidence au sein de l’hydrosystème (Bonniwell et al., 1999; Evrard et al., 2010a; Gourdin et al., 2014b; Matisoff et al., 2005). La méthode consiste à comparer les rapports entre le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ du signal entrant (qui traduit les apports récents de ^7Be par les retombées atmosphériques) aux rapports mesurés dans les sédiments collectés dans les cours d'eau. Les particules présentant un rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ proche de celui du signal entrant (donc élevé), correspondent à des particules marquées par le ^7Be de la pluie, et donc érodées récemment. Au contraire, des particules caractérisées par un rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ faible (donc proche de 0) indiquent qu’elles n’ont pas été récemment marquées par le ^7Be de la pluie, et qu’elles sont donc plus anciennes. A partir du rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mesuré dans les sédiments, il est possible d'estimer le temps de résidence des particules au sein de l’hydrosystème et de quantifier les proportions de sédiments récemment érodés et remobilisés (Evrard et al., 2010a; Matisoff et al., 2005). Dans l’idéal, les premiers échantillonnages de sédiments doivent être réalisés après une période sèche, de

manière à ce que le stock de ^7Be pré-existant soit épuisé/totalement désintégré. Cependant, Gourdin et al. (2014) ont montré que cette condition n'est pas limitante et que des crues successives peuvent être étudiées.

Certaines limites à l'utilisation de ces deux radionucléides existent. En supposant que ces radionucléides sont rapidement adsorbés aux particules exposées aux retombées atmosphériques (Taylor et al., 2012), les sédiments collectés et récemment marqués sont considérés comme issus d'une érosion récente. Cependant, plusieurs phénomènes peuvent aboutir à une sous-estimation du rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ et donc à une surestimation de la quantité de sédiments plus anciens.

Tout d'abord, certaines particules marquées en ^7Be au cours de l'année précédente peuvent être stockées dans les cours d'eau à l'abri des retombées atmosphériques et être ensuite remises en suspension alors que le ^7Be a décrû. De plus, une érosion de subsurface (berges, ravines ...) peut engendrer le transfert de sédiments marqués en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ mais pas en ^7Be puisque les particules érodées n'ont pas été directement exposées aux retombées atmosphériques. Les sédiments ainsi transportés jusqu'à l'hydrosystème sont susceptibles de diluer le signal en ^7Be des sédiments récemment érodés et marqués par la pluie (Walling, 2012; Walling, 2013). Il est donc préférable d'utiliser ces deux radionucléides dans un contexte où l'érosion de surface domine ou en complément d'autres traceurs, tel que le ^{137}Cs , considéré comme un bon marqueur de la surface des sols (Evrard et al., 2016).

Il est également important de noter qu'il peut exister une variabilité spatio-temporelle des activités mesurées dans les sédiments collectés au cours d'un évènement pluvieux. En effet, les sédiments récemment érodés sont supposés présenter un rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ proche de celui de la pluie. Cependant, les flux atmosphériques de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ sont fortement corrélés aux précipitations et aux variations saisonnières (Matisoff et al., 2005). Cette variabilité spatio-temporelle est susceptible d'influencer le marquage des sédiments et de leurs sources potentielles. Enfin, le temps de demi-vie court du ^7Be impose une analyse par spectrométrie gamma le plus rapidement possible après l'échantillonnage (Mabit et al., 2008), de l'ordre de quelques semaines, un délai qui peut être court compte-tenu des temps de transport des échantillons depuis le site de collecte jusqu'au laboratoire et de la disponibilité des détecteurs.

→ Du fait de leurs caractéristiques, ces traceurs (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) ont été utilisés dans de nombreuses études environnementales portant sur l'érosion des sols et la redistribution des particules au sein de parcelles agricoles et des bassins versants (Blake et al., 1999; Porto et al., 2014; Sepulveda et al., 2008), sur le transfert de sédiments par le réseau hydrographique (Caitcheon et al.,

2012; Foucher et al., 2015; Olley et al., 1993), sur le stockage et la remobilisation de particules dans l’hydrosystème (Evrard et al., 2010a; Gourdin et al., 2014a; Matisoff et al., 2005). En effet, ce sont des marqueurs efficaces du compartiment du sol ayant produit les particules (surface/subsurface) et des chronomètres du transfert des particules (particules fraîchement érodées/sédiments de fond remis en suspension).

4. Références bibliographiques Chapitre 1

- Aberg, G., 1995. The use of natural strontium isotopes as tracers in environmental studies. *Water, Air and Soil Pollution*, 79: 309-322.
- Aberg, G., Jacks, G., Hamilton, P.J., 1989. Weathering rates and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios: an isotopic approach. *Journal of Hydrology*, 109: 65-78.
- Albarède, F., 2003. *Geochemistry: An Introduction*. Cambridge University Press.
- Al-Durrah, M.M., Bradford, J.M., 1982. The mechanism of raindrop splash on soil surfaces. *Soil Science Society*, 46: 1085-1090.
- Annabi, M., Le Bissonnais, Y., Le Villio-Poitrenaud, M., Houot, S., 2011. Improvement of soil aggregate stability by repeated applications of organic amendments to a cultivated silty loam soil. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 144(1): 382-389.
- Antrop, M., 2005. Why landscapes of the past are important for the future. *Landscape and Urban Planning*, 70(1-2): 21-34.
- Asahara, Y., Ishiguro, H., Tanaka, T., Yamamoto, K., Mimura, K., Minami, M., Yoshida, H., 2006. Application of Sr isotopes to geochemical mapping and provenance analysis: The case of Aichi Prefecture, central Japan. *Applied Geochemistry*, 21(3): 419-436.
- Aubert, D., Probst, A., Stille, P., Viville, D., 2002. Evidence of hydrological control of Sr behavior in stream water (Strengbach catchment, Vosges mountains, France). *Applied Geochemistry*, 17: 285-300.
- Ayrault, S., Roy-Barman, M., Le Cloarec, M.F., Priadi, C.R., Bonte, P., Gopel, C., 2012. Lead contamination of the Seine River, France: geochemical implications of a historical perspective. *Chemosphere*, 87(8): 902-10.
- Bakari, S.S., Aagaard, P., Vogt, R.D., Ruden, F., Johansen, I., Vuai, S.A., 2013. Strontium isotopes as tracers for quantifying mixing of groundwater in the alluvial plain of a coastal watershed, south-eastern Tanzania. *Journal of Geochemical Exploration*, 130: 1-14.
- Bakker, M.M., Govers, G., Rounsevell, M.D.A., 2004. The crop productivity–erosion relationship: an analysis based on experimental work. *Catena*, 57(1): 55-76.
- Blake, W.H., Wallbrink, P.J., He, Q., 1999. Fallout beryllium-7 as a tracer in soil erosion investigations. *Applied Radiation and Isotopes*, 51: 599-605.
- Blum, J.D., Erel, Y., Brown, K., 1993. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of Sierra Nevada stream waters: Implications for relative mineral weathering rates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58: 5019-5025.
- Boardman, J., Poesen, J., Evans, R., 2003. Socio-economic factors in soil erosion and conservation. *Environmental Science & Policy*, 6(1): 1-6.
- Böhlke, J.K., Horan, M., 2000. Strontium isotope geochemistry of groundwaters and streams affected by agriculture, Locust Grove, MD. *Applied Geochemistry*, 15: 599-609.
- Bonniwell, E., Matisoff, G., Whiting, P.J., 1999. Determining the times and distances of particle transit in a mountain stream using fallout radionuclides. *Geomorphology*, 27: 75-92.
- Bouchez, J., Gaillardet, J., France-Lanord, C., Maurice, L., Dutra-Maia, P., 2011. Grain size control of river suspended sediment geochemistry: Clues from Amazon River depth profiles. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 12(3).
- Brennan, S.R., Fernandez, D.P., Mackey, G., Cerling, T.E., Bataille, C.P., Bowen, G.J., Wooller, M.J., 2014. Strontium isotope variation and carbonate versus silicate weathering in rivers from across Alaska: Implications for provenance studies. *Chemical Geology*, 389: 167-181.
- Brenot, A., Baran, N., Petelet-Giraud, E., Négré, P., 2008. Interaction between different water bodies in a small catchment in the Paris basin (Brévilles, France): Tracing of multiple Sr sources through Sr isotopes coupled with Mg/Sr and Ca/Sr ratios. *Applied Geochemistry*, 23(1): 58-75.
- Bullen, T.D., Blum, A., Harden, J., Schulz, M., 1997. Chemical weathering of a soil chronosequence on granitoid alluvium: II. Mineralogic and isotopic constraints on the behavior of strontium. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 61: 291-306.
- Bullen, T.D., Kendall, C., 1998. Tracing weathering reactions and water flowpaths: a multi-isotope approach. In *Isotope Tracers in Catchment Hydrology* (1998), C. Kendall and J.J. McDonnell (Eds.) Elsevier Science B.V., Amsterdam, pp. 611-646.
- Cailliet, S., Arpagaus, P., Monna, F., Dominik, J., 2001. Factors controlling ^7Be and ^{210}Pb atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53: 241-256.
- Caitcheon, G.G., Olley, J.M., Pantus, F., Hancock, G., Leslie, C., 2012. The dominant erosion processes supplying fine sediment to three major rivers in tropical Australia, the Daly (NT), Mitchell (Qld) and Flinders (Qld) Rivers. *Geomorphology*, 151-152: 188-195.
- Capo, R., DePaolo, D.J., 1992. Homogeneity of Sr isotopes in the oceans. *EOS, Transaction, American Geophysical Union*, 72: 272.
- Capo, R., Stewart, B., Chadwick, O., 1998. Strontium isotopes as tracers of ecosystem processes: theory and methods. *Geoderma*, 82: 197-225.
- Cerdan, O. et al., 2010. Rates and spatial variations of soil erosion in Europe: A study based on erosion plot data. *Geomorphology*, 122(1-2): 167-177.

- Chabaux, F., Granet, M., Pelt, E., France-Lanord, C., Galy, V., 2006. ^{238}U - ^{234}U - ^{230}Th disequilibria and timescale of sedimentary transfers in rivers: Clues from the Gangetic plain rivers. *Journal of Geochemical Exploration*, 88(1-3): 373-375.
- Chabaux, F., Riotte, J., Clauer, N., France-Lanord, C., 2001. Isotopic tracing of the dissolved U fluxes of Himalayan rivers: Implications for present and past U budgets of the Ganges-Brahmaputra system. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65(19): 3201-3217.
- Christian, L.N., Banner, J.L., Mack, L.E., 2011. Sr isotopes as tracers of anthropogenic influences on stream water in the Austin, Texas, area. *Chemical Geology*, 282(3-4): 84-97.
- Collins, A.J., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1997. Source type ascription for fluvial suspended sediment based on a quantitative composite fingerprinting technique. *Catena*, 29: 1-27.
- Collins, A.L., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1996. Composite fingerprinting of the spatial source of fluvial suspended sediment : a case study of the Exe and Severn river basins, United Kingdom. *Géomorphologie : relief, processus, environnement*, 2(2): 41-53.
- Collins, A.L., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1998. Use of composite fingerprints to determine the provenance of the contemporary suspended sediment load transported by rivers. *Earth Surface Processes and Landforms*, 23(1): 31-52.
- Collins, A.L., Walling, D.E., Webb, L., King, P., 2010a. Apportioning catchment scale sediment sources using a modified composite fingerprinting technique incorporating property weightings and prior information. *Geoderma*, 155(3-4): 249-261.
- Collins, A.L., Zhang, Y., McChesney, D., Walling, D.E., Haley, S.M., Smith, P., 2012. Sediment source tracing in a lowland agricultural catchment in southern England using a modified procedure combining statistical analysis and numerical modelling. *Science of the Total Environment*, 414: 301-17.
- Collins, A.L., Zhang, Y., Walling, D.E., Grenfell, S.E., Smith, P., 2010b. Tracing sediment loss from eroding farm tracks using a geochemical fingerprinting procedure combining local and genetic algorithm optimisation. *Science of the Total Environment*, 408(22): 5461-71.
- Commission of the European Communities, 2006. Communication from the Commission to the Council, the European Parliament, the European Economic and Social Committee and the Committee of the regions - Impact assessment of the thematic strategy on soil protection. .
- CONAB, 2013. Brazilian Crop Assessment - GRAIN - Crop 2013/2014 - First survey.
- Corbonnois, J., Laurent, F., Andreu-Boussut, V., Messner, F., Roberto, V., Medeiros Vieira, R., Sogue, M., 2014. L'intensification des pratiques agricoles et la mobilisation des ressources naturelles dans La Pampa du Sud du Brésil. Des systèmes alimentaires articulés et transversaux pour une sécurité alimentaire, 14(1).
- Davis, C.M., Fox, J.F., 2009. Sediment fingerprinting: review of the method and future improvements for allocating nonpoint source pollution. *Journal of Environmental Engineering*, 135: 490-504.
- de Souza, G.F., Reynolds, B.C., Kiczka, M., Bourdon, B., 2010. Evidence for mass-dependent isotopic fractionation of strontium in a glaciated granitic watershed. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 74(9): 2596-2614.
- Dearing, J.A., Elner, J.K., Happpie-Wood, C.M., 1981. Recent sediment flux and erosional processes in a Welsh upland lake catchment based on magnetic susceptibility measurements. *Quaternary Research*, 16: 356-372.
- Dellinger, M., Gaillardet, J., Bouchez, J., Calmels, D., Galy, V., Hilton, R.G., Louvat, P., France-Lanord, C., 2014. Lithium isotopes in large rivers reveal the cannibalistic nature of modern continental weathering and erosion. *Earth and Planetary Science Letters*, 401: 359-372.
- DePaolo, D.J., Lee, V.E., Christensen, J.N., Maher, K., 2012. Uranium comminution ages: Sediment transport and deposition time scales. *Comptes Rendus Geoscience*, 344(11-12): 678-687.
- Desriers, M., 2007. L'agriculture français depuis cinquante ans : des petites exploitations familiales aux droits à paiement unique. *L'agriculture, nouveaux défis* - édition 2007.
- Didoné, E.J., Minella, J.P.G., Reichert, J.M., Merten, G.H., Dalbianco, L., de Barrros, C.A.P., Ramon, R., 2014. Impact of no-tillage agricultural systems on sediment yield in two large catchments in Southern Brazil. *Journal of Soils and Sediments*, 14(7): 1287-1297.
- Douglas, G., Hart, B., Beckett, R., Gray, C.M., 1999. Geochemistry of suspended particulate matter (SPM) in the Murray-Darling river system: a conceptual isotopic/geochemical model for the fractionation of major, trace and rare earth elements. *Aquatic Geochemistry*, 5: 167-194.
- Douglas, T., Chamberlain, C., Blum, J., 2002. Land use and geologic controls on the major elemental and isotopic ($\delta^{15}\text{N}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) geochemistry of the Connecticut River watershed , USA. *Chemical Geology*, 189(1): 19-34.
- Dupré, B., Negrel, P., Seimbille, F., Allègre, C.J., 1993. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios variation during a rain event. *Atmospheric Environment*, 28(4): 617-620.
- Eikenberg, J., Tricca, A., Vezzu, G., Stille, P., Bajo, S., Ruethi, M., 2001. $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ / ^{224}Ra and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ isotope relationships for determining interactions between ground and river water in the upper Rhine valley. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54: 133-162.
- Elderfield, H., 1986. Strontium isotope stratigraphy. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 57: 71-90.
- Everett, S.E., Tims, S.G., Hancock, G.J., Bartley, R., Fifield, L.K., 2008. Comparison of Pu and ^{137}Cs as tracers of soil and sediment transport in a terrestrial environment. *J Environ Radioact*, 99(2): 383-93.
- Evrard, O., Bielders, C.L., Vandaele, K., van Wesemael, B., 2007. Spatial and temporal variation of muddy floods in central Belgium, off-site impacts and potential control measures. *Catena*, 70(3): 443-454.

- Evrard, O., Laceby, J.P., Huon, S., Lefèvre, I., Sengtaheuanghong, O., Ribolzi, O., 2016. Combining multiple fallout radionuclides (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) to investigate temporal sediment source dynamics in tropical, ephemeral riverine systems. *Journal of Soils and Sediments*, 16(3): 1130-1144.
- Evrard, O., Navratil, O., Ayrault, S., Ahmadi, M., Némery, J., Legout, C., Lefèvre, I., Poirel, A., Bonté, P., Esteves, M., 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surface Processes and Landforms*, 36(8): 1072-1089.
- Evrard, O., Némery, J., Gratiot, N., Duvert, C., Ayrault, S., Lefèvre, I., Poulenard, J., Prat, C., Bonté, P., Esteves, M., 2010a. Sediment dynamics during the rainy season in tropical highland catchments of central Mexico using fallout radionuclides. *Geomorphology*, 124(1-2): 42-54.
- Evrard, O., Nord, G., Cerdan, O., Souchère, V., Le Bissonnais, Y., Bonté, P., 2010b. Modelling the impact of land use change and rainfall seasonality on sediment export from an agricultural catchment of the northwestern European loess belt. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 138(1-2): 83-94.
- Evrard, O., Vandaele, K., Bielders, C., Wesemael, B.v., 2008. Seasonal evolution of runoff generation on agricultural land in the Belgian loess belt and implications for muddy flood triggering. *Earth Surface Processes and Landforms*, 33(8): 1285-1301.
- FAO, 2001. Les cultures de couverture au Brésil, <http://www.fao.org/ag/fr/magazine/0105sp.htm> (Dernier accès Avril 2016).
- Faure, G., 1986. Principles of Isotopic Geology. Wiley, New York.
- Flamant, J.-C., 2010. Une brève histoire des transformations de l'agriculture au 20ème siècle. Mission agrobiosciences.
- Forstner, U., Wittmann, G., 1981. Metal pollution in the aquatic environment. 2nd revised edition. Springer-Verlag; 486pp.
- Foster, I.D.L., Boardman, J., Keay-Bright, J., 2007. Sediment tracing and environmental history for two small catchments, Karoo Uplands, South Africa. *Geomorphology*, 90(1-2): 126-143.
- Foster, I.D.L., Walling, D.E., 1994. Using reservoir deposits to reconstruct changing sediment yields and sources in the catchment of the Old Mill Reservoir, South Devon, UK, over the past 50 years. *Hydrological Sciences Journal*, 39(4): 347-368.
- Foucher, A., Laceby, P.J., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Le Gall, M., Lefèvre, I., Cerdan, O., Rajkumar, V., Desmet, M., 2015. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: The application of a thorium-based particle size correction in sediment fingerprinting. *Geomorphology*, 250: 271-281.
- Fournier, F., 1972. Soil conservation. *Nature and Environment Series*, Council of Europe.
- Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., Negrel, P., 1997. Chemical and physical denudation in the Amazon River Basin. *Chemical Geology*, 142: 141-173.
- Garçon, M., Chauvel, C., France-Lanord, C., Limonta, M., Garzanti, E., 2014. Which minerals control the Nd–Hf–Sr–Pb isotopic compositions of river sediments? *Chemical Geology*, 364: 42-55.
- Gartner, J.D., Renshaw, C.E., Dade, W.B., Magilligan, F.J., 2012. Time and depth scales of fine sediment delivery into gravel stream beds: Constraints from fallout radionuclides on fine sediment residence time and delivery. *Geomorphology*, 151-152: 39-49.
- Gateuille, D., Evrard, O., Lefevre, I., Moreau-Guigon, E., Alliot, F., Chevreuil, M., Mouchel, J.M., 2014. Mass balance and decontamination times of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in rural nested catchments of an early industrialized region (Seine River basin, France). *Science of the Total Environment*, 470-471: 608-17.
- Gay, A., Cerdan, O., Delmas, M., Desmet, M., 2014. Variability of suspended sediment yields within the Loire river basin (France). *Journal of Hydrology*, 519: 1225-1237.
- Gay, A., Cerdan, O., Mardhel, V., Desmet, M., 2015. Application of an index of sediment connectivity in a lowland area. *Journal of Soils and Sediments*, 16(1): 280-293.
- Gil-Garcia, C., Tagami, K., Uchida, S., Rigol, A., Vidal, M., 2009. New best estimates for radionuclide solid-liquid distribution coefficients in soils. Part 3: miscellany of radionuclides (Cd, Co, Ni, Zn, I, Se, Sb, Pu, Am, and others). *J Environ Radioact*, 100(9): 704-15.
- Gilg, H.A., Morteani, G., Kostitsyn, Y., Preinfalk, C., Gatter, I., Strieder, A.J., 2002. Genesis of amethyst geodes in basaltic rocks of the Serra Geral Formation (Ametista do Sul, Rio Grande do Sul, Brazil): a fluid inclusion, REE, oxygen, carbon, and Sr isotope study on basalt, quartz, and calcite. *Mineralium Deposita*, 38(8): 1009-1025.
- GIS SOL, <https://www.gissol.fr/thematiques/erosion-des-sols-48> (Dernier accès Juin 2016).
- GIS SOL, 2000. Carte de l'aléa érosion des sols en France, <https://www.gissol.fr/donnees/donnees-dalea-derosion-2844> (Dernier accès Mai 2016).
- GLASOD (Global Assessment of Human-induced Soil Degradation, 2016. <http://www.isric.org/projects/global-assessment-human-induced-soil-degradation-glasod> (Dernier accès Mai 2016).
- Goddéris, Y., Donnadieu, Y., Le Hir, G., Lefebvre, V., Nardin, E., 2014. The role of palaeogeography in the Phanerozoic history of atmospheric CO₂ and climate. *Earth-Science Reviews*, 128: 122-138.
- Goldstein, S.J., Jacobsen, S.B., 1987. The Nd and Sr isotopic systematics of river-water dissolved material: implications for the sources of Nd and Sr in seawater. *Chemical Geology*, 66(3-4): 245-272.
- Goldstein, S.J., Jacobsen, S.B., 1988. Nd and Sr isotopic systematics of river water suspended material: implications for crustal evolution. *Earth and Planetary Science Letters*, 87: 249-265.
- Golosov, V.N., Belyaev, V.R., Markelov, M.V., 2012. Application of Chernobyl-derived ^{137}Cs fallout for sediment redistribution studies: lessons from European Russia. *Hydrological Processes*, 27(6): 781-794.

- Gosselin, D.C., Edwin Harvey, F., Frost, C., Stotler, R., Allen Macfarlane, P., 2004. Strontium isotope geochemistry of groundwater in the central part of the Dakota (Great Plains) aquifer, USA. *Applied Geochemistry*, 19(3): 359-377.
- Gourdin, E., Evrard, O., Huon, S., Lefèvre, I., Ribolzi, O., Reyss, J.-L., Sengtaheuanghong, O., Ayrault, S., 2014a. Suspended sediment dynamics in a Southeast Asian mountainous catchment: Combining river monitoring and fallout radionuclide tracers. *Journal of Hydrology*, 519: 1811-1823.
- Gourdin, E., Evrard, O., Huon, S., Reyss, J.L., Ribolzi, O., Bariac, T., Sengtaheuanghong, O., Ayrault, S., 2014b. Spatial and temporal variability of ^{7}Be and ^{210}Pb wet deposition during four successive monsoon storms in a catchment of northern Laos. *Journal of Environmental Radioactivity*, 136: 195-205.
- Govers, G., 1995. Selectivity and transport capacity of thin flows in relation to rill erosion. *Catena*, 12(1): 35-49.
- Graustein, W.C., 1989. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measure the sources and flow of strontium in terrestrial environment. In: Springer, N.-Y. (Ed.), *Stable Isotopes in Ecological Research*, pp. 491-512.
- Grosbois, C., Negrel, P., Fouillac, C., Grimaud, D., 1999. Dissolved load of the Loire River: chemical and isotopic characterization. *Chemical Geology*, 170(1-4): 179-201.
- Guerra, A.J.T., Fullen, M.A., Jorge, M.C.O., Alexandre, S.T., 2014. Soil erosion and conservation in Brazil. *Anuário do Instituto de Geociências - UFRJ*, 37(1): 81-91.
- Guzmán, G., Quinton, J.N., Nearing, M.A., Mabit, L., Gómez, J.A., 2013. Sediment tracers in water erosion studies: current approaches and challenges. *Journal of Soils and Sediments*, 13(4): 816-833.
- Haddadchi, A., Ryder, D.S., Evrard, O., Olley, J., 2013. Sediment fingerprinting in fluvial systems: review of tracers, sediment sources and mixing models. *International Journal of Sediment Research*, 28(4): 560-578.
- Hatfield, R.G., Maher, B.A., 2009. Fingerprinting upland sediment sources: particle size-specific magnetic linkages between soils, lake sediments and suspended sediments. *Earth Surface Processes and Landforms*, 34(10): 1359-1373.
- He, Q., Walling, D.E., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediment. *Journal of Environmental Radioactivity*, 30(2): 117-137.
- Henshaw, A.J., Thorne, C.R., Clifford, N.J., 2013. Identifying causes and controls of river bank erosion in a British upland catchment. *Catena*, 100: 107-119.
- Hessel, R., Daroussin, J., Verzandvoort, S., Walvoort, D., 2014. Evaluation of two different soil databases to assess soil erosion sensitivity with MESALES for three areas in Europe and Morocco. *Catena*, 118: 234-247.
- Hjulström, F., 1935. Studies of the morphological activity of rivers as illustrated by the River Fyris. *Bulletin of the Geological Institute of Upsala, Sweden*, v. XXV.
- Holland, H.D., 1984. The chemical evolution of the atmospheres and ocean. Princeton University, Princeton, NJ, 582p.
- Horowitz, A.J., 2008. Determining annual suspended sediment and sediment-associated trace element and nutrient fluxes. *Science of the Total Environment*, 400(1-3): 315-43.
- Horowitz, A.J., Elrick, K.A., 1987. The relation of stream sediment surface area, grain size and composition to trace element chemistry. *Applied Geochemistry*, 2: 437-451.
- Horton, R.E., 1945. Erosional development of streams and their drainage basins: a hydrological approach to quantitative morphology. *Bulletin of the Geological Society of America*, 56: 275-370.
- Hosono, T., Nakano, T., Igeta, A., Tayasu, I., Tanaka, T., Yachi, S., 2007. Impact of fertilizer on a small watershed of Lake Biwa: use of sulfur and strontium isotopes in environmental diagnosis. *Science of the Total Environment*, 384(1-3): 342-54.
- Hughes, A.O., Olley, J.M., Croke, J.C., McKergow, L.A., 2009. Sediment source changes over the last 250 years in a dry-tropical catchment, central Queensland, Australia. *Geomorphology*, 104(3-4): 262-275.
- IBGE, Brazilian Institute of Geography and Statistic (Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística). Quantidade produzida (t) de soja. segundo as unidades da Federação. Mesorregiões. Microrregiões e os Municípios produtores. Brasil 2005 a 2011 (2013)
- Innocent, C., Michard, A., Malengreau, N., Loubet, M., Noack, Y., Benedetti, M., Hamelin, B., 1997. Sr isotopic evidence for ion-exchange buffering in tropical laterites from the Paraná, Brazil. *Chemical Geology*, 136(219-232).
- Issa, O.M., Bissonnais, Y.L., Planchon, O., Favis-Mortlock, D., Silvera, N., Wainwright, J., 2006. Soil detachment and transport on field- and laboratory-scale interrill areas: erosion processes and the size-selectivity of eroded sediment. *Earth Surface Processes and Landforms*, 31(8): 929-939.
- Jagercikova, M., Cornu, S., Le Bas, C., Evrard, O., 2014. Vertical distributions of ^{137}Cs in soils: a meta-analysis. *Journal of Soils and Sediments*, 15(1): 81-95.
- Jones, C., Jenkyns, H., Coe, A., Hesselbo, S.P., 1994. Strontium isotopic variations in Jurassic and Cretaceous seawater. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58(14): 3061-3074.
- Karim, A., Veizer, J., 2000. Weathering processes in the Indus River Basin: implications from riverine carbon, sulfur, oxygen, and strontium isotopes. *Chemical Geology*, 170: 153-177.
- King, K.W., Fausey, N.R., Williams, M.R., 2014. Effect of subsurface drainage on streamflow in an agricultural headwater watershed. *Journal of Hydrology*, 519: 438-445.
- Kirby, M.J., 1969. Erosion by water on hillslopes. In Chorley, R.J. (ed.). *Water, earth and man*. Methuen, London: 215-27.
- Knighton, A.D., 1973. Riverbank erosion in relation to streamflow conditions, River Bollin-Dean, Cheshire. *East Midland Geographer*, 5: 416-426.
- Koepnick, R.B., Denison, R.E., Burke, W.H., Hetherington, E.A., Dahl, D.A., 1990. Construction of the Triassic and Jurassic portion of the Phanerozoic curve of seawater $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. *Chemical Geology*, 80: 327-349.

- Koiter, A.J., Lobb, D.A., Owens, P.N., Petticrew, E.L., Tiessen, K.H.D., Li, S., 2013a. Investigating the role of connectivity and scale in assessing the sources of sediment in an agricultural watershed in the Canadian prairies using sediment source fingerprinting. *Journal of Soils and Sediments*, 13(10): 1676-1691.
- Koiter, A.J., Owens, P.N., Petticrew, E.L., Lobb, D.A., 2013b. The behavioural characteristics of sediment properties and their implications for sediment fingerprinting as an approach for identifying sediment sources in river basins. *Earth-Science Reviews*, 125: 24-42.
- Koiter, A.J., Owens, P.N., Petticrew, E.L., Lobb, D.A., 2015. The role of gravel channel beds on the particle size and organic matter selectivity of transported fine-grained sediment: implications for sediment fingerprinting and biogeochemical flux research. *Journal of Soils and Sediments*, 15(10): 2174-2188.
- Krishnaswami, S., Trivedi, J.R., Sarin, M.M., Ramesh, R., Sharma, K.K., 1992. Strontium isotopes and rubidium in the Ganga-Brahmaputra river system: Weathering in the Himalaya, fluxes to the Bay of Bengal and contributions to the evolution of oceanic $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. *Earth and Planetary Science Letters*, 109: 243-253.
- Kwaad, F.J.P.M., 1977. Measurements of Rainsplash Erosion and Formation of Colluvium beneath Deciduous Woodland in Luxembourg Ardennes. *Earth Surface Processes and Landforms*, 2(2-3): 161-173.
- Laceby, J.P., Olley, J., 2014. An examination of geochemical modelling approaches to tracing sediment sources incorporating distribution mixing and elemental correlations. *Hydrological Processes*, 29(6): 1669-1685.
- Lacoste, M., Michot, D., Viaud, V., Evrard, O., Walter, C., 2014. Combining ^{137}Cs measurements and a spatially distributed erosion model to assess soil redistribution in a hedgerow landscape in northwestern France (1960–2010). *Catena*, 119: 78-89.
- Lal, D., Malhotra, P.K., Peters, B., 1958. On the production of radioisotopes in the atmosphere by cosmic radiation and their application to meteorology. *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, 12: 306-328.
- Le Bissonnais, Y., 1988. Analyse des mécanismes de désagrégation et de la mobilisation des particules de terre sous l'action des pluies. , Université d'Orléans, U.E.R des Sciences Fondamentales et Appliquées, Thèse, 225 pp.
- Le Bissonnais, Y., 2000. Analyse expérimentale des mécanismes de l'érosion : la dégradation structurale superficielle et le détachement des particules des sols cultivés. Ingénieries -EAT, 22: 27-36.
- Le Bissonnais, Y., Cerdan, O., Lecomte, V., Benkhadra, H., Souchère, V., Martin, P., 2005. Variability of soil surface characteristics influencing runoff and interrill erosion. *Catena*, 62(2-3): 111-124.
- Le Bissonnais, Y., Le Souder, C., 1995. Mesurer la stabilité structurale des sols pour évaluer leur sensibilité à la battance et à l'érosion. *Etude et Gestion des Sols*, 2(1): 43-56.
- Le Bissonnais, Y., Montier, C., Jamagne, M., Daroussin, J., King, D., 2002. Mapping erosion risk for cultivated soil in France. *Catena*, 46: 207-220.
- Le Cloarec, M.F., Bonte, P., Lefevre, I., Mouchel, J.M., Colbert, S., 2007. Distribution of ^7Be , ^{210}Pb and ^{137}Cs in watersheds of different scales in the Seine River basin: inventories and residence times. *Sci Total Environ*, 375(1-3): 125-39.
- Le Souder, C., 1990. Effet d'un conditionneur minéral sur la formation des croûtes superficielles du sol sous l'action des pluies. Mode d'action du conditionneur sur la stabilité structurale., Institut National Agronomique Paris-Grignon. Station de science du sol INRA-Versailles, Thèse, 204 pp.
- Lepage, H., Laceby, J.P., Bonté, P., Joron, J.-L., Onda, Y., Lefèvre, I., Ayrault, S., Evrard, O., 2016. Investigating the source of radiocesium contaminated sediment in two Fukushima coastal catchments with sediment tracing techniques. Anthropocene.
- Lindstrom, M.J., Nelson, W.W., Schumacher, T.E., 1992. Quantify tillage erosion rates due to moldboard plowing. *Soil and Tillage Research*, 24: 243-255.
- Mabit, L., Benmansour, M., Walling, D.E., 2008. Comparative advantages and limitations of the fallout radionuclides ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and ^7Be for assessing soil erosion and sedimentation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(12): 1799-807.
- Maciel, V.G., Zortea, R.B., Menezes da Silva, W., Cybis, L.F.d.A., Einloft, S., Seferin, M., 2015. Life Cycle Inventory for the agricultural stages of soybean production in the state of Rio Grande do Sul, Brazil. *Journal of Cleaner Production*, 93: 65-74.
- Martin, C.E., McCulloch, M.T., 1999. Nd-Sr isotopic and trace element geochemistry of river sediments and soils in a fertilized catchment, New South Wales, Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(2): 287-305.
- Matisoff, G., Bonniwell, E., Whiting, P.J., 2002. Soil erosion and sediment sources in an Ohio Watershed using beryllium-7, cesium-137, and lead-210. *Journal of Environmental Quality*, 31: 54-61.
- Matisoff, G., Wilson, C.G., Whiting, P.J., 2005. The $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ ratio as an indicator of suspended sediment age or fraction new sediment in suspension. *Earth Surface Processes and Landforms*, 30(9): 1191-1201.
- McArthur, J.M., Kennedy, W.J., Chen, M., Thirlwall, M.F., Gale, A.S., 1994. Strontium isotope stratigraphy for Late Cretaceous time: Direct numerical calibration of the Sr isotope curve based on the US Western Interior. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 108(95-119).
- McCulloch, M., Pailles, C., Moody, P., Martin, C.E., 2003. Tracing the source of sediment and phosphorus into the Great Barrier Reef lagoon. *Earth and Planetary Science Letters*, 210(1-2): 249-258.
- McIntyre, D.S., 1958. Soil splash and the formation of surface crusts by raindrop impact. *Soil Science*, 85: 261-266.
- McNeary, D., 2003. Depositional characteristics of ^7Be and ^{210}Pb in southeastern Michigan. *Journal of Geophysical Research*, 108(D7): 1-15.
- Merten, G.H., Araújo, A.G., Biscaia, R.C.M., Barbosa, G.M.C., Conte, O., 2015. No-till surface runoff and soil losses in southern Brazil. *Soil and Tillage Research*, 152: 85-93.

- Merten, G.H., Minella, J.P.G., 2013. The expansion of Brazilian agriculture: Soil erosion scenarios. International Soil and Water Conservation Research, 1(3): 37-48.
- Meybeck, M., Helmer, R., 1989. The quality of rivers: From pristine stage to global pollution. Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology, 75: 283-309.
- Minella, J.P., Merten, G.H., Clarke, R.T., 2004. Identification of sediment sources in a small rural drainage basin. Sediment transfer through the fluvial system (Proceedings of a symposium held in Moscow).
- Minella, J.P.G., Merten, G.H., Walling, D.E., Reichert, J.M., 2009. Changing sediment yield as an indicator of improved soil management practices in southern Brazil. Catena, 79(3): 228-236.
- Minella, J.P.G., Walling, D.E., Merten, G.H., 2008. Combining sediment source tracing techniques with traditional monitoring to assess the impact of improved land management on catchment sediment yields. Journal of Hydrology, 348(3-4): 546-563.
- Minella, J.P.G., Walling, D.E., Merten, G.H., 2014. Establishing a sediment budget for a small agricultural catchment in southern Brazil, to support the development of effective sediment management strategies. Journal of Hydrology, 519: 2189-2201.
- Montanarella, L., 2015. Agricultural policy: Govern our soils. Nature, 528(7580): 32-33.
- MOOC "Des rivières et des Hommes", 2014. https://www.france-universite-numeriquemooc.fr/courses/grenobleinp/19001/Trimestre_4_2014/about (Dernier accès Mars 2015).
- Morgan, R.P.C., Martin, L., Noble, C.A., 1986. Soil erosion in the United Kingdom: a case study from mid-Bedfordshire. Silsoe College, Occasional Paper 14.
- Négre, P., 1997. Traçage des apports anthropiques sur un petit bassin versant : utilisation des rapports isotopiques du strontium, des éléments majeurs et traces.
- Négre, P., Allègre, C.J., Dupré, B., Lewin, E., 1993. Erosion sources determined by inversion of major and trace element ratios and strontium isotopic ratios in river water: The Congo Basin case. Earth and Planetary Science Letters, 120: 59-76.
- Négre, P., Grosbois, C., 1999. Changes in chemical and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ signature distribution patterns of suspended matter and bed sediments in the upper Loire river basin (France). Chemical Geology, 156: 231-249.
- Négre, P., Roy, S., 1998. Chemistry of rainwater in the Massif Central (France): a strontium isotope and major element study. Applied Geochemistry, 8: 941-952.
- Nosrati, K., Govers, G., Ahmadi, H., Sharifi, F., Amoozegar, M.A., Merckx, R., Vanmaercke, M., 2011. An exploratory study on the use of enzyme activities as sediment tracers: biochemical fingerprints? International Journal of Sediment Research, 26(2): 136-151.
- Oelkers, E.H., Jones, M.T., Pearce, C.R., Jeandel, C., Eiriksdottir, E.S., Gislason, S.R., 2012. Riverine particulate material dissolution in seawater and its implications for the global cycles of the elements. Comptes Rendus Geoscience, 344(11-12): 646-651.
- Olley, J., Brooks, A., Spencer, J., Pietsch, T., Boromboivits, D., 2013. Subsoil erosion dominates the supply of fine sediment to rivers draining into Princess Charlotte Bay, Australia. J Environ Radioact, 124: 121-9.
- Olley, J., Burton, J., Smolders, K., Pantus, F., Pietsch, T., 2012. The application of fallout radionuclides to determine the dominant erosion process in water supply catchments of subtropical South-east Queensland, Australia. Hydrological Processes, 27(6): 885-895.
- Olley, J., Caicheon, G., 2000. Major element chemistry of sediments from the Darling-Barwon river and its tributaries: implications for sediment and phosphorus sources. Hydrological Processes, 14(7): 1159-1175.
- Olley, J.M., Murray, A.S., Mackenzie, D.H., Edwards, K., 1993. Identifying sediment sources in a gullied catchment using natural and anthropogenic radioactivity. Water Resources Research, 29(4): 1037-1043.
- Owens, P.N., Batalla, R.J., Collins, A.J., Gomez, B., Hicks, D.M., Horowitz, A.J., Kondolf, G.M., Marden, M., Page, M.J., Peacock, D.H., Petticrew, E.L., Salomons, W., Trustrum, N.A., 2005. Fine-grained sediment in river systems: environmental significance and management issues. River Research and Applications, 21(7): 693-717.
- Owens, P.N., Walling, D.E., 2002. Changes in sediment sources and floodplain deposition rates in the catchment of the River Tweed, Scotland, over the last 100 years: the impact of climate and land use change. Earth Surface Processes and Landforms, 27(4): 403-423.
- Oygarden, L., Kvaerner, J., Jenssen, P.D., 1997. Soil erosion via preferential flow drainage systems in clay soils. Geoderma, 76: 65-86.
- Pande, K., Sarin, M.M., Trivedi, J.R., Krishnaswami, S., Sharma, K.K., 1994. The Indus river system (India-Pakistan)" Major-ion chemistry, uranium and strontium isotopes. Chemical Geology, 116: 245-259.
- Paolo, J., Minella, G., Merten, G.H., Reichert, M., 2007. Identificação E Implicações Para a Conservação do solo das fontes de sedimentos em bacias hidrográficas. Revista Brasileira de Ciências do Solo, 31(1): 1637-1646.
- Papastefanou, C., Ioannidou, A., 2004. Beryllium-7 and solar activity. Appl Radiat Isot, 61(6): 1493-5.
- Patin, J., Mouche, E., Ribolzi, O., Chaplot, V., Sengtaevanghoun, O., Latsachak, K.O., Soulileuth, B., Valentin, C., 2012. Analysis of runoff production at the plot scale during a long-term survey of a small agricultural catchment in Lao PDR. Journal of Hydrology, 426-427: 79-92.
- Pearce, C.R., Parkinson, I.J., Gaillardet, J., Chetelat, B., Burton, K.W., 2015. Characterising the stable ($\delta^{88}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) and radiogenic ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) isotopic composition of strontium in rainwater. Chemical Geology, 409: 54-60.
- Penven, M.-J., Muxart, T., 1995. Le drainage agricole : un rôle fondamental dans les transferts d'eau et de matière. L'exemple du plateau briard. Annales de Géographie, 104(581): 88-104.

- Petelet-Giraud, E., Luck, J.-M., Ben Othman, D., Negrel, P., Aquilina, L., 1998. Geochemistry and water dynamics of a medium-sized watershed: the Hérault, southern France. *Chemical Geology*, 150(1-2): 63-83.
- Petelet-Giraud, E., Négrel, P., Gourcy, L., Schmidt, C., Schirmer, M., 2007. Geochemical and isotopic constraints on groundwater-surface water interactions in a highly anthropized site. The Wolfen/Bitterfeld megasite (Mulde subcatchment, Germany). *Environmental Pollution*, 148(3): 707-17.
- Pogge von Strandmann, P.A.E., Opfergelt, S., Lai, Y.-J., Sigfusson, B., Gislason, S.R., Burton, K.W., 2012. Lithium, magnesium and silicon isotope behaviour accompanying weathering in a basaltic soil and pore water profile in Iceland. *Earth and Planetary Science Letters*, 339-340: 11-23.
- Pokrovsky, O.S., Viers, J., Dupré, B., Chabaux, F., Gaillardet, J., Audry, S., Prokushkin, A.S., Shirokova, L.S., Kirpotin, S.N., Lapitsky, S.A., Shevchenko, V.P., 2012. Biogeochemistry of carbon, major and trace elements in watersheds of northern Eurasia drained to the Arctic Ocean: The change of fluxes, sources and mechanisms under the climate warming prospective. *Comptes Rendus Geoscience*, 344(11-12): 663-677.
- Porto, P., Walling, D.E., Capra, A., 2014. Using ^{137}Cs and ^{210}Pb measurements and conventional surveys to investigate the relative contributions of interrill/rill and gully erosion to soil loss from a small cultivated catchment in Sicily. *Soil and Tillage Research*, 135: 18-27.
- Probst, A., El Gh'mari, D., Aubert, D., Fritz, B., McNutt, R., 2000. Strontium as a tracer of weathering processes in a silicate catchment polluted by acid atmospheric inputs, Strengbach, France. *Chemical Geology*, 170: 203-219.
- Pulley, S., Foster, I., Collins, A.L., 2016. The impact of catchment source group classification on the accuracy of sediment fingerprinting outputs. *Journal of Environmental Management*, xxx: 1-11.
- Rickson, R.J., 2014. Can control of soil erosion mitigate water pollution by sediments? *Science of The Total Environment*, 468-469: 1187-1197.
- Roddaz, M., Viers, J., Moreira-Turcq, P., Blondel, C., Sondag, F., Guyot, J.-L., Moreira, L., 2014. Evidence for the control of the geochemistry of Amazonian floodplain sediments by stratification of suspended sediments in the Amazon. *Chemical Geology*, 387: 101-110.
- Russell, R., Walling, D.E., Hodgkinson, R.A., 2001. Suspended sediment sources in two small lowland agricultural catchments in the UK. *Journal of Hydrology*, 252(1-4): 1-24.
- Schaller, N., 2013. L'agriculture de conservation. Analyse, centre d'études et de prospective, 61.
- Schmidt, A.V., 1989. Terraceamento na região Sul. Simpósio sobre terraceamento agrícola, Proceedings, Fundação Cargill: 23-25.
- Schmitt, A.-D., Vigier, N., Lemarchand, D., Millot, R., Stille, P., Chabaux, F., 2012. Processes controlling the stable isotope compositions of Li, B, Mg and Ca in plants, soils and waters: A review. *Comptes Rendus Geoscience*, 344(11-12): 704-722.
- Schuller, P., Walling, D.E., Sepúlveda, A., Castillo, A., Pino, I., 2007. Changes in soil erosion associated with the shift from conventional tillage to a no-tillage system, documented using ^{137}Cs measurements. *Soil and Tillage Research*, 94(1): 183-192.
- Semhi, K., Clauer, N., Probst, J.L., 2000. Strontium isotope compositions of river waters as records of lithology-dependent mass transfers: the Garonne river and its tributaries (SW France). *Chemical Geology*, 168: 173-193.
- Sepulveda, A., Schuller, P., Walling, D.E., Castillo, A., 2008. Use of ^7Be to document soil erosion associated with a short period of extreme rainfall. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(1): 35-49.
- Six, J., Feller, C., Denef, K., Ogle, S.M., de Moraes, J.C., Albrecht, A., 2002. Soil organic matter, biota and aggregation in temperate and tropical soils - Effects of no-tillage. *Agronomie*, 22(7-8): 755-775.
- Smith, H.G., Blake, W.H., 2014. Sediment fingerprinting in agricultural catchments: A critical re-examination of source discrimination and data corrections. *Geomorphology*, 204: 177-191.
- Smith, H.G., Blake, W.H., Taylor, A., 2014. Modelling particle residence times in agricultural river basins using a sediment budget model and fallout radionuclide tracers. *Earth Surface Processes and Landforms*, 39(14): 1944-1959.
- Sogon, S., Penven, M.-J., Bonte, P., Muxart, T., 1999. Estimation of sediment yield and soil loss using suspended sediment load and ^{137}Cs measurements on agricultural land, Brie Plateau, France. *Hydrobiologia*, 410(251-261).
- Speratti, A., Turmel, M.-S., Calegari, A., Araujo-Junior, C.F., Violic, A., Wall, P., Govaerts, B., 2015. Conservation Agriculture in Latin America. In: Publishing, S.I. (Ed.), *Conservation Agriculture*, pp. 391-415.
- Stein, M., Starinsky, A., Agnon, A., Katz, A., Raab, M., Spiro, B., Zak, I., 2000. The impact of brine-rock interaction during marine evaporite formation on the isotopic Sr record in the oceans: Evidence from Mt. Sedom, Israel. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64(12): 2039-2053.
- Sun, L., Leybourne, M.I., Miller, N.R., Denison, R.E., 2011. Strontium isotope constraints on solute sources and mixing dynamics in a large impoundment, South-Central USA. *Chemical Geology*, 285(1-4): 203-214.
- Taylor, A., Blake, W.H., Coudrick, L., Keith-Roach, M.J., 2012. Sorption behaviour of beryllium-7 and implications for its use as a sediment tracer. *Geoderma*, 187-188: 16-23.
- Taylor, A.S., Lasaga, A.C., 1999. The role of basalt weathering in the Sr isotope budget of the oceans. *Chemical Geology*, 161: 199-214.
- Taylor, S.R., McLennan, S.M., 1995. The geochemical evolution of the continental crust. *Reviews of Geophysics*, 33(2): 241-265.
- Tiecher, T., 2015. Fingerprinting sediment sources in agricultural catchments in southern Brazil, Universidade Federal de Santa Maria, Graduate programm in soil science - Université de Poitiers, Ecole doctorale Gay Lussac, Thèse, 275 pp.

- Tiecher, T., Caner, L., Minella, J.P.G., Bender, M.A., dos Santos, D.R., 2015. Tracing sediment sources in a subtropical rural catchment of southern Brazil by using geochemical tracers and near-infrared spectroscopy. *Soil and Tillage Research*.
- Tiecher, T., Minella, J.P.G., Miguel, P., Alvarez, J.W.R., Pellegrini, A., Capoane, V., Ciotti, L.H., Schaefer, G.L., dos Santos, D.R., 2014. Contribuição das fontes de sedimentos em uma bacia hidrográfica agrícola sob plantio direto. *Revista Brasileira de Ciencia do Solo*, 38(2): 639-649.
- Valentin, C., Poesen, J., Li, Y., 2005. Gully erosion: Impacts, factors and control. *Catena*, 63(2-3): 132-153.
- Van Oost, K., Cerdan, O., Quine, T.A., 2009. Accelerated sediment fluxes by water and tillage erosion on European agricultural land. *Earth Surface Processes and Landforms*, 34(12): 1625-1634.
- Vanmaercke, M., Poesen, J., Verstraeten, G., de Vente, J., Ocakoglu, F., 2011. Sediment yield in Europe: Spatial patterns and scale dependency. *Geomorphology*, 130(3-4): 142-161.
- Verheijen, F.G.A., Jones, R.J.A., Rickson, R.J., Smith, C.J., 2009. Tolerable versus actual soil erosion rates in Europe. *Earth-Science Reviews*, 94(1-4): 23-38.
- Verstraeten, G., Poesen, J., 2001. Factors controlling sediment yield from small intensively cultivated catchments in a temperate humid climate. *Geomorphology*, 40(1-2): 123-144.
- Viers, J., Dupré, B., Braun, J.-J., Deberdt, S., Angeletti, B., Ndam Ngoupayou, J., Michard, A., 2000. Major and trace element abundances, and strontium isotopes in the Nyong basin rivers Cameroon/ : constraints on chemical weathering processes and elements transport mechanisms in humid tropical environments. *Chemical Geology*, 169: 211-241.
- Viers, J., Roddaz, M., Filizola, N., Guyot, J.-L., Sondag, F., Brunet, P., Zouiten, C., Boucayrand, C., Martin, F., Boaventura, G.R., 2008. Seasonal and provenance controls on Nd–Sr isotopic compositions of Amazon rivers suspended sediments and implications for Nd and Sr fluxes exported to the Atlantic Ocean. *Earth and Planetary Science Letters*, 274(3-4): 511-523.
- Vitoria, L., Otero, N., Soler, A., Canals, A., 2004. Fertilizer characterisation: Isotopic data (N, S, O, C, and Sr). *Environmental Science & Technology*, 38: 3254-3262.
- Vörösmarty, C.J., Meybeck, M., Fekete, B., Sharma, K., Green, P., Syvitski, J.P.M., 2003. Anthropogenic sediment retention: major global impact from registered river impoundments. *Global and Planetary Change*, 39(1-2): 169-190.
- Wadleigh, M.A., Veizer, J., Brooks, C., 1985. Strontium and its isotopes in Canadian rivers: Fluxes and global implications. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 49(8): 1727-1736.
- Walling, D.E., 1988. Erosion and sediment yield research - some recent perspectives. *Journal of Hydrology*, 100: 113-141.
- Walling, D.E., 2005. Tracing suspended sediment sources in catchments and river systems. *Science of the Total Environment*, 344(1-3): 159-84.
- Walling, D.E., 2012. Beryllium-7: The Cinderella of fallout radionuclide sediment tracers? *Hydrological Processes*.
- Walling, D.E., 2013. The evolution of sediment source fingerprinting investigations in fluvial systems. *Journal of Soils and Sediments*, 13(1658-1675).
- Walling, D.E., Collins, A.L., Stroud, R.W., 2008. Tracing suspended sediment and particulate phosphorus sources in catchments. *Journal of Hydrology*, 350(3-4): 274-289.
- Walling, D.E., Russell, R., Hodgkinson, R.A., Zhang, C., 2002. Establishing sediment budgets for two small lowland agricultural catchments in the UK. *Catena*, 47: 323-353.
- Wilkinson, S.N., Hancock, G., Bartley, R., Hawdon, A., Keen, R.J., 2013. Using sediment tracing to assess processes and spatial patterns of erosion in grazed rangelands, Burdekin River basin, Australia. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 180: 90-102.
- Wilkinson, S.N., Olley, J.M., Furuichi, T., Burton, J., Kinsey-Henderson, A.E., 2015. Sediment source tracing with stratified sampling and weightings based on spatial gradients in soil erosion. *Journal of Soils and Sediments*, 15(10): 2038-2051.
- Wischmeier, W.H., Smith, D.D., 1978. Predicting Rainfall Erosion Losses: A Guide to Conservation Planning. Agriculture Handbook No. 537. USDA/Science and Education Administration, US. Govt. Printing Office, Wahington, DC. 58pp.
- Withers, P.J.A., Hodgkinson, R.A., 2009. The effect of farming practices on phosphorus transfer to a headwater stream in England. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 131(3-4): 347-355.
- Wuddivira, M.N., Camps-Roach, G., 2007. Effects of organic matter and calcium on soil structural stability. *European Journal of Soil Science*, 58(3): 722-727.
- Zhongming, W., Lees, B.G., Feng, J., Wanning, L., Haijing, S., 2010. Stratified vegetation cover index: A new way to assess vegetation impact on soil erosion. *Catena*, 83(1): 87-93.
- Zingg, A.W., 1940. Degree and length of land slope as it affects soil loss in runoff. *Agricultural Engineering* 21: 59-64.



CHAPITRE 2

Présentation des sites d'étude

-

Matériels et Méthodes

Chapitre 2. Présentation des sites d'étude – Matériels et Méthodes

Ce second chapitre a pour objectif de présenter les deux sites d'études sélectionnés, l'instrumentation existante sur chaque site pour la collecte des échantillons et, enfin, les techniques d'analyses mises en œuvre pour tracer les sources de sédiments fins.

Le premier site d'étude, le bassin du Louroux (24 km^2), est localisé en France, dans le département de l'Indre-et-Loire. Ce bassin, qui appartient au bassin versant de la Loire, est caractéristique des plaines agricoles drainées du Nord-Ouest de l'Europe où l'érosion et les transferts de sédiments restent relativement peu documentés. La collecte des échantillons sur le site du Louroux a bénéficié de l'expertise du laboratoire GéHCO (GéoHydroSystèmes COntinentaux) de l'Université de Tours, qui a instrumenté ce site début 2013 (Foucher, 2015) avec le soutien financier de l'Agence de l'Eau Loire-Bretagne et la collaboration du BRGM. Le second site d'étude, le bassin de Guaporé (2000 km^2), est localisé au Brésil dans l'État du Rio Grande do Sul. Ce bassin est caractéristique des zones d'agriculture intensive brésiliennes. Les échantillons utilisés dans la cadre de la thèse ont été collectés entre 2011 et 2014 par le Département des sols l'Université Fédérale de Santa Maria qui a instrumenté ce bassin et l'étudie depuis 2010 (Tiecher, 2015) (Figure 2.1).

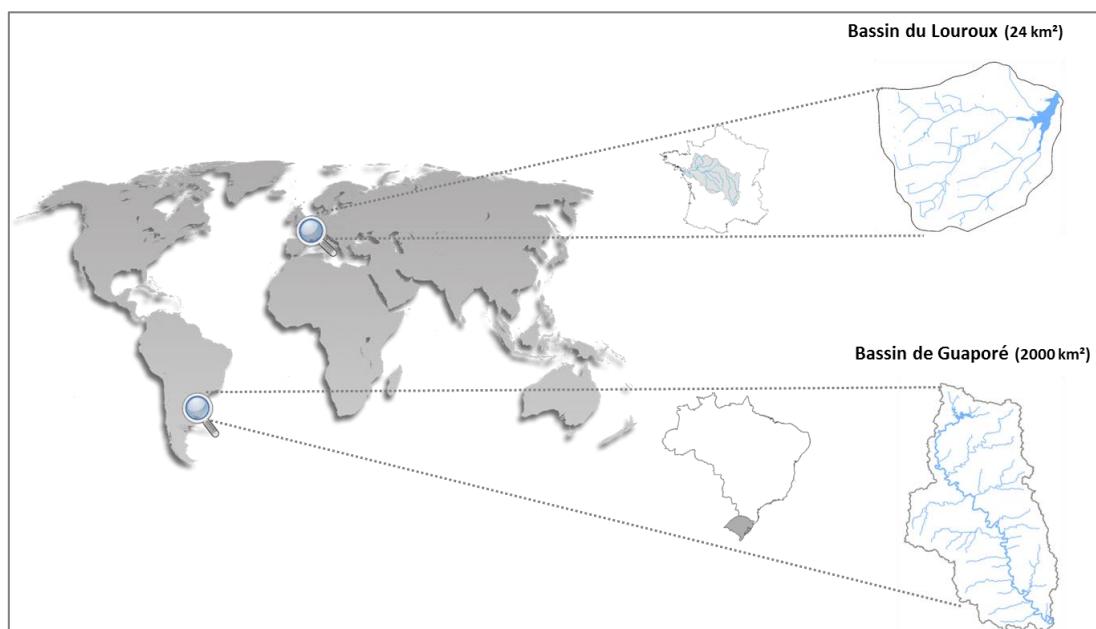


Figure 2.1. Localisation des deux sites d'étude en France et au Brésil.

Ces deux bassins versants agricoles, tous les deux affectés par l'érosion des sols, présentent des caractéristiques contrastées en termes de superficie, climat, pédologie, géologie et pratiques agricoles (Table 2.1). Du fait de ces différences, le potentiel de l'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)

combinée à des mesures de concentrations élémentaires et de radionucléides (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) pour tracer l'origine des particules est testé sur ces deux sites d'études.

Table 2.1. Principales caractéristiques des bassins du Louroux (France) et de Guaporé (Brésil).

	Bassin du Louroux	Bassin de Guaporé
Types de sols	Néoluvisol	Ferralsol (31%)
	Calcosol	Luvisol (24%)
	Calcisol	Nitisol (21%)
		Acrisol (17%)
		Leptosol (7%)
Géologie	Sables et graviers continentaux (32%)	Séries volcaniques (formation Serra Geral) :
	Argiles à silex (23%)	Caxias - rhyodacite (72%)
	Faluns (18%)	Gramado – basalte - (26%)
	Limons des plateaux (18%)	Paranapanema – arénite- (2%)
	Calcaires lacustres de Touraine (6%)	
	Poudingues siliceux (1%)	
Cumul de pluie annuel (période 1982-2012)	680 mm	1400 à 2000 mm
Surface	24 km ²	2032 km ²
Taux d'érosion actuels	90-102 t.km ⁻² .an ⁻¹ (2000-2010) ^a	41-242 t.km ⁻² .an ⁻¹ , moyenne de 140 t.km ⁻² .an ⁻¹ (2011-2012) ^b
		159-390 t.km ⁻² .an ⁻¹ , moyenne de 274 t.km ⁻² .an ⁻¹ (2011-2012) ^b
Topographie	99 à 127 m	207 à 832 m

^a(Foucher et al., 2014), ^b(Didoné et al., 2014)

1. Le bassin du Louroux (Indre-et-Loire, France), caractéristiques et échantillonnage

1.1 Localisation, description et historique du site

Le site du Louroux se situe en France, dans le bassin hydrographique de la Loire, à environ 30 km au sud de la ville de Tours (47.15°N - 0.77°E), en Indre-et-Loire (Figure 2.2). Ce site draine une zone de 24 km^2 et s'intègre dans l'unité géomorphologique du plateau de Sainte-Maure de Touraine, située entre l'Indre et la Manse, et caractérisée par une agriculture intensive. Ce site a été choisi et instrumenté dans le cadre de la thèse de doctorat d'Anthony Foucher (2011-2015, Université de Tours ; Foucher, 2015) après la réalisation d'enquêtes auprès d'acteurs locaux visant à identifier un site impacté par des modifications récentes et importantes de l'occupation des sols qui se sont traduites par une augmentation des taux d'érosion.

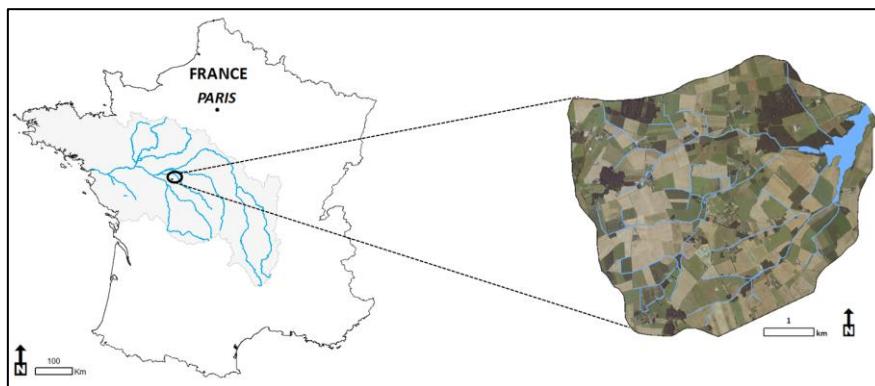


Figure 2.2. Localisation du bassin versant du Louroux en France et dans le bassin de Loire Bretagne.

1.1.1. Topographie et climat

Le site du Louroux est caractéristique des bassins versants amont des grandes régions sédimentaires de plaine. Avec une altitude comprise entre 94 et 129 m et une pente moyenne estimée à 0,44%, le relief est relativement plat. Le point culminant du bassin se situe à son extrémité Nord-Ouest, le point le plus bas est localisé à l'exutoire du bassin, au niveau de la digue de l'étang du Louroux (Figure 2.3).

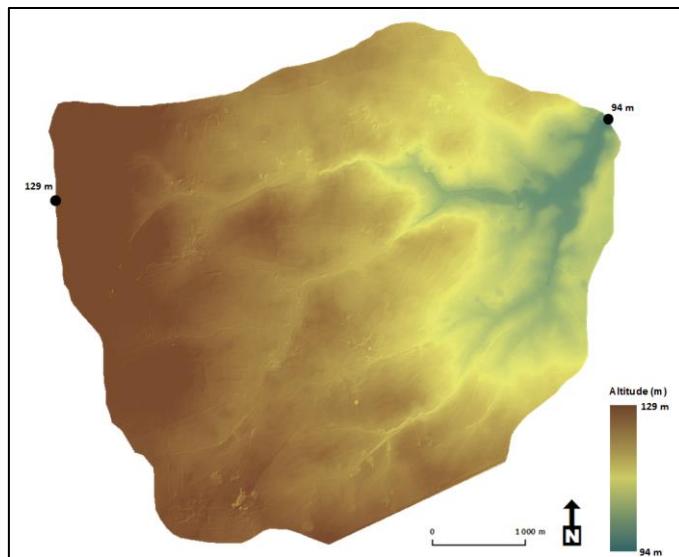


Figure 2.3. Topographie du bassin versant du Louroux issue de données Lidar (résolution – 2 m) (A. Foucher).

Un climat tempéré océanique domine la région. La commune du Louroux ne dispose pas de chroniques météorologiques sur de longues périodes. Cependant, la proximité de la ville de Tours située à 30 km du bassin, apporte des informations climatiques sur la période 1982-2012. Le climat est relativement doux avec une température annuelle moyenne de 11,6°C, les variations saisonnières sont modérées avec des températures minimales moyennes de 1°C en janvier et maximales de 25,2°C en juillet. Avec un cumul de pluie annuel moyen de 665 mm, les pluies sont assez bien réparties au cours de l'année (Figure 2.4). Les précipitations maximales sont enregistrées sur la période d'octobre à février, avec des précipitations moyennes comprises entre 57 et 66 mm, alors qu'au mois de juillet les précipitations sont minimales avec un cumul moyen de 47 mm.

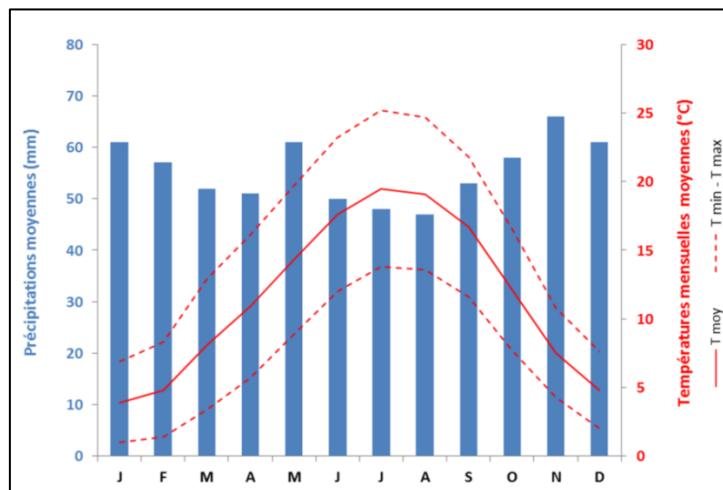


Figure 2.4. Diagramme ombrothermique de la ville de Tours couvrant la période 1982-2012 (d'après <http://fr.climate-data.org/>).

1.1.2. Réseau hydrographique

Le réseau hydrographique du bassin du Louroux est dense et constitué de fossés artificiels, créés ou fortement modifiés depuis la Seconde Guerre Mondiale. Au total, 45 km de linéaire ont été répertoriés, 10 km sont classés en tant que rivières, les 35 km restant sont classés comme fossés.

A ce réseau artificiel superficiel s'ajoute un réseau souterrain de drainage très dense. Sur le bassin du Louroux, plus de 50% des terres arables sont drainées. En 2012, près de 220 collecteurs de drains répartis de manière homogène sur le bassin ont été répertoriés (Foucher, 2015) (Figure 2.5).

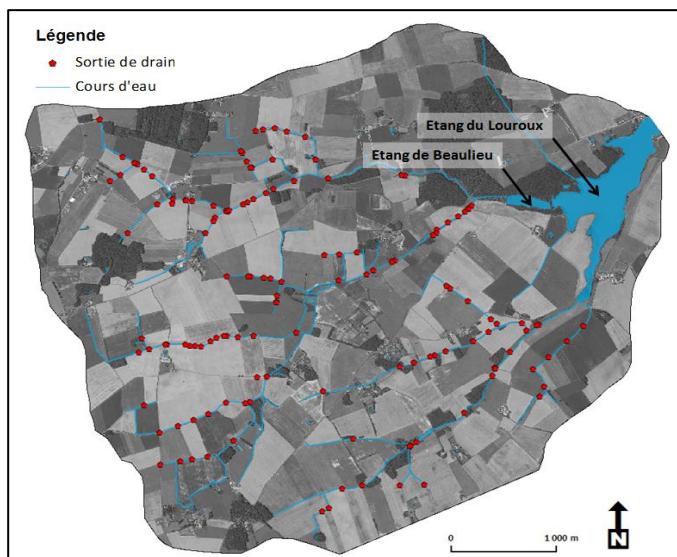


Figure 2.5. Carte du réseau hydrographique et localisation des sorties de drain sur le bassin versant du Louroux.

Ce réseau hydrographique alimente l'étang du Louroux (52 ha) situé à l'exutoire du bassin. Mis en place au Moyen-Age (X^{ème}-XI^{ème} siècle), l'étang constitue la plus grande masse d'eau d'Indre-et-Loire. Un second étang y est associé, l'étang de Beaulieu (3 ha), plus récent (XVIII^{ème} siècle) et localisé au niveau de la corne sud-ouest de l'étang du Louroux. Ces deux étangs sont séparés par une digue et connectés en période de hautes eaux par un canal artificiel. Les eaux de l'étang s'écoulent par débordement vers l'Echandon, puis l'Indre et, enfin, la Loire.

Seule l'histoire récente de l'étang du Louroux est bien documentée. Les prémisses de l'eutrophisation de l'étang ont été observées dès le début des années 1970. Jusqu'en 1980, l'étang était vidangé tous les ans, à partir de 1980 et jusqu'en 1990, la vidange de l'étang n'a plus été réalisée que tous les trois ans. L'étang est acquis par le Conseil Général en 1990 et ne subit plus aucune vidange jusqu'aux années 2000. En 2001, dans le cadre de travaux de restauration de la digue, l'étang a été complètement vidangé, et un assec est réalisé jusqu'en 2003 pour permettre la restauration de la digue et un curage partiel des vases accumulées. Depuis 2003, l'étang est vidangé et les poissons y sont pêchés tous les deux ans (Conseil Général d'Indre et Loire, 2009). Lors de la dernière vidange

opérée entre décembre 2012 et novembre 2013 (Figure 2.6), une campagne de Lidar aéroporté a permis d'estimer la bathymétrie moyenne de l'étang à 2 m avec une profondeur maximale de 4,8 m à proximité de la digue (Foucher, 2015).



Figure 2.6. Vue de l'étang du Louroux lors de sa vidange en 2013 (Photographie, A. Foucher).

Le bassin du Louroux est exclusivement composé de terrains sédimentaires d'origine continentale et marine, et six formations géologiques occupent son territoire (Rasplus et al., 1982) (Figure 2.7). Dans ce contexte de plaine, très peu d'affleurements sont visibles. De ce fait, la délimitation des différentes formations géologiques reste difficile à évaluer et est sujette à discussion.

La formation la plus ancienne correspond au faciès des Argiles à silex (*Sénonien inférieur et moyen*) (23%) et est principalement localisée au nord du bassin, servant d'assise à l'étang du Louroux. Cette formation est constituée d'argiles blanches ou verdâtres, dominées par la présence de smectites ou de kaolinites riches en silex. Ces dépôts présentent une épaisseur variable de 2 à 3 m.

Au-dessus de cette unité, se sont déposées des formations tertiaires détritiques intercalées entre les formations du Sénonien et celles de l'Eocène supérieur. Ces dépôts correspondent au faciès des Poudingues siliceux (*Eocène*) (1,4%) et présentent une matrice argilo-sableuse qui inclut des fragments de silex. Cette formation affleure dans des zones centrales du bassin très localisées et sur de petites surfaces.

Les Calcaires lacustres de Touraine (*Eocène-Oligocène*) (6%) affleurent au sud et à l'ouest de l'étang du Louroux. Ce faciès peut atteindre jusqu'à 20 m d'épaisseur et est en partie recouvert par la formation des Faluns de Touraine (*Miocène*) (18%), qui affleurent dans la partie sud-ouest du bassin.

Ces dépôts sont formés de débris de coquilles et sont témoins de dépôts sédimentaires marins de faible épaisseur (entre 3 et 15 m).

Les Sables et graviers continentaux (*Mio-Pliocène*) (32%) constituent la formation la plus importante du bassin du Louroux. Composés de sables grossiers et de graviers, leur épaisseur dépasse rarement les 3 m. Issu de l'altération des formations précédentes, ce faciès présente des matériaux constitutifs similaires aux faluns mais est aussi caractérisé par la présence de quartz et de feldspaths potassiques.

Enfin, les Limons de plateaux (*Quaternaire*) (18%), dépôts éoliens localisés en amont du bassin, constituent une formation superficielle d'épaisseur variable comprise entre 0,5 et 1,5 m. Ce type de substrat est particulièrement favorable à l'agriculture céréalière.

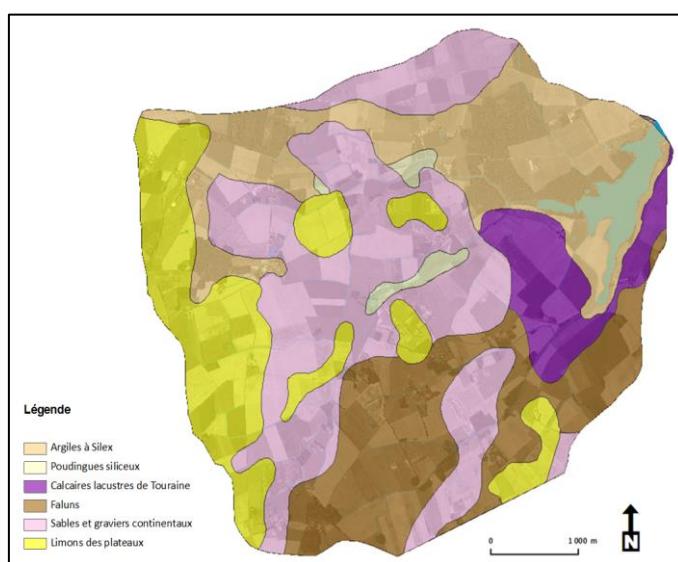


Figure 2.7. Carte géologique synthétique du bassin du Louroux (BRGM).

Le **contexte pédologique** du bassin est directement lié à la diversité des unités géologiques sous-jacentes. La plupart des sols sont classifiés comme Néoluvisols (Froger et al., 1994). Développés sur des limons mais aussi sur des substrats tels que les faluns ou les poudingues, ces sols sont caractérisés par leur forte sensibilité à la battance et à l'hydromorphie. Les réseaux de drainage sont d'ailleurs particulièrement denses dans ces zones saturées en période hivernale. Au sud de l'étang, des Calcosols et Calcisol se développent sur le substrat des calcaires lacustres. Ces formations sont peu sensibles à la battance. Au nord, sur la formation des argiles à silex, des Brunisols luviques se développent et présentent un comportement intermédiaire avec une sensibilité modérée à la battance.

1.1.3. Occupation des sols, évolution du paysage

Actuellement, l'occupation des sols est majoritairement tournée vers l'agriculture céréalière intensive avec 78% de la surface du bassin dédiés aux terres arables, le reste de la surface étant recouvert par des prairies permanentes (18%) et des forêts (4%).



Figure 2.8. Paysage caractéristique du bassin versant du Louroux, avec au premier plan un fossé érodé dans lequel se jette un collecteur de drain et, au second plan, une parcelle cultivée traversée par une dérayure connectée au fossé (Photographie, A. Foucher).

Il est difficile de reconstituer l'évolution de l'occupation des sols sur le bassin du Louroux, cependant celle-ci est intense depuis les années 1950, avec une transition marquée d'un système très humide vers un contexte de plaine agricole céréalière (Figure 2.8).

Les travaux de recherche dans les archives départementales menées dans le cadre de la thèse d'Anthony Foucher ont permis de retracer les principaux aménagements du territoire observés sur le bassin du Louroux (Figure 2.9). Les premières traces d'aménagement datent des années 1935. Une première phase de remembrements a probablement eu lieu à cette époque, même si la majorité des aménagements ont eu lieu après la Seconde Guerre Mondiale. Dès 1944, une première phase de création et d'agrandissement des fossés est lancée sur l'ensemble du plateau de Sainte-Maure. Les fossés pré-existants sont agrandis, et de nombreux autres fossés sont créés pour drainer les zones les plus en amont. Un vaste réseau hydrographique se met alors en place. L'eau des sols hydromorphes est de mieux en mieux évacuée, ce qui favorise le développement des cultures intensives. A cela s'ajoute l'installation d'un dense réseau de drainage. Entre 1952 et 1955, un vaste plan de remembrement est lancé sur le bassin du Louroux. En à peine une décennie, l'ensemble du

parcellaire du bassin est modifié, passant d'un système très morcelé à un paysage plus ouvert caractérisé par de grandes parcelles. L'agriculture d'élevage cède la place à une agriculture céréalière intensive. Une fois cette phase de remembrements achevée, la création de réseaux de drainage et de fossés se poursuit. Entre 1992 et 1993, le bassin du Louroux subit un dernier plan de remembrement qui affecte toute sa superficie mais de manière moins intense que dans les années 1950. Même si depuis, aucun grand aménagement n'a été mené, le réseau de drainage continue à s'intensifier.

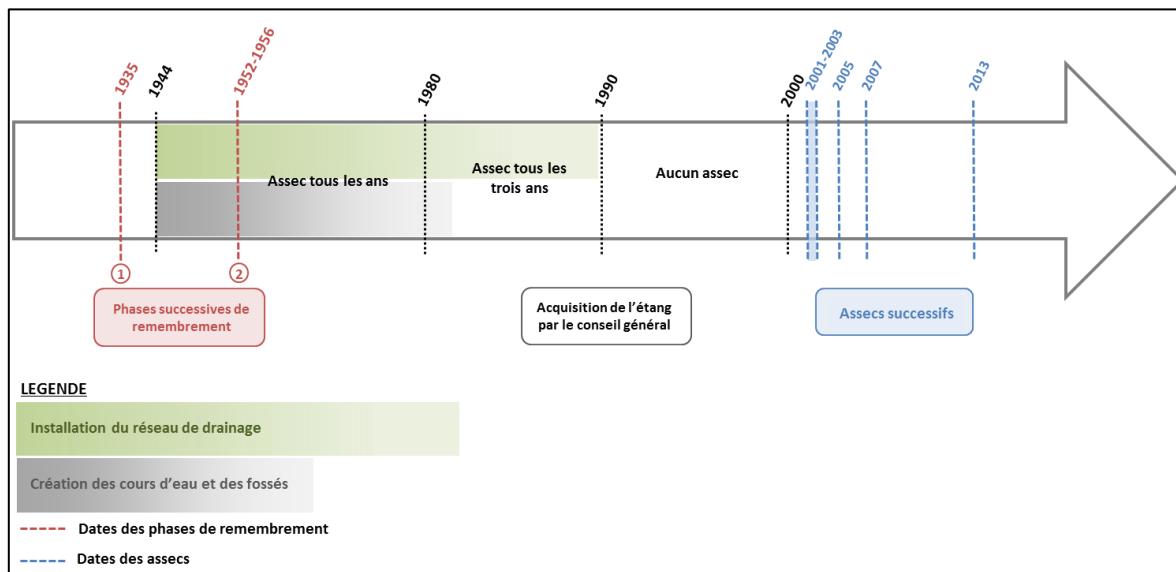


Figure 2.9. Frise chronologique de l'histoire récente et des aménagements du bassin versant et de l'étang du Louroux (d'après la thèse d'A. Foucher).

L'ensemble des modifications agricoles (remembrements et installation de drains) ont induit une augmentation des apports de matière solide vers l'hydrosystème. Le recalibrage des cours d'eau s'est traduit par une diminution de la capacité de transport des MES, favorisant ainsi leur sédimentation dans les cours d'eau mais aussi à l'exutoire du bassin dans l'étang du Louroux. La problématique du transfert de matière reste relativement complexe et des incertitudes demeurent quant à la source des particules transitant dans les cours d'eau et au travers des drains. Pour répondre à ces questions, limiter ou tout du moins ralentir l'apport de particules aux cours d'eau et mettre en place des mesures de gestion appropriées, les sources de particules et leur cheminement doivent être identifiés. Pour cela, le bassin a été instrumenté et diverses campagnes d'échantillonnage ont été réalisées.

1.2 Méthodes d'échantillonnage

Pour étudier les transferts de matière depuis les versants jusqu'à l'étang, différentes stratégies d'échantillonnage ont été mises en œuvre. Les différents compartiments du bassin ont été échantillonnés (étang, cours d'eau, versants) pour identifier les sources de particules et étudier leurs variations spatiales et temporelles.

- Sur les versants, les sources potentielles de particules, **sols** et **berges**, ont été prélevées entre 2012 et 2014 (Figure 2.10). L'échantillonnage a été concentré au niveau des zones sensibles à l'érosion et potentiellement connectées aux cours d'eau et de telle sorte que la variabilité lithologique du bassin soit bien représentée.

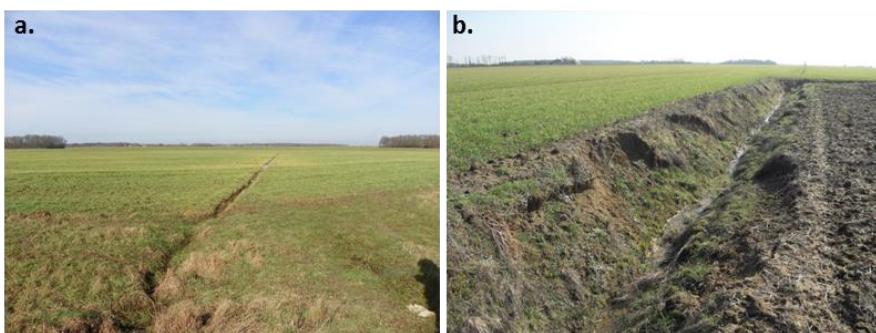


Figure 2.10. Photographies d'un champ directement connecté à l'hydrosystème par la présence d'une dérayure (a) et de berges impactées par l'érosion (b) (Photographies, A. Foucher).

- Pour étudier la dynamique sédimentaire actuelle, des échantillons de **matières en suspension (MES)** ont été collectés sur les principaux affluents de l'étang du Louroux et en sortie de collecteurs de drains (Figure 2.11). Les enjeux d'une telle instrumentation sont multiples, quantifier les flux de matière qui arrivent à l'étang mais aussi la contribution du réseau de drainage dans le transport des particules. Les sept stations ont été installées dans le cadre de la thèse d'Anthony Foucher en 2013. Equipées d'un enregistreur de données, d'une sonde de niveau d'eau, d'une sonde de turbidité et d'un préleveur automatique, ce dispositif permet l'acquisition de données en continu toutes les 15 minutes. L'estimation des débits est rendue possible grâce à la réalisation de jaugeages et à l'utilisation de courbes de tarage (Foucher, 2015). Cinq stations ont été directement installées sur les principaux affluents de l'étang, les deux autres l'ont été à la sortie de collecteurs de drain. Cinq crues ont ainsi été échantillonnées les 28 décembre 2013, 30 janvier 2014, 13 février 2014, 7 et 11 janvier 2016 et exploitées dans le cadre de cette thèse (Figure 2.12). Les caractéristiques de ces crues sont présentées plus en détail au chapitre 3.



Figure 2.11. Photographies de trois stations d'échantillonnage : station avec canal Venturi (Les Masniers) (a), station installée sur un pont (Grand Braye) (b) et station installée sur un collecteur de drain (Brépinière) (c) (Photographies, A. Foucher).

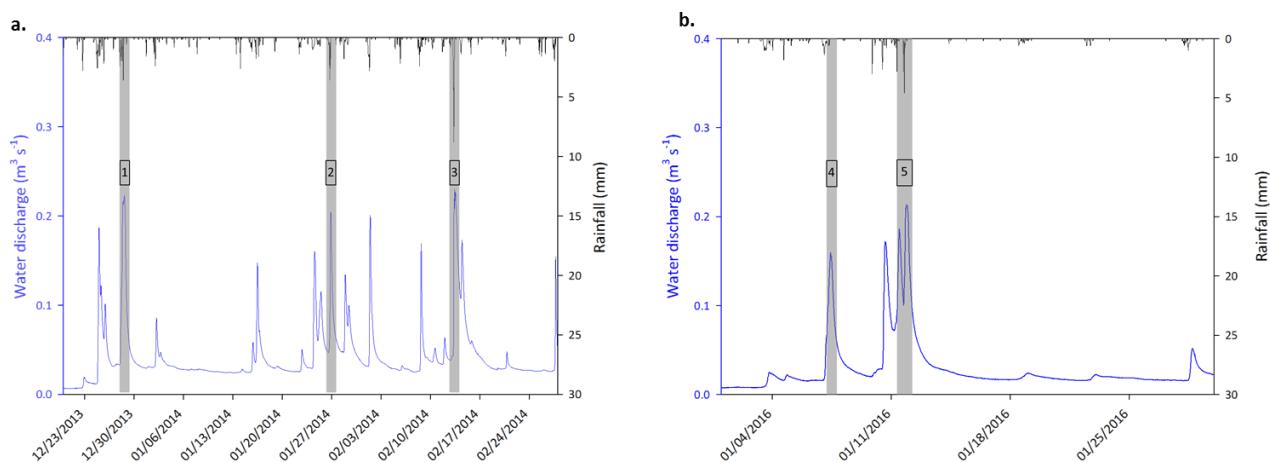


Figure 2.12. Exemple de hyéogramme et d'hydrogramme obtenus à la station des Masniers (MS) et occurrence des cinq crues échantillonnées.

- Sur l'étang du Louroux, où s'accumule potentiellement une part significative des sédiments produits dans le bassin, une **carotte sédimentaire** de 1,10 m de longueur et des prélèvements de **sédiments** superficiels déposés au fond de l'étang ont été réalisés en 2013 (Foucher, 2015) (Figure 2.13). La carotte sédimentaire a été prélevée au niveau de la confluence des chenaux des deux principaux affluents de l'étang du Louroux (Foucher et al., 2014).

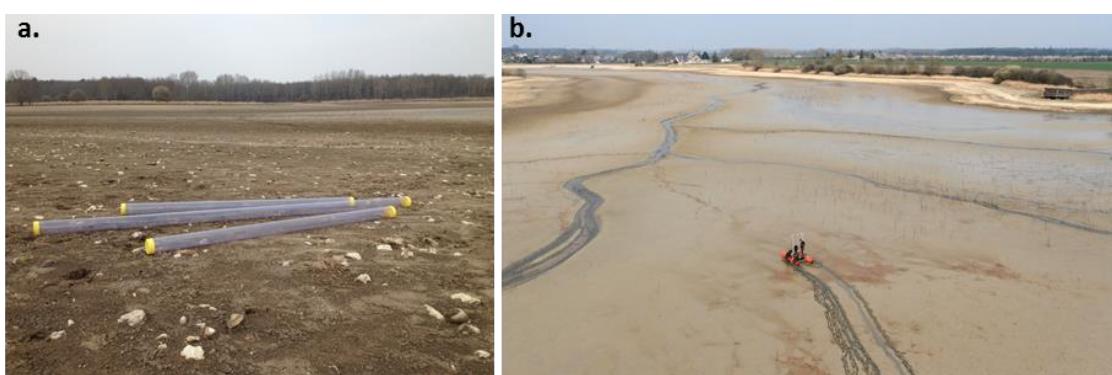


Figure 2.13. Vue de l'étang lors de la dernière vidange opérée entre décembre 2012 et novembre 2013 et au cours de laquelle la carotte sédimentaire et les sédiments déposés dans l'étang ont été collectés (Photographies, A. Foucher (a); Studio Pierre © (b)).

- Des échantillonnages complémentaires ont été réalisés sur l'ensemble du bassin versant. Des roches carbonatées et silicatées, des échantillons dissous et de retombées atmosphériques ont été collectés. Les engrains couramment utilisés sur le bassin versant (N, P.K, N.P.K) ont également été obtenus auprès de la principale coopérative agricole du bassin. Ces échantillons ont été soumis à des mesures d'isotopie du strontium, de manière à caractériser au mieux les différentes composantes qui peuvent influer sur les signatures isotopiques des particules et de leurs sources potentielles.

- Enfin, une station météorologique installée à l'exutoire du bassin, à proximité directe de l'étang du Louroux, permet l'acquisition en continu des mesures de précipitations, des températures, de la vitesse et de la direction du vent.

Récapitulatif de l'ensemble des échantillons collectés sur le bassin du Louroux et utilisés pour des mesures de radionucléides et/ou de géochimie

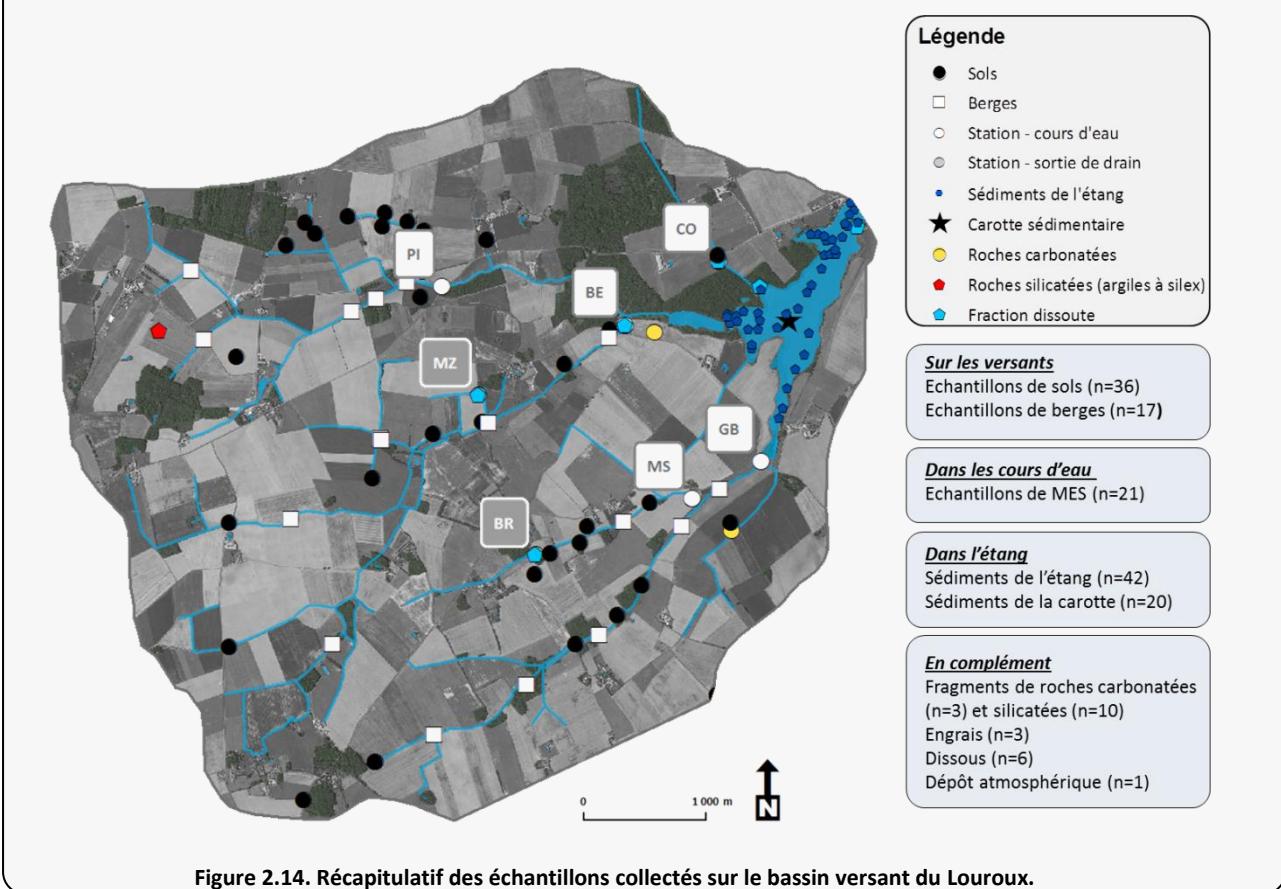


Figure 2.14. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin versant du Louroux.

Table 2.2. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin du Louroux et des analyses réalisées.

Type d'échantillon	Analyses réalisées	Informations complémentaires
Source de particules - Sol	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=20) Spectrométrie gamma (n=36)	Brut (<2 mm) (n=20), fraction <63 µm (n=8), fraction <2 µm (n=8)
Source de particules - Berge	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=8) Spectrométrie gamma (n=17)	
Matières en suspension (MES)	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=21) Diffraction des rayons X (DRX) (n=10) Spectrométrie gamma (n=21)	Trois crues ont été échantillonnées entre 2013 et 2014 (30 décembre 2013, 29 janvier 2014, 13 février 2014)
Sédiments déposés dans l'étang du Louroux	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=32) Spectrométrie gamma (n=42) Microscopie électronique à balayage (MEB) (n=2) Spectrométrie gamma (n=42)	19 échantillons de MES et 2 échantillons collectés dans des dérayures (signal d'entrée du système pour mesures de ⁷ Be) lors des crues du 30/12/2013, du 29/01/2014 et du 13/02/2014.
Carotte sédimentaire	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=20) Extractions sélectives (n=8) Diffraction des rayons X (DRX) (n=4) Microscopie électronique à balayage (MEB) (n=6) Spectrométrie gamma (n=32)	Triplcats réalisés pour chaque échantillon
Roches carbonatées	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=3)	Triplcats réalisés pour chaque échantillon
Roches silicatées	Géochimie élémentaire et isotopies du Sr (n=15)	Profil d'argiles à silex prélevé en amont du bassin du Louroux
Engrais	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=3)	Trois types d'engrais couramment utilisés sur le bassin du Louroux N (33,5) - P.K (25.25) - N.P.K (15.15.15)
Dissous	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=6)	Etang du Louroux (n=2) et cours d'eau (n=4)
Dépôt atmosphérique	Géochimie élémentaire et isotopie du Sr (n=1)	

2. Le bassin de Guaporé (Rio Grande do Sul, Brésil), caractéristiques et échantillonnage

2.1 Localisation, description et historique du site

Le site de Guaporé se trouve au nord-est de l'État du Rio Grande do Sul situé au sud du Brésil et draine une zone de 2032 km² (*exutoire* : -29.2°N, -51.9°E) (Figure 2.15). Les plateaux amont du bassin de Guaporé se situent à l'extrême sud de la formation de Serra Geral. La partie aval correspond à une zone de transition entre les plateaux amont et les plaines du sud de l'État du Rio Grande do Sul. Ce site est instrumenté depuis 2010 par l'*Universidade Federal de Santa Maria* (UFSM) et permet l'étude et le suivi de l'érosion des sols dans une région aux usages et aux types de sols variés (Didoné et al., 2014; Tiecher, 2015).

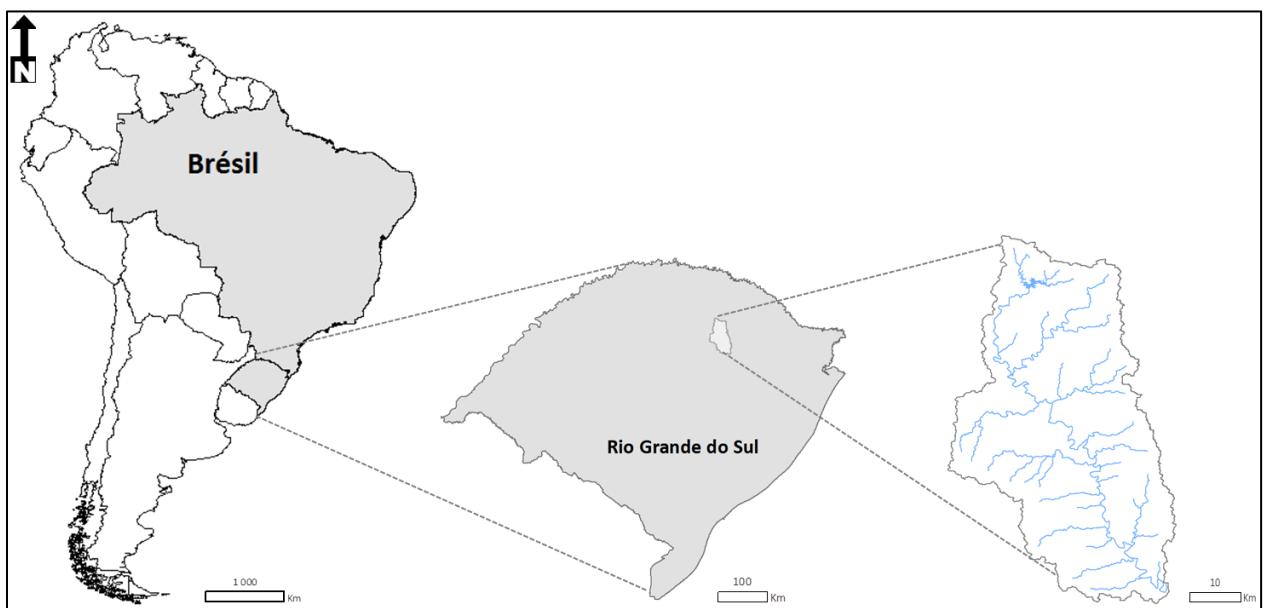


Figure 2.15. Localisation du bassin versant de Guaporé au Brésil et dans l'État de Rio Grande do Sul.

2.1.1. Topographie et climat

Le bassin de Guaporé est caractérisé par une altitude comprise entre 207 et 832 m. Les points culminants se situent dans des zones de « plateaux » en amont du bassin et dans sa frange sud-ouest, les points les plus bas étant localisés dans la vallée du Rio Guaporé. Le relief est relativement vallonné en amont et beaucoup plus accentué, avec des pentes raides, en aval (Figure 2.16).

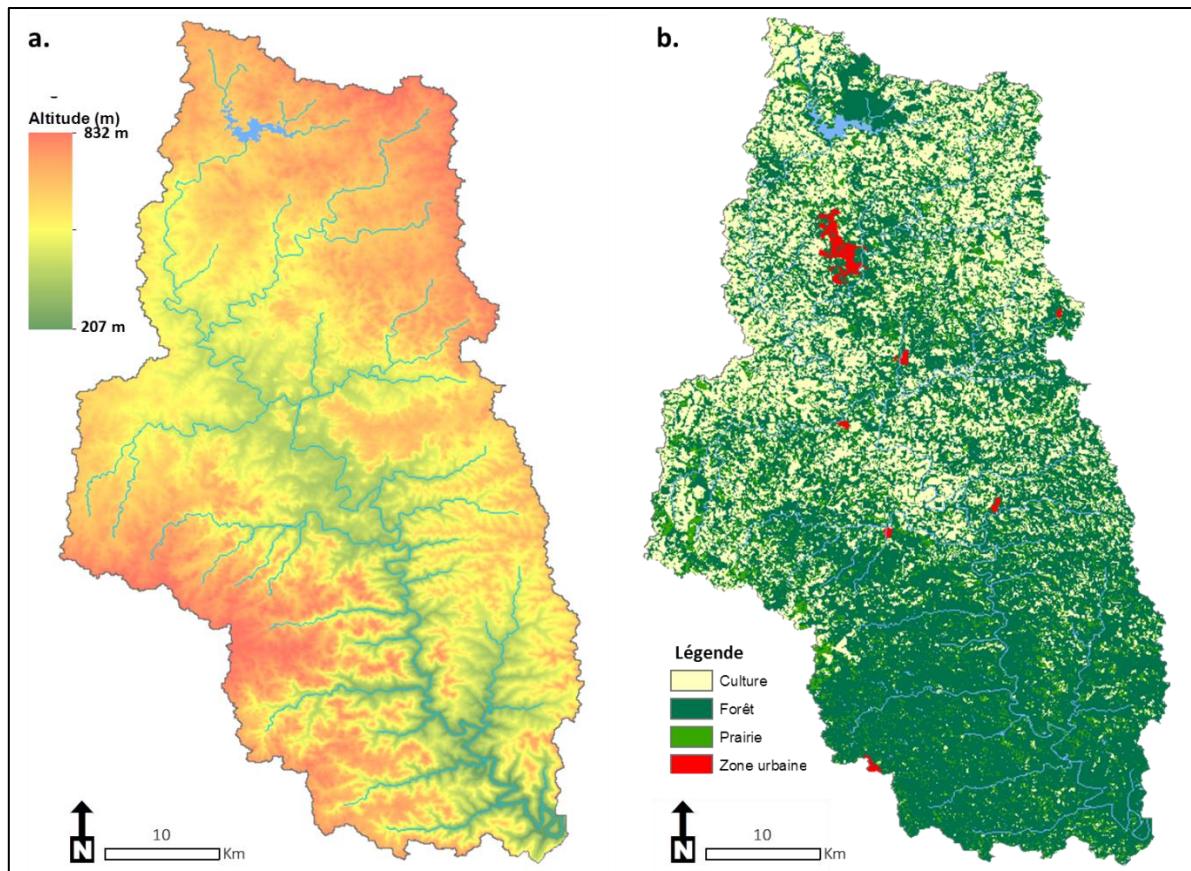


Figure 2.16. Topographie (a) et usage des sols (b) au sein du bassin versant de Guaporé.

Le bassin ne dispose pas de chroniques météorologiques sur de longues durées. Cependant, des données sont disponibles pour la ville de Muçum située à l'exutoire du bassin. Le climat y est subtropical humide et est caractérisé par des étés chauds et humides et des hivers courts et frais.

Le climat est relativement chaud avec une température annuelle moyenne de 19,3°C et des variations saisonnières marquées, avec des températures minimales moyennes de 9,2°C en juillet et maximales de 30,2°C en janvier. Avec un cumul de pluie annuel moyen d'environ 1700 mm, les pluies sont équitablement réparties sur l'ensemble de l'année, avec toutefois des précipitations maximales enregistrées au mois de septembre avec un cumul mensuel de 154 mm (Figure 2.17).

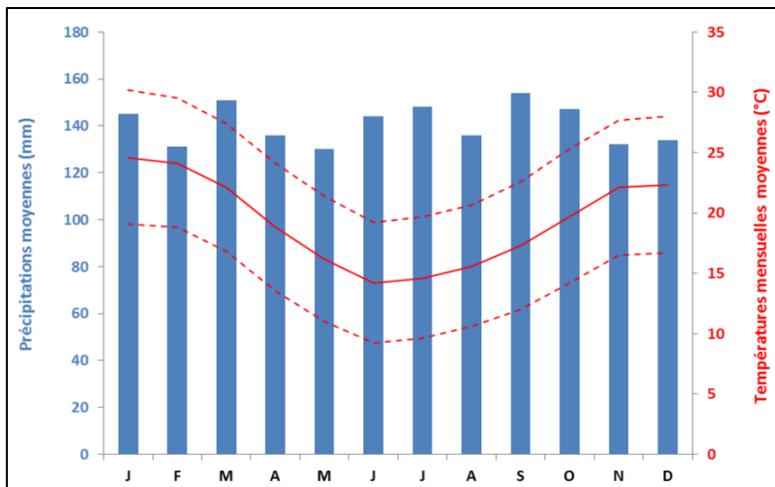


Figure 2.17. Diagramme ombrothermique de la ville de Muçum couvrant la période 1982-2012 (d'après <http://fr.climate-data.org/>).

2.1.2. Géologie et pédologie

Le matériau parental qui sous-tend le bassin de Guaporé est d'origine volcanique. La formation de la Serra Geral (dont les âges s'étendent du Trias supérieur au Crétacé Supérieur (Creer et al., 1965), avec un pic de volcanisme daté entre 133 et 135 Ma (Janasi et al., 2011; Pinto et al., 2011), résulte de l'un des plus importants épisodes volcaniques d'Amérique du Sud. Cette formation s'étend sur toute la partie sud du Brésil (1,2 millions de km²) et elle est constituée de différentes couches de laves dont l'épaisseur peut atteindre 1200 m. Des laves basaltiques alcalines sont observées dans la partie inférieure, alors que la partie supérieure est plutôt caractérisée par des laves basaltiques et andésitiques constituées de rhyolite et de rhyodacite (Baggio et al., 2015).

C'est ainsi que différentes formations affleurent sur le bassin de Guaporé localisé au sud de la formation géologique de la Serra Geral. Le matériau parental qui sous-tend le bassin est essentiellement basaltique. A proximité de la rivière Guaporé, du basalte de la formation basique de Gramado (26%) affleure alors que dans les parties supérieures ce sont des matériaux plus acides (rhyodacite) de la formation de Caxias (72%) qui affleurent. Sur la marge septentrionale du bassin, un affleurement de la formation de Paranapanema est observé (arénite) (2%) (Figure 2.18).

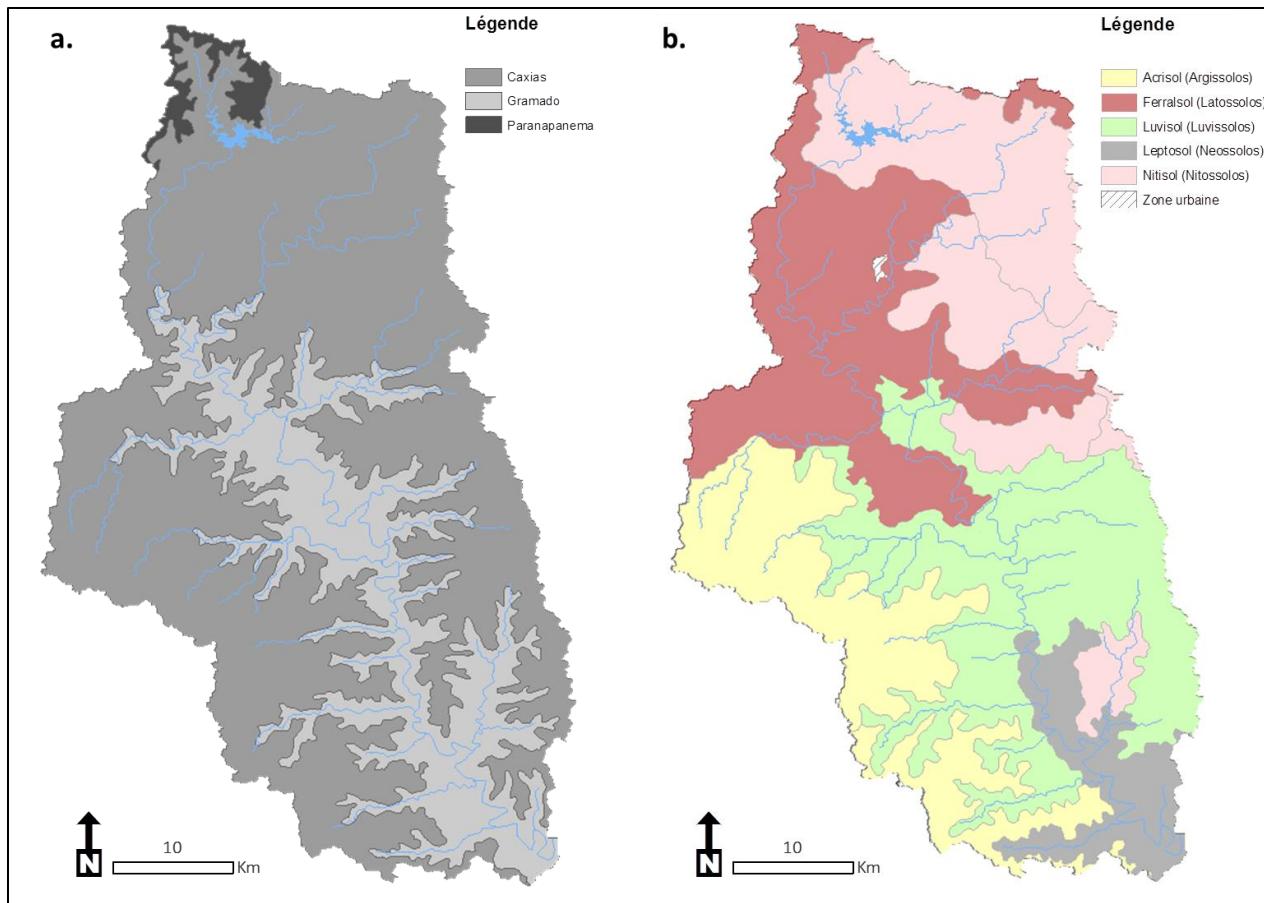


Figure 2.18. Cartes géologique (a) et pédologique (b) du bassin de Guaporé (UFSM).

Les sols développés sur le bassin sont variés, compte tenu des différentes unités géologiques présentes et de la diversité géomorphologique. Cinq types de sols sont rencontrés : Ferralsols (31%), Nitosols (21%), Luvisols (24%), Acrisols (17%) et Leptosols (7%) (Tiecher, 2015). Les Ferralsols et Nitosols sont observés dans la partie amont du bassin, alors que les Leptosols sont observés en aval, où la topographie est plus accentuée. Acrisols et Luvisols sont observés dans la partie centrale du bassin. Ci-dessous sont présentées les principales caractéristiques de ces cinq types de sols (Figure 2.19).

Les **Ferralsols** se développent essentiellement sur des roches basiques sous l'action de pluies abondantes et sous un climat chaud. Fortement lixiviés, ces sols sont appauvris en cations (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+) et en matière organique mais sont riches en kaolinite, fer et aluminium. Caractérisés par de bonnes propriétés physiques (perméabilité...), ces sols sont moins susceptibles d'être érodés que d'autres sols tropicaux, et sont cultivés de manière intensive dans certaines régions du Brésil après application d'engrais du fait de leur faible taux de rétention en azote, en potassium et en phosphore (Food and Agriculture Organization of the United Nations, 2006).

Les **Nitisols** sont des sols profonds, développés sur des roches basaltiques et caractéristiques des milieux tropicaux. Riches en argiles, drainés et fortement lixiviés, ils restent cependant plus fertiles et productifs que la plupart des sols tropicaux. Peu sensibles à l'érosion, les Nitisols sont couramment utilisés pour y développer une agriculture intensive.

Les **Acrisols** sont souvent associés aux Ferralsols. Majoritairement développés sur des roches acides, ces sols riches en argiles sont fortement lixiviés et présentent comme les Ferralsols des propriétés chimiques pauvres, avec peu de nutriments. Peu propices à l'agriculture, ils sont souvent recouverts de forêts, comme dans le bassin de Guaporé, ou travaillés pour une agriculture de subsistance.

Les **Luvisols**, quelque peu acides sont, comme les Acrisols, pauvres en argiles dans l'horizon de surface mais riches en argiles dans l'horizon de subsurface. Fertiles, les Luvisols sont propices à l'agriculture mais souvent développés sur des terrains escarpés. La mise en place de pratiques de lutte contre l'érosion est nécessaires pour que l'agriculture y soit possible.

Enfin, les **Leptosols**, graveleux et pierreux, sont peu profonds, développés sur des roches « dures » et présents sous divers climats. On les retrouve principalement en zone montagneuse ou sur des surfaces tellement érodées que le matériau parental est apparent. Les Leptosols sont ainsi particulièrement sensibles à l'érosion et on y trouve essentiellement des forêts ou des pâturages (Food and Agriculture Organization of the United Nations, 2006; Gardi et al., 2015).

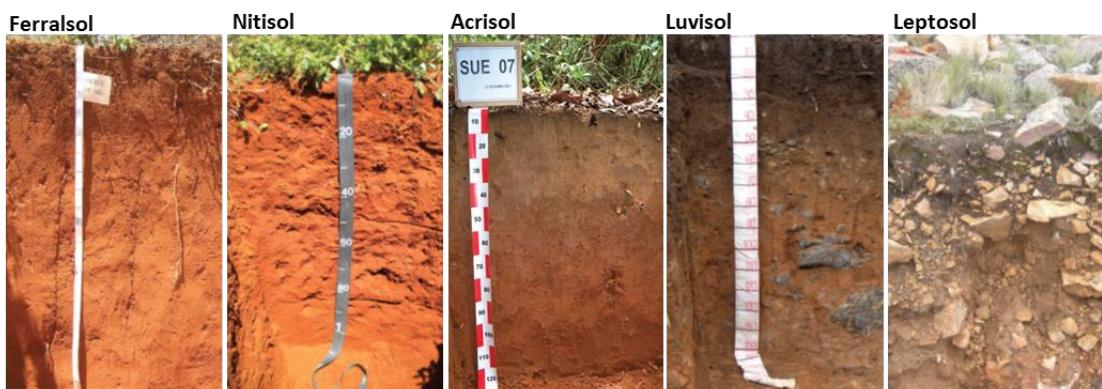


Figure 2.19. Profils des cinq types de sols rencontrés sur le bassin de Guaporé : Ferralsol, Nitisol, Acrisol, Luvisol et Leptosol (Gardi et al., 2015).

L'occupation des sols est hétérogène sur l'ensemble du bassin de Guaporé. Les forêts recouvrent la majeure partie du bassin (58%), le reste étant dédié aux terres arables (31%) ou recouvert par des prairies (10%) (Figure 2.20). La forêt primaire domine les parties les plus pentues du bassin, notamment à proximité directe des rivières. La partie amont du bassin, au relief ondulé, est caractérisée par la culture intensive du soja, du maïs et du blé avec un système de semis-direct. Dans la partie inférieure du bassin, caractérisée par des pentes plus importantes, les exploitations

agricoles sont plus petites et les cultures se concentrent sur la production de tabac et de maïs. On y trouve également des prairies où les agriculteurs pratiquent l'élevage (Figure 2.20).



Figure 2.20. Paysage caractéristique du bassin de Guaporé (a), forêt primaire (b), culture intensive du soja en amont du bassin sur pente douce (c) et culture du tabac dans les parties plus pentues du bassin (d).

2.2 Méthodes d'échantillonnage

Pour étudier les transferts de sédiments et déterminer quelles sont les sources majoritaires de particules, des échantillonnages ont été réalisés entre 2012 et 2014 par l'UFSM (Tiecher, 2015). Une sélection de ces échantillons a été réalisée au cours de cette thèse afin de réaliser un traçage lithologique ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et concentrations élémentaires) des sources de particules.

- Les **sources potentielles** de particules ont été échantillonnées sur l'ensemble du bassin de Guaporé. L'échantillonnage s'est effectué selon les différents usages des sols. L'observation de la mobilisation des sédiments lors d'événements pluvieux sur le bassin de Guaporé a rendu possible l'identification de quatre sources potentielles de particules. Ainsi, des échantillons de sols cultivés (n=48), de prairies (n=13), de routes non-asphaltées (n=9) et de berges (n=14) ont été collectés. Des observations sur le terrain ont montré que les forêts ne constituent pas une source potentielle de sédiments et n'ont donc pas été échantillonnées. L'échantillonnage a été concentré au niveau des zones sensibles à l'érosion et potentiellement connectées aux cours d'eau et de telle sorte que la variabilité lithologique du bassin soit couverte. En effet, ces échantillons sont représentatifs des Ferralsols (n=27), Nitisosols (n=14), Acrisols (n=8), Luvisols (n=28) et Leptosols (n=7).

- Pour étudier les sources et les transferts de particules, des **sédiments** ont été collectés grâce à des trappes en quatre points du bassin localisés en amont et en aval de la rivière Guaporé. Les sédiments collectés à l'amont (n=15) sont utilisés pour rendre compte de la signature géochimique des sols latéritiques (Ferralsol et Nitisol) localisés dans la partie supérieure du bassin, alors que ceux

collectés à l'exutoire ($n=7$) intègrent les apports de particules de l'ensemble du bassin. Sept périodes consécutives de collectes de sédiments (mars 2012 – février 2014) ont été étudiées dans le cadre de cette thèse (Figure 2.21).

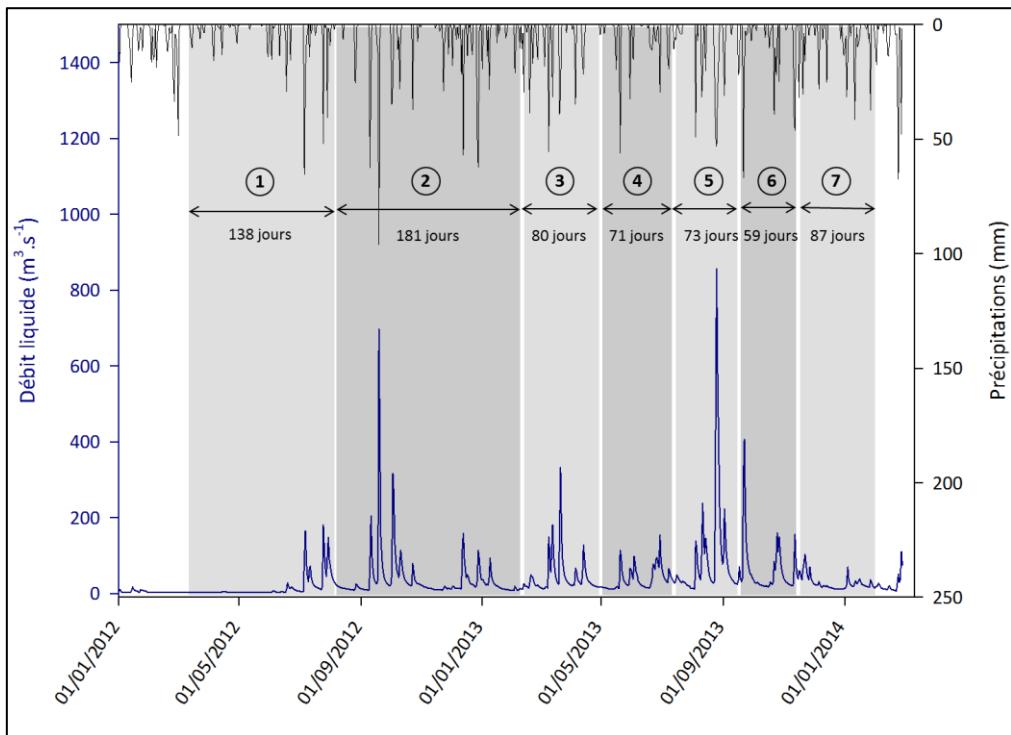


Figure 2.21. Hyéogramme et hydrogramme sur la période étudiée (25 mars 2012 au 12 février 2014). Les différentes périodes et durées de collecte de sédiments correspondantes sont indiquées par des doubles flèches.

Chaque site d'échantillonnage est équipé de deux trappes pour récolter suffisamment de matériel pour les analyses. L'eau circule dans le préleveur et les particules s'y déposent par sédimentation. Le matériel accumulé, récolté approximativement tous les trois mois, enregistre les variations saisonnières et spatiales des apports des différentes sources de particules. Les trappes permettent de collecter la fraction fine des particules ($<63 \mu\text{m}$) considérée comme représentative de l'ensemble des particules transitant dans l'hydrosystème (Figure 2.22).

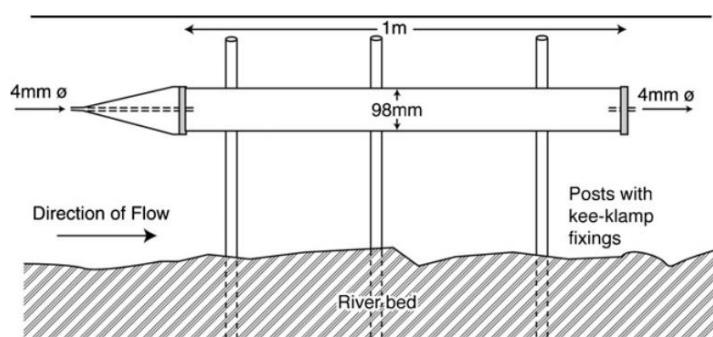


Figure 2.22. Vue en coupe d'un préleveur de particules en suspension (Phillips et al., 2000).

→ Parmi les 309 échantillons de sources potentielles collectées par l'UFSM, 75 échantillons ont été sélectionnés sur l'ensemble du bassin de Guaporé (de manière à couvrir différents usages et types de sol). De même, parmi les 150 échantillons de sédiments collectés de l'amont vers l'aval de la rivière Guaporé (141 échantillons lors d'évènements extrêmes, 96 dans le lit de la rivière et 83 dans des trappes), 22 échantillons collectés dans des trappes situées en amont et à l'exutoire du bassin ont été sélectionnés. L'ensemble de ces échantillons a fait l'objet d'analyses géochimiques (isotopie du strontium et concentrations élémentaires), car il ne restait pas suffisamment de matériel disponible pour réaliser des analyses de radionucléides qui nécessitent au moins quelques grammes de matière.

Récapitulatif de l'ensemble des échantillons collectés sur le bassin de Guaporé et utilisés pour des mesures de géochimie

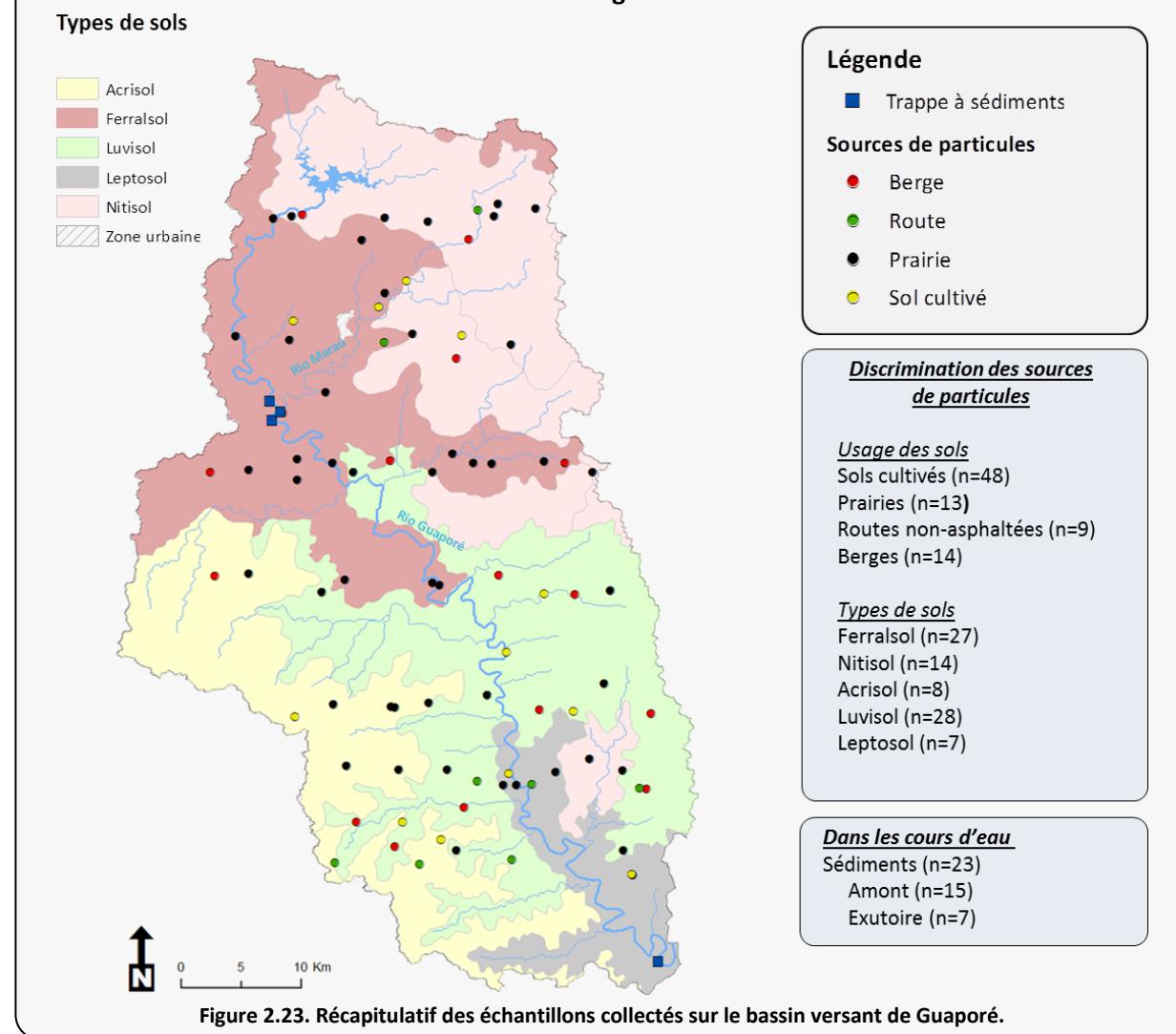


Table 2.3. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin de Guaporé et des analyses réalisées.

Type d'échantillon	Analyses réalisées	Informations complémentaires
Sources de particules	Discrimination selon l'usage des sols Sols cultivés (n=48), prairies (n=13), route non-asphaltées (n=9), berges (n=14) Discrimination selon les types de sols Ferralsol (n=27), Nitisol (n=14), Acrisol (n=8), Luvisol (n=28), Leptosol (n=7)	Géochimie élémentaire Isotopie du Sr (n=84) Fraction <63 µm
Sédiments	Sédiments collectés en amont du bassin (n=15) Sédiments collectés à l'exutoire du bassin (n=7)	Géochimie élémentaire Isotopie du Sr (n=22) Sédiments amont collectés en amont et en aval de la confluence du Rio Maraú avec le Rio Guaporé et sur le Rio Maraú.

3. Géochimie des éléments majeurs et traces et rapport isotopique du strontium

3.1 Géochimie des éléments majeurs et traces

Différentes analyses géochimiques (mesures de concentrations élémentaires et des ratios isotopiques) ont été réalisées au cours de cette thèse. Ces deux types d'analyses reposent sur l'utilisation de la spectrométrie de masse par torche à plasma (ICP-MS). L'ICP-QMS, où le spectromètre est un quadrupole, permet d'estimer successivement les concentrations élémentaires des métaux et métalloïdes (Beauchemin, 2006; Pokrovsky et al., 2012). La spectrométrie de masse avec un secteur magnétique pour la séparation des masses et une multi collection du signal pour surseoir aux variations du signal lors de la mesure (MC-ICP-MS) permet la détermination précise et simultanée de ratios isotopiques pour une gamme de masses donnée (Becker, 2005; Yang, 2009).

Ces analyses ont été mises en œuvre à partir de solutions (matrice HNO_3 0,5N) préparées par une minéralisation (ou digestion) totales des échantillons initialement sous forme solide. Cette étape, longue et contraignante, est absolument nécessaire. Une analyse sur solide (par ablation laser) aurait été inadaptée à notre étude (hétérogénéité de la poudre, calibrations difficiles).

3.1.1. Minéralisation des échantillons

L'ensemble des minéralisations a été réalisé en salle propre et en utilisant des réactifs chimiques de qualité ultrapure (Normatom grade, VWR, France pour HNO_3 , et « Trace Metal Grade », Fisher Chemical pour HF, HClO_4 et HCl) et une eau ultrapure ($> 18 \text{ M}\Omega\cdot\text{cm}^{-1}$, Elga). La minéralisation est menée dans des flacons (parfois improprement nommés « bombes ») en Téflon Savillex® de 60 mL fermés et chauffés sur un bloc Digiprep® (24 positions) équipé d'une commande permettant de régler la vitesse de montée en température, la température et la durée du chauffage. Les flacons Savillex® utilisés subissent un protocole de lavage à l'acide nitrique concentré à chaud entre 2 séries.

3.1.1.a. Echantillons du Louroux (France)

Sols, berges, sédiments de la carotte et de l'étang

Pour chaque série, 22 échantillons ont été minéralisés, un blanc chimique et un standard certifié (SL1, AIEA) ont été inclus. Le protocole retenu consiste à attaquer 100 mg de sédiments par 3 mL de HF (30%) et 3 mL de HClO_4 (65-71%) à reflux à 150°C pendant 3 h dans des bombes en Téflon. Le mélange est ensuite évaporé à 150°C. Le résidu obtenu est ensuite attaqué par 1,25 mL de HNO_3 (67%) et 3,75 mL de HCl (37%) à reflux à 110°C pendant 2 h. Le mélange est évaporé à sec à 100°C

puis repris successivement trois fois dans 1 mL de HNO₃ (67%) puis évaporé avant d'être dilué dans 50 mL d'eau ultra pure.

Matières en suspension collectées en crue

Les filtres (séchés, pesés) sont coupés en deux à l'aide de ciseaux en céramique. Une moitié de filtre (entre 50 et 110 mg de matière) est ensuite attaquée dans des bombes en Téflon suivant le même protocole que celui décrit ci-dessus. Comme pour les sols, un standard certifié (SL1, AIEA) et un filtre vierge sont analysés pour chaque série de digestion.

Engrais

100 mg d'engrais solides broyés (N, N.P.K, P.K) ont été dissous dans 5 mL de HNO₃ 5N pour extraire une quantité maximale de phosphore et réduire le risque de précipitation d'éléments insolubles lors des étapes suivantes. La solution est centrifugée, le surnageant extrait et conservé au frais. Le résidu est à nouveau dissous deux fois suivant la même procédure, puis attaqué par un mélange de 1,5 mL de HF (30%) et 1,5 mL de HClO₄ (65-71%) dans des bombes Téflon à reflux à 180°C pendant deux jours. La solution est ensuite évaporée à sec à 150°C. Les surnageants préalablement extraits et conservés sont ajoutés au résidu et évaporés à sec à 150°C. L'échantillon est finalement repris trois fois dans 1 mL de HNO₃ (67%) puis dilué dans 50 mL d'eau ultra pure.

Roches calcaires

125 mg de roche calcaire broyée ont été dissous dans 10 mL de HNO₃ 0,5 N. La solution est centrifugée, la solution surnageante est extraite et conservée au frais. Le résidu est à nouveau dissous deux fois suivant la même procédure, puis attaqué par un mélange de 0,25 mL de HNO₃ (67%) et de 1,75 mL de HCl (37%) dans des bombes en Téflon à reflux à 110°C pendant 1 h. La solution est évaporée à sec à 110°C. Le résidu est ensuite attaqué par un mélange de 0,5 mL de HF (30%) et 0,5 mL de HClO₄ (65-71%) à reflux à 150°C pendant 12h. La solution est ensuite évaporée à sec et, reprise dans 0,5 mL de HNO₃ (67%), évaporée à 110°C et finalement diluée dans 50 mL d'eau ultra pure.

Roches silicatées (argiles à silex)

100 mg de roche silicatée broyée et préalablement rincée à HNO₃ (3N) puis à l'eau ultra pure ont été dissous suivant le même protocole que les échantillons de sols, berges et sédiments préalablement décrit.

Extractions sélectives

Des extractions sélectives ont été réalisées sur une sélection de sédiments de la carotte (n=8). Le protocole d'extraction est adapté à partir de celui développé par le BCR (Community Bureau Reference) (Rauret et al., 1999). Pour extraire la fraction « échangeable/ liée aux carbonatés », 500

mg de sédiments ont été pesés et 40 mL d'acide acétique (CH_3COOH , 0,11 mol/L) ajoutés à chaque échantillon dans un tube à centrifuger. L'ensemble des échantillons est ensuite agité pendant 16 h à température ambiante. La solution est extraite après centrifugation (4000 tr/min pendant 20 minutes) et conservée à 4°C. Pour évaluer la reproductibilité des extractions, des triplicats sont réalisés pour chaque échantillon.

3.1.1.b. Echantillons de Guaporé (Brésil)

Le protocole mis en place pour minéraliser les échantillons brésiliens a été adapté à partir de celui utilisé pour les sédiments du Louroux. En effet, les échantillons du Brésil présentent des caractéristiques minéralogiques différentes. Prélevés sur des sols latéritiques, les échantillons sont notamment chargés en oxydes de fer. Les quantités de réactifs utilisés et les temps de reflux opérés ont donc été optimisés lors d'essais préliminaires.

100 mg de sols ou de sédiments ont été pesés puis attaqués par 5 mL de HF (30%) et 3 mL de HClO_4 (65-71%) à reflux à 100°C pendant 2 h puis à 150°C pendant 15 h, le mélange a ensuite été évaporé à 150°C. Comme pour les échantillons du bassin du Louroux, le résidu est ensuite attaqué à l'eau régale, puis évaporé et repris trois fois dans HNO_3 (67%) avant d'être dilué dans 50 mL d'eau ultra pure. Un blanc de réactifs et un standard certifié (SL1, AEIA) sont inclus dans chaque série de minéralisation.

3.1.2. Mesure de concentrations élémentaires par ICP-QMS

3.1.2.a. Principe de fonctionnement de l'ICP-QMS

Les concentrations élémentaires ont été déterminées par ICP-QMS (Inductively Coupled Plasma – Quadrupolar Mass Spectrometry) (Figure 2.24) au LSCE (X-Series, CCT II⁺ Thermoelectron) après minéralisation des échantillons (sols, sédiments, et MES) et extraction sélective. Toutes les analyses sont réalisées en milieu nitrique dilué (HNO_3 0,5N). L'analyse des échantillons suit plusieurs étapes : l'introduction et la nébulisation de l'échantillon, son ionisation, sa séparation en masse et en charge et, enfin, sa détection.

La solution est introduite par une pompe péristaltique vers le nébuliseur en quartz (1 mL·min⁻¹) où l'échantillon est pulvérisé sous forme de particules extrêmement fines dans la chambre à nébulisation (à bille d'impact) où les gouttelettes les plus grosses sont évacuées. A la sortie du nébuliseur, l'aérosol formé par l'injection d'argon (~0,8 L·mn⁻¹) est dirigé vers la torche à plasma d'argon à très haute température (entre 6000 et 10 000°C). Ce plasma d'argon est généré à haute fréquence par un champ magnétique et induit par une décharge d'une bobine Tesla. L'échantillon y est désolvaté, vaporisé, atomisé et la plupart des éléments sont alors ionisés. Le plasma est

« nourri » par un flux d'argon ($\sim 1,3 \text{ L.mn}^{-1}$) et poussé hors de la torche par un troisième flux d'argon (« cool », $\sim 16 \text{ L.mn}^{-1}$). Un système de vide différentiel accélère ensuite les ions du plasma au travers d'une interface composée de deux cônes vers un ensemble de lentilles électrostatiques. Ces lentilles refocalisent les ions sur l'axe d'entrée du spectromètre de masse, seuls les ions chargés positivement sont transportés vers le quadripôle. Le spectromètre de masse quadripolaire est constitué de deux paires de barreaux de charges opposées. Un champ électrique est appliqué en alternance entre deux des barreaux opposés du quadripôle et sur chaque couple de barreau. Le champ tournant crée entraîne les ions dans une trajectoire de spirales emboitées, la paire de barreaux positive joue le rôle de filtre passe-haut en déviant les ions légers, la paire négative joue le rôle de filtre passe-bas en déviant les ions trop lourds. Pour une valeur donnée du champ électrique, un ion est séparé selon son rapport masse sur charge. Celui-ci reste dans l'axe de l'analyseur et vient percuter le détecteur. Toutes les valeurs de champ électrique sont successivement balayées pour présenter les ions caractérisés par des rapports masse/charge différents un à un au détecteur. Un détecteur multiplicateur d'ions à dynodes discrètes enregistre ensuite le nombre d'ions pour un rapport masse/charge donné ayant traversé le spectromètre. En principe, si l'ionisation dans le plasma était parfaite, un rapport masse/charge donné correspondrait uniquement à un seul isotope sous forme de cation monovalent. Les données sont transférées par une interface informatique qui convertit les résultats obtenus en nombre de coups pour chaque rapport masse/charge en concentrations grâce aux abondances naturelles des différents isotopes et à l'utilisation de calibrations externes et internes.

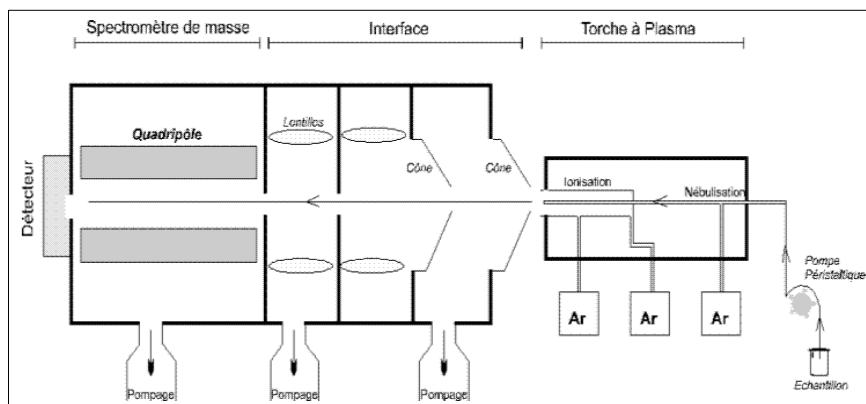


Figure 2.24. Schéma de principe de l'ICP-MS (d'après <http://iramis.cea.fr>)

3.1.2.b. Interférences rencontrées

Pour chaque masse étudiée, il est possible que des éléments, autres que l'élément chimique ciblé mais ayant le même rapport masse/charge, engendrent des interférences. Ces interférences dites isobariques sont essentiellement dues à l'existence d'isotopes stables d'éléments ayant la même masse mais aussi à la formation d'ions polyatomiques (oxydes et/ou hydroxydes, recombinaisons

avec l'Ar ou avec le carbone, l'hydrogène et l'oxygène présents dans le plasma) et à la présence d'ions ou molécules ionisées et doublement chargés. Ci-dessous, quelques exemples d'interférences polyatomiques et isobariques couramment rencontrées :

- L'ion polyatomique $^{40}\text{Ar}^{16}\text{O}^+$ qui a le même rapport masse sur charge que $^{56}\text{Fe}^+$,
- L'ion polyatomique $^{40}\text{Ar}^{35}\text{Cl}^+$ qui a le même rapport masse sur charge que $^{75}\text{As}^+$,
- L'ion polyatomique $^{35}\text{Cl}^{16}\text{O}^+$ qui a le même rapport masse sur charge que $^{51}\text{V}^+$,
- L'ion doublement chargé $^{138}\text{Ba}^{2+}$ qui a le même rapport masse sur charge que $^{69}\text{Ga}^+$.

Ce type d'interférence est essentiellement rencontré pour les masses comprises entre 40 et 80, mais aussi pour certains éléments majeurs. Afin de limiter ces interférences, plusieurs techniques ont été utilisées :

- Choisir l'isotope de l'élément considéré pour lequel ces interférences sont très minimes (recombinaisons peu probables d'isotopes rares par exemple), tout en tenant compte de l'abondance de l'isotope choisi. En d'autres termes, il s'agit de choisir le meilleur rapport signal/bruit.
- Mesurer les éléments en utilisant le mode CCT (Collision Cell Technology) de l'ICP-QMS pour limiter les interférences en les détruisant par collision avec un gaz. Cette solution consiste à introduire un gaz (mélange H₂ (7%) et He (93%)) dans une cellule localisée entre les lentilles et le quadripôle. La probabilité de collision des ions polyatomiques ou doublement chargés avec ce gaz est augmentée et les interférences réduites, cependant le signal de l'isotope est diminué mais le rapport signal/bruit amélioré.

3.1.2.c. Préparation des échantillons pour analyse

Pour couvrir l'ensemble de la gamme d'éléments visés (de l'aluminium au plomb, une trentaine d'éléments), chaque échantillon est analysé trois fois : en mode « normal» pour (1) analyses des éléments majeurs et (2) des éléments traces, et (3) en mode CCT pour limiter les interférences. Selon leur niveau de concentration, les échantillons sont dilués en milieu nitrique (HNO₃ 0,5N) pour se trouver dans la gamme de la droite de calibration réalisée selon la matrice étudiée. Un blanc analytique est systématiquement analysé au début d'une série d'analyses pour évaluer le bruit de fond de l'appareil. De même un blanc chimique ayant subi les mêmes étapes que les échantillons analysés (filtration, digestion, stockage, préparation avant analyse...) est systématiquement analysé. Les concentrations élémentaires du blanc chimique sont soustraites aux valeurs obtenues dans chaque échantillon.

3.1.2.d. Evaluation de la qualité des analyses

Pour valider les résultats différents moyens sont mis en œuvre :

- Une calibration est réalisée en laboratoire à l'aide de solutions commerciales mono et multi-élémentaires dont les concentrations sont certifiées.
- Comme expliqué précédemment, des blancs analytiques sont régulièrement réalisés pour vérifier la « propreté » de l'appareil et pour gommer l'effet mémoire en cas de contamination. S'ajoutent également les blancs chimiques témoins des conditions de traitement des échantillons en amont de leur analyse.
- Des standards internationaux certifiés et caractéristiques du milieu naturel étudié sont analysés. Le Nist 1640a (National Institute of Standards & Technology) est utilisé pour valider la courbe de calibration réalisée, les concentrations des éléments qui le constituent sont certifiées avec un intervalle de confiance de 95%. Le SL-1 (International Atomic Energy Agency), un sédiment de lac dont les valeurs sont certifiées avec un intervalle de confiance de 95%, est quant à lui utilisé pour valider les concentrations élémentaires obtenues après minéralisation des sédiments. Ces standards sont analysés plusieurs fois au cours de chaque séquence. Pour l'ensemble des analyses réalisées, les valeurs du Nist 1640a se trouvent dans un intervalle de $\pm 10\%$ (à l'exception de As ($\pm 21\%$)), tout comme celles du SL-1 (à l'exception de certains éléments tels que Na ($\pm 12\%$), Ca ($\pm 12\%$), As ($\pm 29\%$) et Cd ($\pm 12\%$)) et restent dans l'intervalle de confiance. La reproductibilité et la répétabilité des mesures de ces deux standards sont ainsi vérifiées.

3.1.2.e. Dérive machine et étalons internes

Des étalons internes, des éléments peu abondants dans le milieu naturel et n'interférant pas avec les échantillons analysés sont utilisés pour corriger la dérive de la machine. Autant que possible, les éléments choisis comme étalons internes ont une masse proche de celles des éléments analysés. Le germanium (^{72}Ge , ^{73}Ge , ^{74}Ge) est utilisé pour les analyses en mode majeur. Le rhodium (^{103}Rh) et l'indium (^{115}In) sont quant à eux utilisés en modes trace et CCT et le rhénium (^{185}Re) est uniquement utilisé en mode CCT. Le nombre de coups obtenu dans le tout premier échantillon analysé au cours de la série (un blanc analytique le plus souvent) sert de référence. Le nombre de coups sur ces mêmes éléments est mesuré pour chaque solution analysée. Le logiciel de l'ICP-MS se base sur le nombre de coups mesurés dans l'échantillon de référence et effectue alors une correction du nombre de coups pour chaque élément de chaque échantillon. La dérive naturelle de la machine au

cours du temps est alors corrigée. Néanmoins, au-delà d'une dérive de 20%, une nouvelle calibration aurait été réalisée.

Pour l'ensemble des analyses, chaque élément est considéré comme détectable si le nombre de coups obtenus dans l'échantillon est au moins deux fois supérieur au nombre de coups obtenus dans le blanc analytique et comme quantifiable si le nombre de coups obtenus dans l'échantillon est au moins deux fois supérieur au nombre de coups obtenus dans le blanc chimique.

3.2 Géochimie isotopique du strontium

La mesure précise des rapports isotopiques du strontium nécessite une séparation chimique préalable pour limiter les interférences lors de leur mesure sur MC-ICP-MS. En effet, bien que le MC-ICP-MS ait une bien meilleure résolution que l'ICP-MS grâce à son secteur magnétique, qui permet d'éliminer la plupart des interférences polyatomiques, il reste quand même difficile de séparer deux isotopes de masse très proches. Dans notre cas, la séparation chimique a pour but d'isoler le strontium en éliminant le rubidium 87 (masse de 86,9092 u) qui présente une masse très proche de celle de l'isotope 87 du strontium (masse de 87,9089 u).

3.2.1. Séparation chimique du strontium

L'isolation du strontium présent dans les échantillons est réalisée sur résine cationique et en milieu nitrique. Pour réaliser la séparation du strontium, il est nécessaire de connaître au préalable sa concentration au sein de l'échantillon de manière à pouvoir ajuster la prise d'essai.

La résine utilisée (Sr Spec, 100-150µm, Triskem International®), à lavage unique, est au préalable lavée avec de 25 mL de HCl 1N puis 25 mL de HCl 3N pour ôter toute trace possible d'éléments traces, l'opération est répétée trois fois. La résine est ensuite rincée à l'eau ultra-pure jusqu'à atteindre un pH compris proche de 7. Les micro-colonnes en polyéthylène utilisées pour la séparation du strontium sont rincées avec HNO₃ 3N puis à l'eau ultra-pure.

La résine est chargée sur les micro-colonnes (\approx 700 µL de résine), rincée par l'ajout successif de 2 mL de HNO₃ 3N, de 2 mL d'eau ultra-pure (Milli-Q) et de 1 mL de HNO₃ 3N. L'équivalent de 200 ng de strontium, dilué dans 4 mL de HNO₃ 3N, est introduit dans les micro-colonnes. La fixation du strontium et l'élution des éléments autres sont réalisées par l'ajout de 3 mL de HNO₃ 3N. Le strontium est finalement élué par 2,5mL d'eau ultra-pure.

Pour contrôler l'efficacité de la séparation chimique, les concentrations en strontium, en rubidium et en calcium dans la fraction éluée sont déterminées par ICP-QMS et comparées à celles avant élution. Pour l'ensemble des analyses effectuées, le rendement en strontium est en moyenne de 86%, et plus de 90% de calcium et du rubidium initialement présents sont éliminés.

3.2.2. Mesures isotopiques par MC-ICP-MS

3.2.2.a. Principe de fonctionnement du MC-ICP-MS

Les rapports isotopiques du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) ont été mesurés par MC-ICP-MS (Thermo Finnigan Neptune-Plus) (Figure 2.25) au LSCE. Les analyses ont été réalisées en milieu nitrique dilué (HNO_3 0,5N) après séparation chimique du strontium. Le MC-ICP-MS est équipé :

- D'une source plasma d'argon à couplage inductif et d'une interface constituée de deux cônes, comme les ICP-MS,
- D'une lentille d'extraction suivie d'un champ électrostatique qui accélère et focalise le faisceau d'ions formés,
- D'un deuxième système de focalisation du faisceau, cette fois-ci en masse grâce à un secteur magnétique qui sépare les ions selon le rapport « masse sur charge » des isotopes,
- D'un bloc de collecteurs, constitués de neuf cages de Faraday, qui permettent la mesure simultanée de l'abondance relative de plusieurs isotopes.

L'échantillon est introduit sous forme liquide par une pompe péristaltique vers le nébuliseur. L'aérosol formé est entraîné vers la torche plasma, où il est vaporisé et ionisé. Les ions formés traversent l'interface constituée de deux cônes et sont véhiculés grâce à un système de vide différentiel vers la fente d'entrée de l'analyseur. Une double focalisation permet de réduire la dispersion énergétique des ions à la sortie du plasma. Les ions traversent un champ électrostatique puis un champ électromagnétique. Le champ électrostatique corrige d'abord la dispersion en énergie des ions puis le champ électromagnétique optimise la trajectoire des ions jusqu'au détecteur et les sépare selon leur rapport masse sur charge avant d'être ensuite dirigés vers le détecteur où ils percutent un système constitué de neuf cages de Faraday. Ces cages jouent le rôle de collecteurs, permettant ainsi l'analyse simultanée de plusieurs isotopes. Les rapports isotopiques sont alors déterminés en comparant les tensions mesurées sur chacune des différentes cages en fonction de l'abondance isotopique des ions mesurés, dans notre cas le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$.

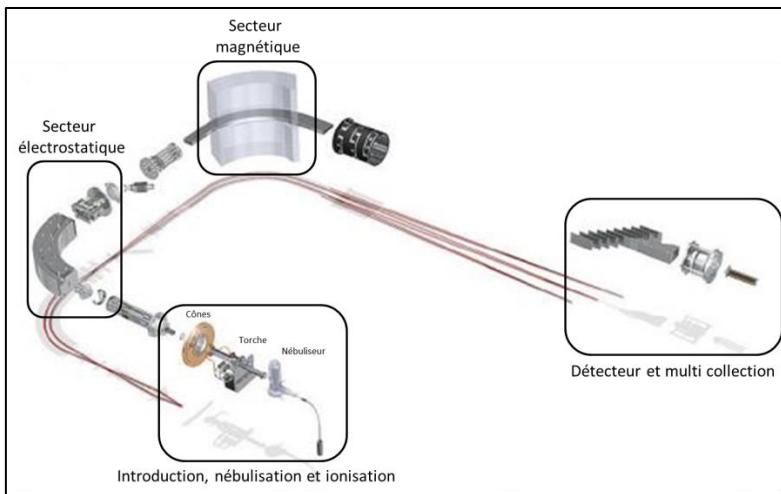


Figure 2.25. Schéma de principe du MC-ICP-MS (d'après <http://lmv.univ-bpclermont.fr/wp-content/uploads/2015/02/mc-icpms-neptune1.png>)

La procédure a consisté à analyser un standard isotopique de référence pour le strontium (NBS 987) tous les trois ou quatre échantillons pour contrôler et corriger la dérive instrumentale au cours de la séquence d'analyse. Entre chaque analyse, un blanc analytique et un rinçage sont réalisés. L'ensemble des analyses a été réalisé pour une sensibilité comprise entre 16 et 20V, avec des concentrations en strontium comprises entre 15 et 30ppb en milieu nitrique (HNO_3 0,5N)

3.2.2.b. Evaluation de la qualité des analyses

Fractionnement de masse

Sur MC-ICP-MS, le fractionnement de masse se déroule au niveau de l'interface des deux cônes, après l'ionisation de l'échantillon. Ce fractionnement, indépendant du temps, résulte de la migration des isotopes les plus légers vers la périphérie du plasma lors de la transmission du faisceau d'ions au travers des cônes. Les valeurs de ratios isotopiques bruts obtenus doivent être corrigées de ce fractionnement. Pour cela, un rapport d'isotopes stables dont la valeur est connue et constante dans tous les échantillons est mesuré. Dans le cas du strontium, il s'agit du rapport $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}$ (égal à 0,1194). Ce rapport est utilisé pour corriger le fractionnement de masse. Les corrections se font de manière automatique par le logiciel la machine qui délivre des données directement exploitables.

Standard de référence

L'analyse répétée des standards lors d'une séquence de mesures permet de contrôler la stabilité et la justesse des compositions isotopiques mesurées par l'appareil. Le standard utilisé pour la détermination des rapports isotopiques du strontium est le NBS 987. Celui-ci a été en moyenne mesuré tous les trois ou quatre échantillons pour surveiller une éventuelle dérive instrumentale de la machine. Au total, le NBS 987 a été analysé 171 fois au cours des travaux de cette thèse. La valeur

moyenne obtenue est de $0,710291 \pm 12.10^{-6}$ (2σ) et l'ensemble des rapports mesurés se situent dans la gamme d'incertitude de la valeur de référence du NBS 987 (Figure 2.26).

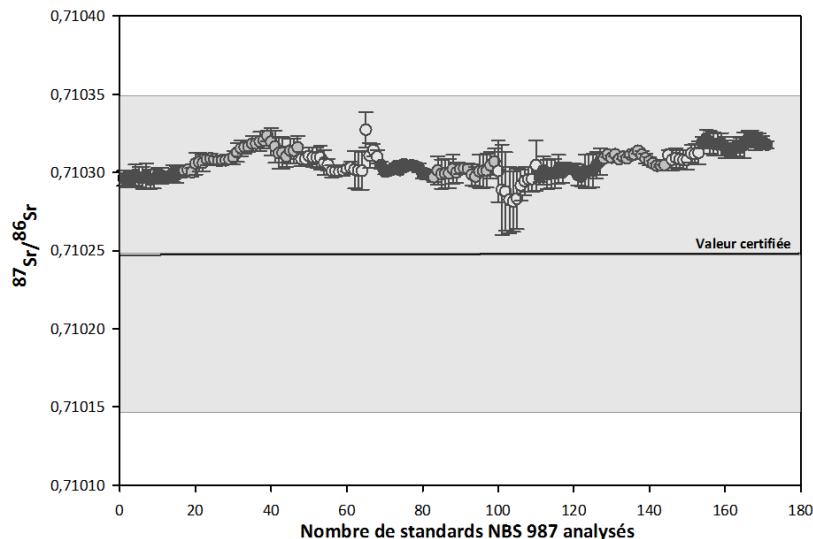


Figure 2.26. Valeurs et incertitude (2σ) des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesurés au cours de douze séries d'analyses pour le standard de référence (NBS 987). La valeur de référence du standard NBS 987 ainsi que son incertitude (2σ) sont représentées par un trait noir horizontal et des zones grisées.

Deux autres standards, caractéristiques de systèmes carbonatés et bien connus au laboratoire ont aussi été analysés de manière routinière (entre trois et quatre fois par séquence de mesures) : l'apatite Durango et le JCt-1. Au total, 42 analyses de Durango apatite et 35 analyses JCt-1 ont été réalisées. La valeur moyenne du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ de l'apatite Durango obtenu est de $0,706339 \pm 11.10^{-6}$ (2σ), celle du JCt-1 est de $0,709205 \pm 11.10^{-6}$ (2σ). L'ensemble des valeurs obtenues sont proches de celles de la littérature (0,706327 et 0,709150 pour l'apatite Durango et le JCt-1, respectivement) (Horstwood, 2008 ; Ohno and Hirata, 2006) et stables, les erreurs (2σ) sont quant à elles relativement faibles (Figure 2.27).

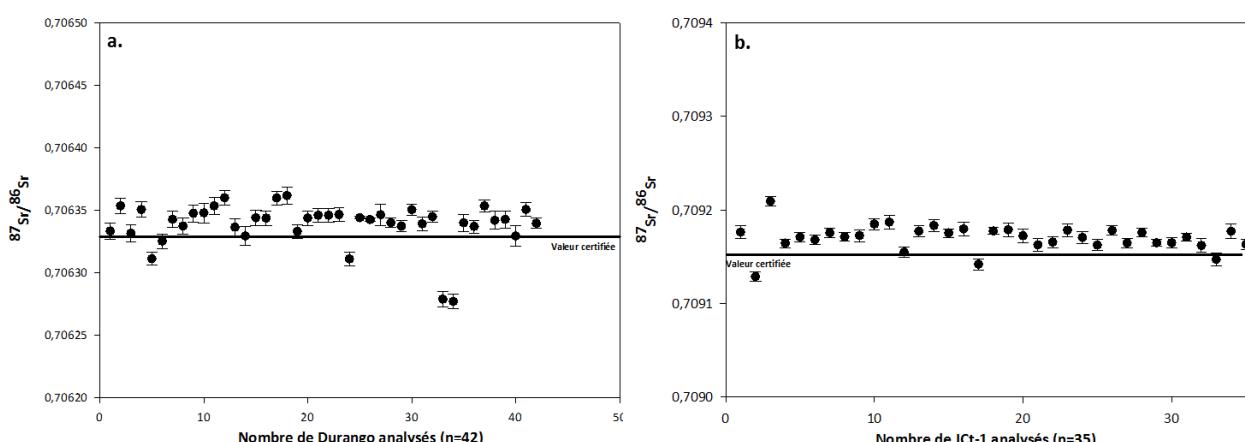


Figure 2.27. Valeurs et incertitude (2σ) des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesurés au cours de neuf séries d'analyses pour deux standards des systèmes carbonatés : Durango apatite (a) et JCt-1 (b). La valeur de référence de chaque standard est représentée par un trait noir horizontal.

Sample bracketing

La méthode du « sample-bracketing » (Albarède et al., 2003; Weis et al., 2006) est couramment utilisée pour corriger la dérive instrumentale qui peut s'opérer lors d'une séquence d'analyses mais aussi pour pouvoir inter-comparer les résultats obtenus d'une séquence à l'autre ou d'un laboratoire à un autre. Cette technique consiste à analyser alternativement un standard et un échantillon. Le rapport isotopique de l'échantillon est alors normalisé en utilisant la moyenne pondérée des standards qui encadrent l'échantillon et la valeur du rapport isotopique de ce standard publiée dans la littérature. Ainsi, les valeurs des rapports isotopiques des échantillons analysés ont systématiquement été corrigées de la différence entre la moyenne pondérée des rapports isotopiques mesurées dans les deux standards encadrant l'échantillon et la valeur de référence de ce standard.

$$\left(\frac{^{87}Sr}{^{86}Sr}\right)_{Ech\ corrigé} = \left(\frac{^{87}Sr}{^{86}Sr}\right)_{Ech\ avant\ corr} \times \left[\frac{\left(\frac{^{87}Sr}{^{86}Sr}\right)_{NBS\ 987\ certifié}}{\left(\frac{^{87}Sr}{^{86}Sr}\right)_{Moy\ pondérée\ des\ NBS\ analysés\ avant-après\ l'échantillon}} \right]$$

Reproductibilité

Au cours d'une séquence d'analyse, quelques échantillons ont été mesurés deux fois pour estimer la reproductibilité des mesures. Les différences observées entre les deux rapports isotopiques mesurés sont inférieures ou égales aux erreurs analytiques (2σ) du MC-ICP-MS. Les mesures réalisées ont donc été jugées reproductibles.

4. Mesure d'activités par spectrométrie gamma

En plus des analyses géochimiques par ICP-MS et MC-ICP-MS, des mesures d'activités (^{137}Cs , ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) ont été réalisées par spectrométrie gamma. Il s'agit d'une méthode physique directe et non destructive ne nécessitant pas de préparation chimique préalable, sauf si les quantités de matières à analyser sont faibles (*i.e.* inférieures à 1 gramme, flocculation nécessaire).

4.1 Principe de la spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma est une technique de mesure nucléaire qui permet d'identifier des éléments radioactifs par la mesure de l'énergie des rayonnements gamma qu'ils émettent.

Le rayonnement gamma est un rayonnement électromagnétique produit par des atomes possédant un trop-plein d'énergie. Dans la majorité des cas, l'émission d'un photon gamma accompagne une désintégration alpha ou bêta et correspond à un réarrangement des nucléons au sein du noyau. Chaque particule gamma émise est caractérisée par une énergie d'émission spécifique et est donc caractéristique d'un radio-isotope donné. Ainsi, en détectant les particules gamma émises dans un échantillon et en mesurant leur énergie, il est possible de connaître l'activité d'un radio-isotope donné.

Au cours de cette thèse les activités en ^{137}Cs , ^7Be et ^{210}Pb ont été respectivement mesurées à 661,7 keV, 477,6 keV et 46,5 keV. L'excès de plomb ($^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) est déterminé en soustrayant l'activité supportée (déterminée en utilisant deux éléments fils de la chaîne de désintégration de ^{238}U : ^{214}Pb mesuré à 295,2 et 609,3 keV et ^{214}Bi mesuré à 609,3 keV) de l'activité totale du ^{210}Pb (Evrard et al., 2010; Le Cloarec et al., 2011). Les activités ont été mesurées pendant un à deux jours et corrigées de la décroissance radioactive qui se produit entre la date de prélèvement et la date d'analyse. Du fait de son temps de demi-vie relativement court, les activités en ^7Be ($t_{1/2} = 53$ jours) des échantillons ont été rapidement mesurées après prélèvement. Le bruit de fond a systématiquement été soustrait du nombre de coups enregistrés. Les incertitudes analytiques moyennes calculées sont de 10% (1σ) pour ^{137}Cs et, ^{210}Pb et de 20% (1σ) pour ^7Be .

4.2 Fonctionnement du détecteur et comptage en spectrométrie gamma

Les mesures d'activité ont été réalisées au LSCE, sur des détecteurs de type GeHP (Germanium Hyper Pur). Chaque spectromètre est composé (Figure 2.28) :

- D'un détecteur protégé des rayonnements cosmiques extérieurs par un château de plomb archéologique et un blindage en cuivre. Ainsi, la majorité des rayonnements extérieurs est stoppée et le bruit de fond réduit. Le cristal en germanium sur lequel est positionné l'échantillon est maintenu à basse température par un cryostat rempli d'azote liquide.
- D'un système de traitement électronique du signal. Les photons gamma émis par l'échantillon entrent en collision avec le détecteur gamma et le signal émis est quantifié en signaux électriques. Ces signaux sont traités par un pré-amplificateur puis un amplificateur sous haute tension. Les impulsions générées sont converties en un signal analogique linéaire puis codées en un signal numérique par l'analyseur et enfin stockées. L'analyseur fait alors le lien avec l'ordinateur, où les spectres obtenus sont visualisés et débouillés (Tessier, 2003).

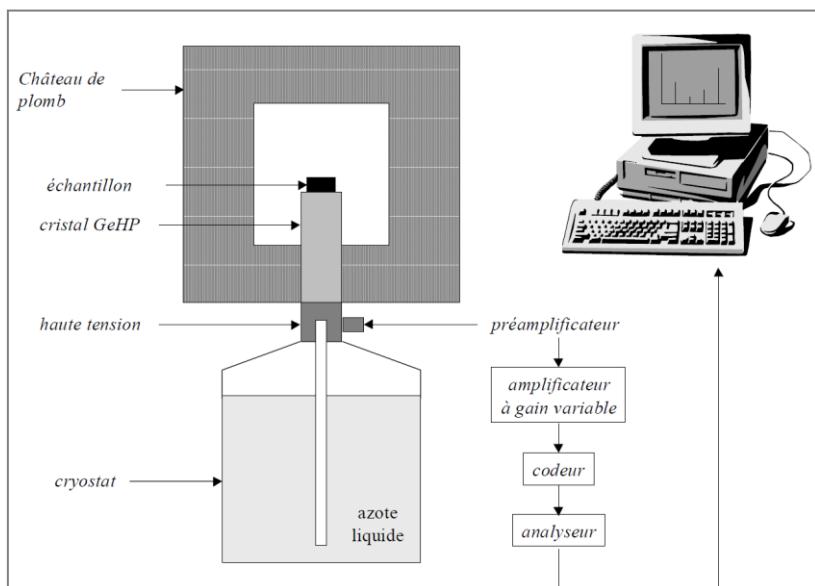


Figure 2.28. Schéma de la chaîne de comptage par spectrométrie gamma (Tessier, 2003).

Les spectres bruts obtenus doivent être traités pour pouvoir associer à chaque pic observé, l'énergie correspondante. Pour cela, chaque détecteur est calibré grâce à des standards dont les activités en radionucléides sont connues. Ainsi, la qualité d'un spectromètre gamma se caractérise par son rendement de comptage, son bruit de fond et sa résolution. Le rendement de comptage correspond à la capacité du détecteur à absorber les rayonnements gamma selon la géométrie du détecteur. Le bruit de fond correspond à la radioactivité ambiante, donc à l'ensemble des photons détectés à vide, et doit être le plus faible possible. La résolution correspond à la qualité de séparation des pics

détectés. Des effets parasites tels que l'effet Compton, l'effet photoélectrique ou la production d'électrons peuvent impacter la qualité du spectre obtenu.

4.3 Préparation des échantillons

Divers types d'échantillons ont été analysés (sols, sédiments et MES). Avant analyse, le matériel a été conditionné dans des boîtes en polyéthylène adaptées pour les détecteurs gamma. Pour éviter toute contamination et empêcher la volatilisation des produits de désintégration du ^{222}Rn , les boîtes sont scellées hermétiquement avec du ruban adhésif. Concernant les échantillons du bassin du Louroux, divers conditionnements ont été réalisés selon la quantité de matériel disponible :

- environ 80 g pour les échantillons de sols et de berges,
- environ 70 g pour les échantillons de sédiment déposés dans l'étang,
- environ 12 g pour les échantillons de la carotte sédimentaire ;
- entre 2 et 10 g pour les MES, après flocculation (CaOH_2).

5. Références bibliographiques Chapitre 2

- Albarède, F., Telouk, P., Blichert-Toft, J., Boyet, M., Agranier, A., Nelson, B., 2003. Precise and accurate isotopic measurements using multiple-collector ICPMS. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(12): 2725-2744.
- Baggio, S.B., Hartmann, L.A., Andrade, R.H.P., Rizzotto, G.J., Duarte, S.K., Knijnik, D.B., Simões-Neto, J.A., 2015. Basalt stratigraphy and silica gossans in Campo Grande and Serra de Maracaju, Mato Grosso do Sul, Paraná Volcanic Province. *Ore Geology Reviews*, 69: 73-87.
- Beauchemin, D., 2006. Inductively coupled plasma mass spectrometry. *Analytical Chemistry*, 78(12): 4111-4135.
- Becker, S.J., 2005. Recent developments in isotope analysis by advanced mass spectrometric techniques : Plenary lecture. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 20(11): 1173.
- Conseil Général d'Indre et Loire, 2009. Evaluation du Contrat Restauration Entretien 2003-2008 de l'Espace Naturel Sensible du Louroux.
- Creer, K.M., Miller, J.A., Smith, A.G., 1965. Radiometric Age of the Serra Geral Formation. *Nature*, 207(4994): 282-283.
- Didoné, E.J., Minella, J.P.G., Reichert, J.M., Merten, G.H., Dalbianco, L., de Barrros, C.A.P., Ramon, R., 2014. Impact of no-tillage agricultural systems on sediment yield in two large catchments in Southern Brazil. *Journal of Soils and Sediments*, 14(7): 1287-1297.
- Evrard, O., Némery, J., Gratiot, N., Duvert, C., Ayrault, S., Lefèvre, I., Poulenard, J., Prat, C., Bonté, P., Esteves, M., 2010. Sediment dynamics during the rainy season in tropical highland catchments of central Mexico using fallout radionuclides. *Geomorphology*, 124(1-2): 42-54.
- Food and Agriculture Organization of the United Nations, 2006. World reference base for soil resources. A framework for international classification, correlation and communication. *World Soil Resources Reports*, 103(ISSN 0532-0488).
- Foucher, A., 2015. Reconstruction de la cascade sédimentaire en contexte de plaine agricole drainée : Sources, voies de transfert et stockage de matière dans le bassin versant du Louroux (Indre-et-Loire) - Univresité François Rabelais de Tours, Ecole doctorale EMSTU, Thèse, 203 pp.
- Foucher, A., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Simonneau, A., Chapron, E., Courp, T., Cerdan, O., Lefèvre, I., Adriaensen, H., Lecompte, F., Desmet, M., 2014. Increase in soil erosion after agricultural intensification: Evidence from a lowland basin in France. *Anthropocene*, 7: 30-41.
- Froger, D., Moulin, J., Servant, J., 1994. Les terres Gatines, Boischaud-Nord, Pays-Fort, Touraine-Berry. Typologie des sols. Chambres d'agriculture du Cher, de l'Indre, de l'Indre et Loire et du Loire et Cher.
- Gardi, C. et al., 2015. Soil Atlas of Latin America and the Caribbean, European Commission - Publications Office of the European Union, L-2995 Luxembourg, 176pp.
- Horstwood, M.S.A., Evans, J.A., Montgomery, J., 2008. Determination of Sr isotopes in calcium phosphates using laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry and their application to archaeological tooth enamel. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(23): 5659-5674.
- Janasi, V.d.A., de Freitas, V.A., Heaman, L.H., 2011. The onset of flood basalt volcanism, Northern Paraná Basin, Brazil: A precise U-Pb baddeleyite/zircon age for a Chapecó-type dacite. *Earth and Planetary Science Letters*, 302(1-2): 147-153.
- Le Cloarec, M.F., Bonte, P.H., Lestel, L., Lefèvre, I., Ayrault, S., 2011. Sedimentary record of metal contamination in the Seine River during the last century. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 36(12): 515-529.
- Ohno, T., Hirata, T., 2006. Stable isotope geochemistry of strontium using MC-ICP-MS. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70(18): A453.
- Pinto, V.M., Hartmann, L.A., Santos, J.O.S., McNaughton, N.J., Wildner, W., 2011. Zircon U-Pb geochronology from the Paraná bimodal volcanic province support a brief eruptive cycle at ~135Ma. *Chemical Geology*, 281(1-2): 93-102.
- Pokrovsky, O.S., Viers, J., Dupré, B., Chabaux, F., Gaillardet, J., Audry, S., Prokushkin, A.S., Shirokova, L.S., Kirpotin, S.N., Lapitsky, S.A., Shevchenko, V.P., 2012. Biogeochemistry of carbon, major and trace elements in watersheds of northern Eurasia drained to the Arctic Ocean: The change of fluxes, sources and mechanisms under the climate warming prospective. *Comptes Rendus Geoscience*, 344(11-12): 663-677.
- Rasplus, L., Macaire, J.J., Alcaydé, G., 1982. Carte géologique de Bléré au 1:5000, Editions BRGM.
- Rauret, G., López-Sánchez, J.F., Sahuquillo, A., Rubio, R., Davidson, C., Ure, A., Quevauviller, P., 1999. Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials. *Journal of Environmental Monitoring*, 1(1): 57-61.
- Tessier, L., 2003. Transport et caractéristation des matières en suspension dans le bassin versant de la Seine : Identification de signatures naturelles et anthropiques - Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Thèse. 348.
- Tiecher, T., 2015. Fingerprinting sediment sources in agricultural catchments in southern Brazil, Universidade Federal de Santa Maria, Graduate programm in soil science - Université de Poitiers, Ecole doctorale Gay Lussac, Thèse, 275 pp.
- Weis, D., Kieffer, B., Maerschalk, C., Barling, J., de Jong, J., Williams, G.A., Hanano, D., Pretorius, W., Mattielli, N., Scoates, J.S., Goolaerts, A., Friedman, R.M., Mahoney, J.B., 2006. High-precision isotopic characterization of USGS reference materials by TIMS and MC-ICP-MS. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 7(8): n/a-n/a.
- Yang, L., 2009. Accurate and precise determination of isotopic ratios by MC-ICP-MS: a review. *Mass Spectrom Rev*, 28(6): 990-1011.

CHAPITRE 3

**Sources et dynamiques spatiales et
temporelles des matières en suspension
dans le bassin du Louroux, apport du
rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des radionucléides ^7Be
et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$**

Chapitre 3. Sources et dynamiques spatiales et temporelles des matières en suspension dans le bassin du Louroux, apports du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des radionucléides ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$

Ce chapitre est constitué de deux articles portant sur les sources et la dynamique des MES dans le bassin du Louroux. Celles-ci ont été collectées lors de trois crues échantillonnées entre 2013 et 2014 dans le cas du premier article, mais aussi lors de deux crues échantillonnées en janvier 2016 dans le cas du second article.

Le premier article porte sur l'utilisation du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ pour discriminer les sources de MES selon leur lithologie et leur fraction granulométrique. Intitulé « *Examining suspended sediment sources and dynamics during flood events in a drained catchment using strontium isotopes ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$)* », cet article a été soumis à la revue *Chemical Geology* et la version présentée est celle resoumise après « *major revisions* ».

Le second article intitulé « *Investigating temporal dynamics of suspended sediment with ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ measurements in a drained lowland catchment during flood events* » porte sur la dynamique temporelle des MES lors des cinq crues étudiées en 2013-2014 et en janvier 2016. Il sera prochainement soumis à la revue *Scientific Reports* et porte sur des mesures de radionucléides (^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) réalisées sur les MES exportées par les cours d'eau du bassin en période de crue.

Démarche entreprise

Ce troisième chapitre s'attache à étudier les sources et la dynamique spatio-temporelle des MES qui transitent dans les cours d'eau du bassin du Louroux. Une précédente étude a montré que les MES collectées lors des crues dans ce bassin proviennent presque exclusivement de la surface des sols alors qu'en période d'étiage, les sources de surface et de subsurface y contribuent de manière équilibrée (Foucher et al., 2015). De plus, l'existence d'une sélectivité granulométrique importante sur le bassin a été soulignée, avec des MES enrichies en ^{137}Cs , par rapport aux valeurs mesurées dans les sources de surface et de subsurface. Cependant, des questions quant aux sources lithologiques des MES et à leur dynamique temporelle au sein des cours d'eau du bassin subsistent.

Pour répondre à ces interrogations et fournir des informations pour guider la mise en place de dispositifs visant à limiter les départs de matière depuis les versants, trois crues ont été étudiées les 30 décembre 2013, 29 janvier 2014 et 13 février 2014. Des échantillons de MES (n=14) ont été collectés au niveau de cinq stations localisées sur les principaux affluents de l'étang du Louroux et en sortie de deux drains instrumentés (n=4). Les sols, sources potentielles de particules (n=28), ont été

échantillonnés sur l'ensemble du bassin de manière à couvrir les différentes lithologies du bassin. Les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ont été mesurés dans l'ensemble des échantillons ainsi que dans différentes fractions de certains échantillons de sols (*i.e.* <2 µm, <63 µm et <2 mm). Les mesures de radionucléides (^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) ont en revanche été uniquement réalisées sur les MES. Cependant, des analyses complémentaires ont été réalisées lors de deux crues échantillonées en janvier 2016 (n=19). Le ^7Be et le $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, de par leurs demi-vies contrastées (53 jours et 22 ans, respectivement), permettent de discriminer les processus érosifs récents de ceux plus anciens et s'avèrent être des traceurs pertinents pour étudier la dynamique temporelles des MES sur le bassin du Louroux.

Principaux résultats

Les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesurés dans les sols ont permis de discriminer les sols carbonatés (0,712625-0,717815) de ceux silicatés (0,719287-0,724631), par la suite nommés silicatés. Des variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ont été observées dans les MES (0,713660-0,720571), suggérant une contribution de ces deux sources lithologiques. Des variations de ce rapport ont également été observées selon l'intensité de la crue, ainsi qu'au sein des différentes fractions (*i.e.* <2 µm, <63 µm et <2 mm) des échantillons de sols. Une estimation préliminaire de la contribution des sols carbonatés et silicatés aux MES collectées lors de chaque crue a pu être réalisée. Selon la crue étudiée, différentes fractions de sols carbonatés et silicatés ont été utilisées pour caractériser les sources de particules. Des contributions variables des deux sources précitées ont été observées lors des trois crues étudiées, avec une contribution plus marquée de la source carbonatée (<2 µm) lors deux premières crues, d'intensité plus modérée, et une contribution majoritaire de la source silicatée (échantillon brut) lors du troisième événement, plus intense.

Les mesures de ^7Be et de $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ont permis de caractériser la dynamique temporelle des MES lors de ces événements. La contribution des particules récemment érodées aux MES collectées a été estimée lors de chaque crue et pour chaque station. Les résultats indiquent que la contribution moyenne aux MES des particules récemment érodées augmente d'une crue à l'autre, avec des contributions moyennes estimées entre $45 \pm 20\%$ en décembre 2013 et $80 \pm 20\%$ en février 2014. Lors des deux crues étudiées en janvier 2016, les contributions moyennes ont été respectivement estimées à $65 \pm 20\%$ et $80 \pm 20\%$, et sont donc restées stables. L'évolution de la contribution des particules récemment érodées montre qu'en 2013-2014, lors des deux premières crues, les sédiments préalablement accumulés dans le chenal ou les drains ont été remis en suspension et progressivement exportés vers l'aval alors que, lors de la troisième crue, ce sont majoritairement les

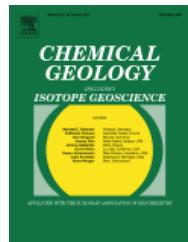
particules directement érodées de la surface des sols qui ont été exportées par les rivières vers l'étang situé à l'exutoire.

Principales conclusions

Cette étude présente l'originalité d'utiliser le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, généralement mesuré dans la fraction dissoute dans le cadre d'études portant sur l'altération chimique des bassins versants, comme un traceur de l'origine lithologique des sources de particules à l'échelle du bassin versant. Les différentes sources lithologiques (sols carbonatés et silicatés) des MES ont été caractérisées par leur rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. Les résultats ont également mis en évidence la dominance du transport d'une fraction très fine ($<2 \mu\text{m}$) lors de crues modérées et d'une fraction plus grossières ($<2 \text{ mm}$) lors de crues intenses. Le réseau de drainage, qui facilite le transfert des particules fines qui migrent depuis la surface des sols, constitue un chemin préférentiel pour les particules érodées et augmente la connectivité entre versant et rivières. Les mesures de radionucléides fournissent des informations complémentaires et indiquent que le bassin versant du Louroux est très réactif, avec une exportation relativement rapide des sédiments accumulés dans les drains et dans le chenal en début de saison hydrologique et, ensuite, une contribution majoritaire des particules directement érodées de la surface des sols.

Ces résultats montrent l'intérêt de coupler différents traceurs et, parfois, l'analyse de différentes fractions granulométriques des sources, pour contraindre la dynamique des MES qui transitent par les cours d'eau. Ils soulignent aussi l'importance du réseau de drainage dans le transport des particules et indiquent que de futures recherches devraient se concentrer sur leur rôle de voie de transfert privilégiée des particules érodées de la surface des sols vers l'hydrosystème.

1. Examining suspended sediment sources and dynamics during flood events in a drained catchment using radiogenic strontium isotope ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios)



Marion Le Gall^a, Olivier Evrard^a, François Thil^a, Anthony Foucher^b, J. Patrick Laceby^a, Louis Manière^a, Sébastien Salvador-Blanes^b, Sophie Ayrault^a

^a Laboratoire des Sciences et de l'Environnement, UMR 8212 (CEA/CNRS/UVSQ), Université Paris-Saclay, Domaine du CNRS, Avenue de la Terrasse, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^b E.A 6293, Laboratoire GéoHydroSystèmes Continentaux (GéHCO), Université F. Rabelais de Tours, Faculté des Sciences et Techniques, Parc de Grandmont, 37200 Tours, France

Submitted 05 January 2016 – Received in revised form 18 November 2016

HIGHLIGHTS

- Soil samples were discriminated according to catchment substrate (*i.e.* carbonate and silicate)
 - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of suspended sediment varied depending on hydrological conditions
 - Different particle size fractions were modelled for different flood intensities (*i.e.* <2 mm and <2 μm)
 - Carbonate source soils dominated two less intense flood events (63%) whereas silicate source soils dominated a higher intensity flood (72%)
 - Field drainage systems likely enhance the hillslope to river connectivity, particularly for the finest particles
-

Abstract

Soil erosion is recognized as one of the main processes of land degradation in agricultural areas. High suspended sediment loads, often generated from eroding agricultural landscapes, are known to degrade downstream environments. Accordingly, there is a need to identify suspended sediment sources and to investigate their dynamics. Here, soil and sediment strontium isotopic ratios were used to examine suspended sediment sources and dynamics in a lowland drained catchment in France.

Suspended sediment ($n=14$) was collected in stream and at tile drain ($n=4$) outlets during three flood events between December 2013 and February 2014. Potential source soils ($n=28$) representative of the carbonate and silicate substrates found in the catchment were sampled and analyzed. Strontium isotopic ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) were measured in different particle size fractions (<2 μm , <63 μm and <2 mm).

Soil $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios significantly discriminated between source samples classified as carbonate (0.712625 to 0.717815) and silicate (0.719287 to 0.724631) soils. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment (0.713660 to 0.720571) reflect variations in source contributions during different hydrological conditions. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios varied in the different fractions of soil samples (*i.e.* <2 μm , <63 μm and <2 mm) and in suspended sediment samples. Suspended sediment was interpreted as a mixture of two end-members, with the dominant contribution of the <2 μm fraction

of soil samples occurring during small scale flood events and the <2 mm fraction during more intense flood events. Modelling results indicate that carbonate source soil contributions are variable, with their highest contributions occurring during the two first flood events compared to the last flood event.

The results also show that the tile drainage system enhances the connectivity between cultivated hillslopes and the river network, providing a preferential pathway for fine (<2 μm) particles. This study demonstrates the potential of using strontium isotopic ratios to examine the variations of suspended sediment sources in drained catchments with contrasting carbonate and silicate sources. More importantly, the results highlight the need to improve the management of sediment exported from tile drains in similar agricultural environments, as they were demonstrated to transfer very fine material to the riverine environment.

Keywords : $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio, Suspended sediment, Soil erosion, Sediment tracing

1.1 Introduction

Accelerated soil erosion often results in elevated sediment loads (Owens et al., 2005). High sediment loads may lead to the siltation of river channels and reservoirs (Gay et al., 2014; Verstraeten and Poesen, 1999; Walling and Fang, 2003). These problems are exacerbated for the clay to loam fractions of sediment (typically <63 μm) that are transported the farthest from their source. Importantly, fine sediment may transport various contaminants, such as metals (Priadi et al., 2011), polycyclic aromatic hydrocarbons (Gateuille et al., 2014), nutrients (Beusen et al., 2005) and fallout radionuclides (Chartin et al., 2013).

There is a need to improve our understanding on sediment source dynamics in order to design effective sediment management programs. This is important for cultivated catchments of Northwestern Europe (Russell et al., 2001; Walling et al., 2002) where the intensification of agriculture after World War II resulted in an increase of sediment yields (Vanmaercke et al., 2015). In particular, knowledge of erosion processes and sediment sources is limited for catchments where tile drains were installed after the 1950s (King et al., 2014; Sogon et al., 1999). Drainage networks were installed in many agricultural catchments worldwide and although several studies suggest that the drainage system may increase the connectivity between cultivated hillslopes and the river network (Foucher et al., 2015a; Walling and Collins, 2008), additional information is needed to characterize the source and nature of eroded material transported in these systems.

Eroded material is transported in rivers as suspended load and bedload, and rivers transport eroded material as both dissolved and particulate load. River monitoring is important for understanding

sediment transport processes (Horowitz, 2008; Smith and Dragovich, 2009; Liu et al., 2011; Gourdin et al., 2014) or to estimate chemical mass budgets (*e.g.* Viers et al., 2009). In many cases, sediment fluxes and their associated contaminants are controlled by the occurrence of large flood events as demonstrated by numerous catchment-scale studies in which long time records are available (Audry et al., 2004; COynel et al., 2007; Ollivier et al., 2011). Nevertheless, small agricultural catchments with extensive drainage networks, where significant suspended sediment export occurs during small and medium sized flood events, have received limited attention. Accordingly, investigating sediment sources in small drained agricultural catchments may provide insight into fundamental hydrological and erosion processes.

Sediment provenance can be determined by analyzing the sediment geochemistry of river material that is essentially a mixture of the composition of its lithological and pedological sources (Collins et al., 2010; Evrard et al., 2011). In addition to the analysis of major and trace elements, targeted isotopic ratios are a powerful tool to discriminate the contributions of potential sediment sources. This ability was demonstrated for strontium isotopes (^{87}Sr and ^{86}Sr) that are not fractionated during weathering processes (dissolution of primary minerals and precipitation of secondary phases). Although the bedrock $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio depends on the Rb/Sr ratio of the constitutive minerals and age (Albarède, 1995; Faure, 1986), the minerals neoformed during their transformation in soils should maintain their bedrock strontium isotopic signatures (Graustein, 1989; Douglas et al., 1995).

As a consequence, ^{87}Sr and ^{86}Sr isotopes have been extensively used to investigate weathering and erosion processes (Négrel et al., 1993; Gaillardet et al., 1997; Probst et al., 2000; Semhi et al., 2000; Pierson-Wickmann et al., 2009; Brennan et al., 2014) and for tracing river water masses (Eikenberg et al., 2001; Brenot et al., 2008; Bouchez et al., 2011a). Few studies have reported variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios during floods in large rivers in both dissolved (Négrel et al., 1993; Grosbois et al., 1999; Roy et al., 1999; Négrel and Petelet-Giraud, 2004; Petelet-Giraud and Négrel, 2007) and particulate loads (Douglas et al., 1995; Allègre et al., 1996; Asahara et al., 1999). These latter studies demonstrated the potential of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios to discriminate sediment sources in riverine environments in general, and to discriminate between carbonate and silicate sources or between shield and volcanic terranes in particular.

The objective of this study is to investigate the sources of suspended sediment and to quantify their dynamics in the Louroux catchment (France), a small agricultural catchment representative of lowland drained areas of Northwestern Europe. In this catchment, the installation of dense drainage systems were shown to increase the connectivity between eroded soils and the river network, with the preferential transfer through the drains of very fine particles originating from the soil surface to the river network (Foucher et al., 2014).

To improve our understanding of suspended sediment sources in this drained and intensively cultivated catchment, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and chemical element ratios were measured in suspended sediment during three flood events and three particle size fractions in potential source soil samples (*i.e.* <2 mm, <63 μm and <2 μm fractions). The objective of these measurements is to identify the sources supplying sediment to the river network and to examine their potential variations during a sequence of flood events. Accordingly, geochemical variations were examined according to hydrological conditions, suspended sediment end-members were identified, and the respective contribution of each end-member was estimated for each flood event.

1.2 Material and methods

1.2.1. Study site

The Louroux catchment (24 km²) is a small agricultural catchment located in the central part of the Loire river basin, France (Figure 3.1A). It is characterized by a relatively flat topography (mean slope of 0.4%; elevation ranging between 99 and 127 m). Climate is temperate oceanic, with a mean annual rainfall of 684 mm (between 1971 and 2000) ([Météo France](#)). Cropland (intensive cereal production) is the main land use (78%) with the other land uses being grassland (18%) and woodland (4%) (European Environment Agency). Organic and mineral fertilizers are commonly used in the catchment. The geology exclusively consists of continental and marine sedimentary rocks. Six different lithologies are found in this lowland catchment (Figure 3.1B) although they crop out at very limited locations. Senonian flint clays (23%) constitute the oldest and deepest formation. Tertiary detrital formations, as Eocene silicic conglomerate (2%), are found in the middle of the basin. Ludian Touraine lacustrine limestone (6%) is found in the western part of the catchment where it is covered with Helvetic shelly sands (18%). Post-Helvetic sand and continental gravel (32%) cover the largest area and result from fluvial spreading. Quaternary loess (18%) covers tertiary deposits in the upstream part of the catchment (Figure 3.1) ([Rasplus et al., 1982](#)). These lithologies were regrouped in two classes: a carbonate area composed of Touraine lacustrine limestone and Helvetic shelly sand and Post-Helvetic sand and continental gravel, and a silicate area comprising the remaining lithologies (Figure 3.1C). Importantly, the carbonate substrates were predominately located in the southern area of the catchment. According to the Food and Agriculture Organization classification ([FAO, 2006](#)), most of the soils are hydromorphic soils classified as Neoluvisols and prone to surface crusting except in the southern part of the catchment where Calcisols and Calcisols overlie the Touraine lacustrine limestone.

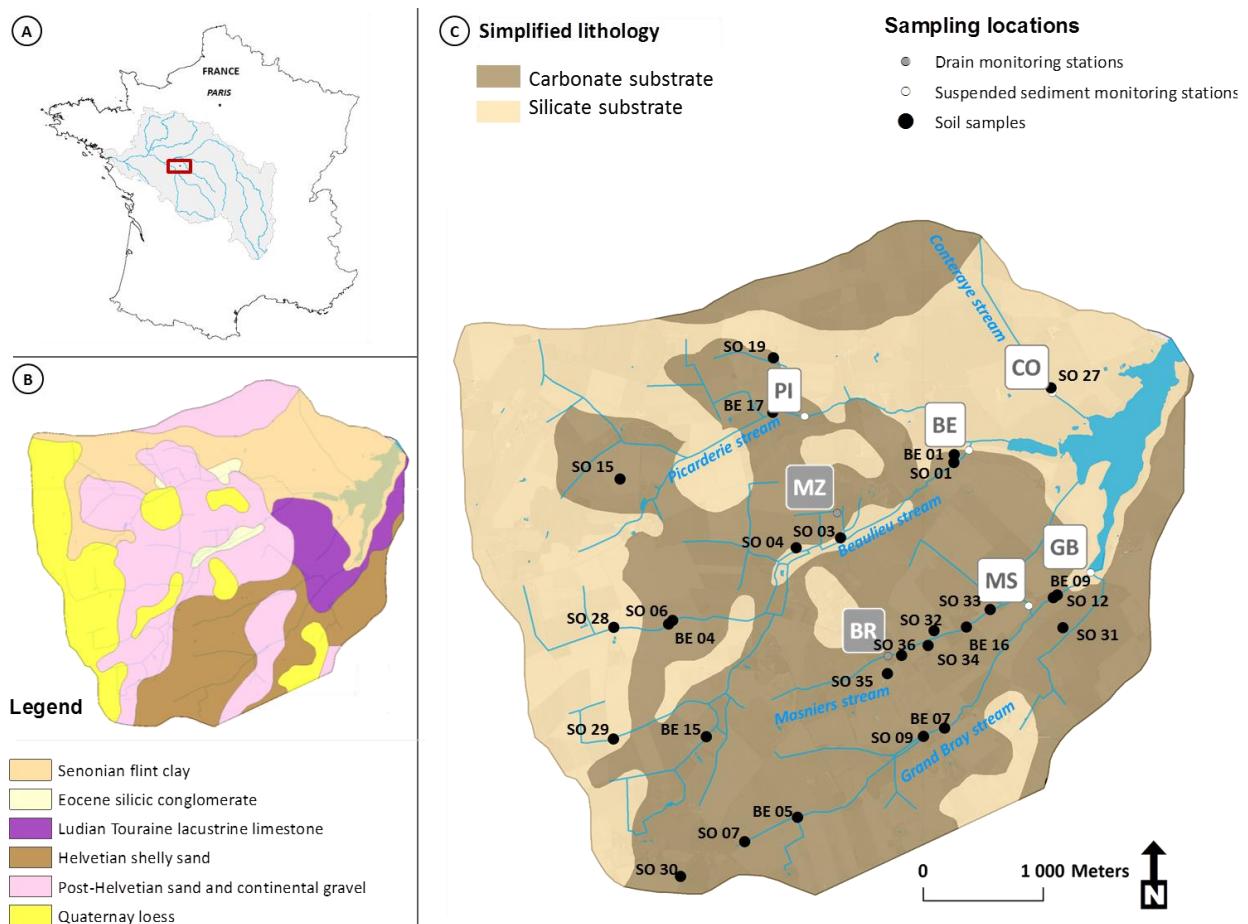


Figure 3.1. Map of the Louroux catchment in the Loire River basin (France) (A) along with the lithological map of the area (B) and the locations of soil/limestone sampling, river monitoring stations equipped with automatic samplers (in white) and tile drain outlet monitoring stations (in grey) (CO: Conteraye, BE: Beaulieu, PI: Picarderie, GB: Grand Bray, MS: Masniers, MZ: Mazère, BR: Brépinière) (C). For the soil samples, SO refers to surface samples and BE refers to channel bank samples.

Large-scale modifications of land use and agricultural practices took place in the Louroux catchment over the last 70 years. A succession of land consolidation schemes was implemented in the area, which modified the river network and installed a dense tile drain system to evacuate stagnating water. More than 220 tile drain outlets were installed throughout the catchment to drain the soils. These modifications led to increased sediment yields (maximal value of $1100 \text{ t km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ during the 1960-1980 period) in the Louroux Pond (0.5 km^2), located at the catchment outlet (Foucher et al., 2014). Five main streams drain to the Louroux Pond: the Conteraye, Picarderie, Beaulieu, Masniers and Grand Bray streams. The main flow direction is from the western to the eastern part of the catchment, where the pond is located (Figure 3.1C).

1.2.2. Sampling

1.2.2.a. Source collection

Soil and channel bank samples (respectively referred to as SO and BE in Figure. 3.1C) were collected between January 2013 and April 2014 in cropland areas. Surface sources ($n=20$) were sampled by scraping the top 2-3 cm layer of soil. Channel bank sources ($n=8$) were sampled by scraping a 2-3 cm layer of the sidewall from eroding channel banks. A plastic spatula was used to collect these samples to avoid potential contamination. Source samples were composed of three to five sub-samples, all collected within a radius of 10 m. During sampling, care was taken to cover soils corresponding to the range of lithologies found in the catchment.

1.2.2.b. Suspended sediment collection

Five monitoring stations (CO, PI, BE, MS, GB stations) equipped with automatic samplers containing twenty-four 1L polypropylene bottles were installed on five streams draining to the Louroux Pond. For each monitoring site and each flood, one acid-cleaned 1L polypropylene bottle was dedicated for geochemical analyses. In addition to the river monitoring sites, two stations were installed at tile drain outlets to characterize the properties of the sediment transiting through the drainage system. Suspended sediment exported from drains (BR, MZ stations) was collected in the same way as suspended sediment in the rivers. Water level and turbidity were continuously recorded at the seven monitoring stations to estimate water discharge and suspended sediment concentrations. For the flood events investigated, data were available for four of the monitoring stations (BR, GB, MS for the three floods and BE for the two first floods). Three flood events were investigated (December 30, 2013, January 29, 2014 and February 13, 2014). Eighteen samples of river water were collected for geochemical analyses, including fourteen in the river monitoring stations and four at tile drain outlets. For each flood, one sample of river water was collected at the beginning of the recession stage of the hydrograph. During the two first floods, samples were collected at every station (5 river and 2 tile drain samples) for each event. During the last flood, samples were only collected at 4 river monitoring stations (excluding the CO and BR and MZ tile drain stations).

1.2.3. Sample processing and analysis

1.2.3.a. Sample preparation

In the laboratory, soil samples were dried at 40°C and sieved to 2 mm before analysis. The <63 µm and <2 µm particle sizes were fractionated for a selection of soil samples (n=8). Sieving sediment source material to <63 µm facilitates the direct comparison of its properties with those of suspended sediment, as it is widely accepted that fine material (typically <63µm) is preferentially transported in suspension (Koiter et al., 2013; Smith and Blake, 2014). Furthermore, the <2 µm fraction containing the clay minerals was separated. The <63 µm fraction was isolated by dry sieving and settling columns were used to isolate the <2 µm fraction by sedimentation using deionized water. The larger particles (*i.e.* >2 µm) were expected to have settled after a given period calculated using Stokes' law. A fall distance of 3 cm was calculated for the <2 µm fraction on the basis of a constant temperature of 20°C and a density of 2.65 g cm⁻³. After 140 minutes, the supernatant solution with particles <2 µm was removed and dried at 40°C. Suspended sediment concentrations were determined by the filtration of a known volume of water (120 mL to 900 mL) through dried, acid-cleaned and pre-weighted glass fiber filters (Whatman, GF/F, 47 mm Ø, 0.7 µm pore size). Suspended sediment quantities collected on the filters ranged from 59 to 347 mg (weighing error: <3%).

1.2.3.b. Geochemical measurements

Bulk mineralization

Approximately 100 mg of soil and channel bank material were dissolved with 3 mL HF (47-51%) and 3 mL HClO₄ (65-71%) in closed Teflon vessels under pressure on hot-plates at 150°C for 240 min (Digiprep, SCP Science protocol). After cooling, solutions were evaporated to dryness. Samples were then digested using aqua regia: 3.75 mL HCl (34-37%) and 1.25 mL HNO₃ (67%) at 110°C for 120 min (Digiprep SCP Science protocol). Solutions were then evaporated to dryness. Finally, samples were dissolved and evaporated successively three times in 1mL of HNO₃ (67%) and diluted in 50 mL of ultrapure water (Milli-Q). Ultrapure reagents were used (Normatom grade, VWR, France for HNO₃, and “Trace Metal Grade”, Fisher Chemical, France for HF, HClO₄ and HCl) and for each set of total digestion, a reference material (IAEA lake sediment SL1) and a chemical blank were digested in the same way to control chemical mineralization efficiency.

Prior to digestion, dried, weighted suspended sediment filters were cut into two parts using ceramic scissors. Half of each filter (between 50 and 110 mg) was digested in closed Teflon vessels using the same procedure as described above. For each batch of total digestions, a clean filter was digested in the same way as the samples to check for any potential contamination.

Determination of major and trace element concentrations

Major and trace element concentrations (Na, Mg, K, Ca, Al, Rb, and Sr) were determined in digested solutions using an inductively coupled plasma quadrupolar mass spectrometer (ICP-QMS) (X-Series, CCT II⁺ Thermoelectron, France). Internal standards (Re, Rh and In; SPEX, SCP Science, France) were used to correct for instrumental drift and plasma fluctuation. To limit interference, analysis was performed using a collision cell technology (CCT) which introduces a supplementary gas mixture of H₂ (7%) and He (93%) for the determination of Rb and Sr concentrations.

A certified river water sample (SRM 1640a, NIST, Gaithersburg, USA) was used to control the ICP-QMS calibration. The overall quality of the digestion procedure and of ICP-QMS measurements was controlled by analyzing a certified lake sediment material (SL-1, International Atomic Energy Agency, Vienna). These standards were analyzed routinely (every 15-25 samples). Good agreement was observed between the data obtained and the certified values (n=91 for SL-1 measurements). In the particulate compartment, analytical uncertainties did not exceed 10% (except for Ca, with a maximal analytical error of 13%). In the blank filter, major and trace element concentrations did not exceed 2% of the concentrations measured in suspended sediment, except for Na measurements which had a maximum contribution of 8%.

Sr purification and isotopic measurements

Chemical separation of Sr from Rb and Ca was performed using a cation-exchange procedure. A Sr specific resin was used (Sr-SPEC resin, Eichrom) and packed on lab-made polyethylene microcolumns (700 µL resin). After the bulk digestion, a calculated volume of each sample, equivalent to 200 ng of Sr in 4 mL HNO₃ 3N, was prepared. The resin was conditioned three times with 25 mL of HCl 1N and 25 mL of HCl 3N to remove potential traces of Sr and Pb, and then rinsed with ultrapure water (Milli-Q) until pH 6-7 was reached. The resin was then loaded onto pre-cleaned extraction chromatographic microcolumns and rinsed successively with 2 mL of HNO₃ 3N, 2 mL of ultrapure water (Milli-Q) and 1mL of HNO₃ 3N. Digestion solutions (containing 200 ng of Sr) were then loaded onto columns. Sr elution was realized using 3 mL of HNO₃ 3N and 2.5 mL of ultrapure water (Milli-Q). Sr recovery (measured to 85%, σ=11.5%, n=129) and efficiency of purification were determined by comparing the Sr and Ca concentrations in the original digest (after the bulk digestion) and in the eluted Sr fraction. More than 90% of the Ca was eliminated after the chemical extraction.

Sr isotope ratio analyses were carried out using a Thermo Finnigan Neptune-Plus Multi-collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (MC-ICP-MS) instrument at the Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement. The purified Sr fractions obtained after chemical separation were diluted with 0.5N HNO₃, adjusting the Sr concentration to 20 µg/L. Reproducibility of the

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio measurements were controlled with replicate analyses of the NBS 987 standard, the mean value obtained was $0.710304 \pm 11 \times 10^{-6}$ (2σ , $n=88$). Ratios obtained were normalized to the NBS 987 standard value of 0.710245 and $^{86}\text{Sr}/^{88}\text{Sr}=0.1194$ was adopted to calibrate mass bias during the Sr isotope measurements. Two other standards were also used, the JCe-1 (carbonate mineral, accepted value of 0.709150) and the Durango apatite (accepted value of 0.706327). Recalculated mean values, normalized to the NBS 987, obtained were respectively $0.709267 \pm 11 \times 10^{-6}$ (2σ , $n=18$) and $0.706346 \pm 13 \times 10^{-6}$ (2σ , $n=24$).

1.2.3.c. Source discrimination analyses and modelling

Suspended sediment samples were hypothesized to derive from two source end-members reflecting the mixing of particles originating from source soils developed on carbonate and silicate substrates. To facilitate the presentation or results and discussion, these endmembers will be further referred to “carbonate soils” and “silicate soils”.

Non-parametric tests were used to determine whether isotope ratios were significantly different in suspended sediment and in soil samples (Collins et al., 1997; Laceby et al., 2015). The non-parametric Mann-Whitney U -test was used to examine differences and similarities between suspended sediment sources and suspended sediment samples at a significance level of $p<0.05$.

To quantify the relative contribution of the sources (*i.e.* carbonate soils vs silicate soils) to suspended sediment samples, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations were incorporated in the following equation (Eq. 1):

$$R_{SS} = \frac{x_c \cdot C_c \cdot R_c + x_s \cdot C_s \cdot R_s}{x_c \cdot C_c + x_s \cdot C_s} \quad (\text{Eq. 1})$$

where R_{SS} , R_c , R_s are the respective $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in suspended sediment, carbonate and silicate soil samples; C_c and C_s are the respective Sr concentrations in carbonate and silicate soil samples; and x_c and x_s (with $x_c + x_s = 1$) are the respective carbonate and silicate contributions to suspended sediment.

Carbonate and silicate soil contributions to suspended sediment were estimated by minimizing the difference between the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio measured in each suspended sediment sample by MC-ICP-MS and the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio (R_{SS}) calculate following (Eq. 1).

For the two first flood events, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations measured in the $<2 \mu\text{m}$ fraction were incorporated in the mixing equation while for the third flood event, measurements in the <2

mm fraction were used. Both end-members were characterized by the mean value of the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations measured in the carbonate and silicate soils.

1.3 Results

1.3.1. Spatial variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in sources (bedrock and soil samples)

A range of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios was observed in source samples collected within the Louroux catchment. The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios varied between 0.712625 and 0.722685 in channel bank samples ($n=8$), and between 0.712763 and 0.724631 in soil samples ($n=20$) (Figure 3.2, Annexe A - Table A1). A Mann-Whitney U test reported the absence of significant differences between these two sources (MW $p=0.355$). Accordingly, channel bank and soil samples were not considered as distinct sources.

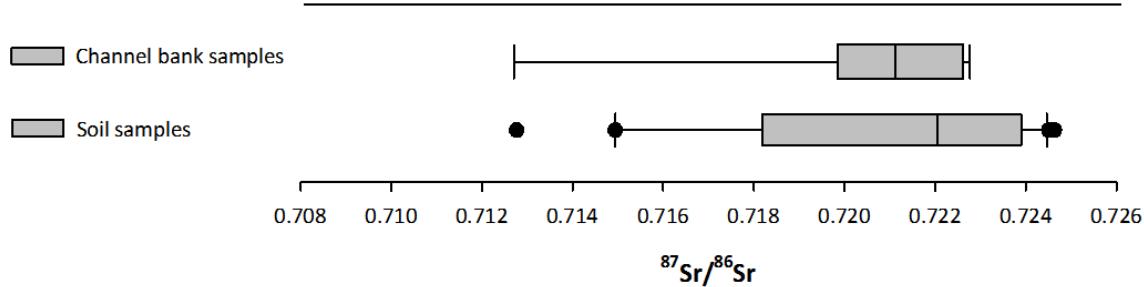


Figure 3.2. Box-plots of Sr isotopic ratio variations in channel bank and soil samples.

The lowest ratios (0.712625 to 0.719287) were observed in the carbonate area drained by Masniers and Grand Bray streams, in the southern part of the Louroux Pond catchment (Figure 3.3, Annexe A – Table A1) whereas intermediate (0.719651-0.722700) and higher ratios (0.722701-0.724631) were observed in the remaining areas.

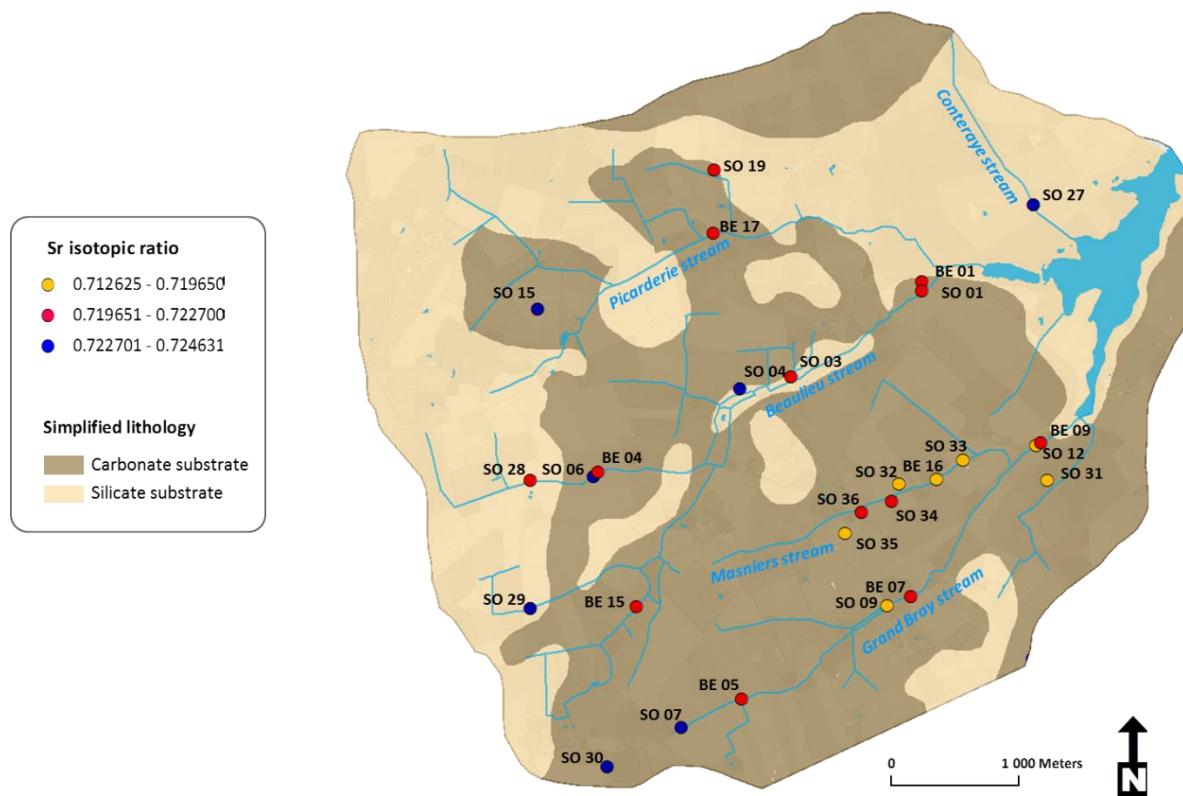


Figure 3.3. Location and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of soil and channel bank samples. For the soil samples, SO refers to surface samples and BE refers to channel bank samples.

1.3.2. Hydrological and geochemical characterizations of suspended sediment samples

Hydro-sedimentary parameters (*i.e.* water levels, turbidity) recorded during the 2013-2014 winter season were used to estimate the water discharge and suspended sediment concentration values. Unfortunately, they were only available for three monitoring stations (BE, GB, MS stations). The two first flood events were triggered by long-lasting and low-intensity rainfall and were characterized by similar suspended sediment concentrations. Water discharge recorded during the second flood were slightly lower than those recorded during the first flood, with respective maximal water discharge values of 0.76 and $0.42 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ (GB station). On December 30, 2013, total precipitation reached 14 mm in 24 hours and suspended sediment concentrations varied between 15 and 624 mg L^{-1} . On January 29, 2014, total precipitation reached 9.4 mm in 29 hours and suspended sediment concentrations varied between 2 and 416 mg L^{-1} . In contrast, the third flood event that occurred on February 13, 2014 was triggered by higher precipitation (21.6 mm in 4 hours) and was more intense with higher suspended sediment concentrations and water discharge, reaching the maximal values of 2450 mg L^{-1} and $1.1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, respectively, at the BE station. Due to the higher cumulative precipitation recorded during the previous months, soils were saturated with water. The more intense rainfall event that occurred on February 13, 2014 generated erosion and sediment transport, which is illustrated by the

higher water discharge and suspended sediment concentrations recorded in the river during the third monitored flood event. Suspended sediment concentrations were highly variable from one flood to another, and clockwise hysteresis was observed for the three flood events (Figure 3.4). Indeed, for a given discharge, suspended sediment concentrations were higher during the rising limb compared to the falling limb.

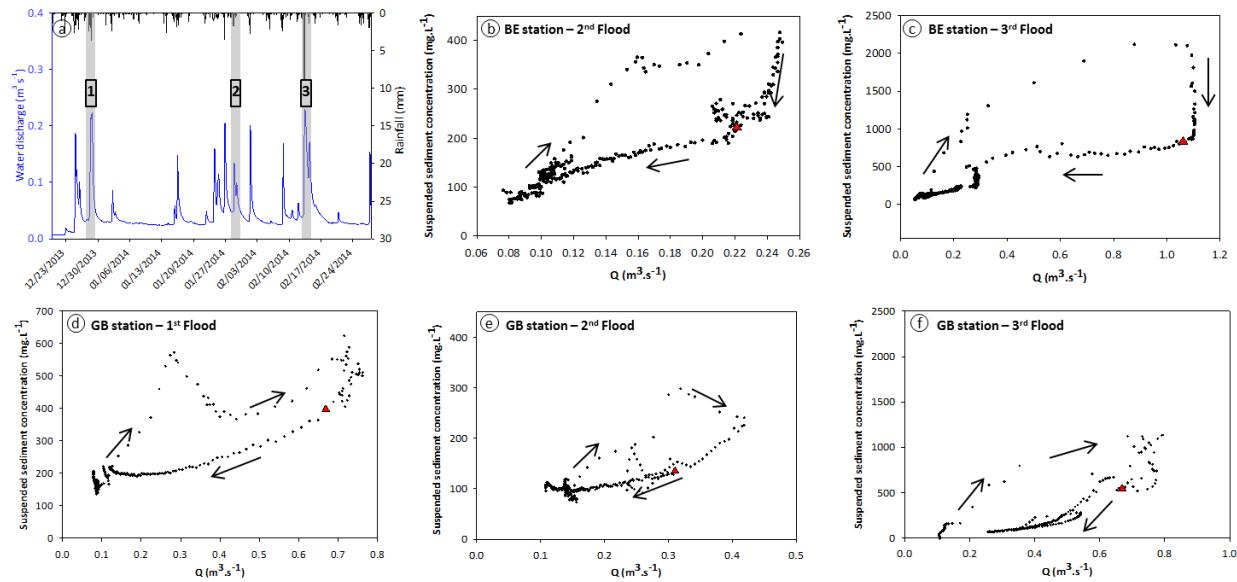


Figure 3.4. Discharge and suspended sediment concentrations for the three flood events at two monitoring stations, BE and GB located in the silicate and carbonate areas and flowing to the Louroux pond. Samples collected for strontium isotopic measurements are note by the red triangle.

During the three flood events, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment directly collected in the river and at tile drain outlets displayed large variations, with values ranging between 0.713660 and 0.720571 (Annexe A - Table A2). Nevertheless, they remained within the source soil range (0.712736 to 0.724631). The two first flood events exhibited similar ranges of Sr isotopic variations with ratios between 0.713660 and 0.718637. The third flood event was characterized by higher ratios ranging from 0.717814 and 0.720571 (Annexe A - Table A2). For each monitoring station, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment collected during the third flood were systematically higher than those measured during the two previous floods (*i.e.* from 0.718637 to 0.720571 at PI station, from 0.718188 to 0.720495 at BE station, from 0.715671 to 0.717814 at MS station and from 0.716165 to 718467 at GB station).

Similarly to the sources, the lowest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were measured in suspended sediment collected in the streams ($n=6$) and at tile drain outlets ($n=2$) draining the carbonate areas (0.715484 to 0.718467 and 0.713660 to 0.714202, respectively) mainly found in the southern part of the catchment, whereas the highest ratios were measured in suspended sediment ($n=5$) and at tile drain outlets ($n=2$) collected in the silicate area (0.715734 to 0.720571 and 0.717296 to 0.717946,

respectively). The two lowest ratios were measured at the tile drain outlet of the BP station during the two first flood events whereas the two highest values were measured in the samples collected during the third flood at the monitoring stations of BE and PI, both located in the vicinity of the silicate area. For each flood and each drained area, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment collected at tile drain outlets were systematically lower than those measured in suspended sediment directly collected in the stream (Annexe A - Table A2).

1.3.3. Relationship between $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratios in source and suspended sediment samples – end-member selection

A Hierarchical Cluster Analysis (HCA) was performed using $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, Na, Mg, K, Ca, Rb and Sr concentrations measured in channel bank and soil samples. The results indicate that source samples can be grouped in two major clusters (Annexe A - Figure A1). The first cluster (Group 1, n=4) contains samples with the highest Ca and Sr concentrations and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios ranging between 0.712625 and 0.716986. These samples (SO31, SO32, SO33, BE16) are all located in the carbonate/southern area of the catchment. The second cluster (Group 2, n=24) is divided into several sub-clusters. In these samples, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios are generally higher and Ca and Sr concentrations are lower than in samples of the first group. Their Na, Mg, K and Rb concentrations are variable.

To improve the discrimination of suspended sediment sources, the variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratios were investigated using scatter plots (Figure 3.5). Soil and suspended sediment samples exhibited large variations in $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and chemical element ratios, suggesting that they were supplied by contrasting soil sources. High Ca/Sr combined with low K/Sr, 1/Sr, Rb/Sr and Na/Sr ratios indicated a carbonate component whereas low Ca/Sr associated with high K/Sr, 1/Sr, Rb/Sr and Na/Sr ratios were indicative of a silicate component. The first group of soil samples (SO31, SO32, SO33, BE16) displayed contrasting $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratios compared to those of the second cluster. Furthermore, two additional source samples (SO12, SO35) from the second cluster indicated by a red arrow in Figure 3.5 exhibited $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratio values comparable to those of the soil samples from the first cluster.

These six soil samples (BE16, SO12, SO31; SO32, SO33 and SO35, represented with black circles on Figure 3.5) were discriminated from the remaining soil samples and characterized by lower $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, K/Sr, 1/Sr, Rb/Sr and Na/Sr ratios (Figure 3.5a,c,d) and higher Ca/Sr ratios (Figure 3.5b,e). Mg/Sr ratios did not discriminate between the two sources as the mean Mg/Sr ratios estimated in carbonate soils and silicate soils were similar. These six soil samples displayed the lowest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios (between 0.712625 and 0.717815) suggesting a higher carbonate component compared to the

remaining soil samples. Consequently, they were classified as carbonate soil samples and the remaining samples as silicate soil samples.

Suspended sediment samples did not plot along a mixing line between the carbonate and silicate soil source samples with the exception of suspended sediment from the third flood event that plotted with soil samples using Rb/Sr ratios (Figure 3.5d). The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios therefore were measured in the $<63\ \mu\text{m}$ and $<2\ \mu\text{m}$ fractions of select soil samples ($n=8$) (Annexe A - Tables A3-4-5). The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in the $<63\ \mu\text{m}$ fraction (0.716178-0.724667) were slightly higher than in the $<2\ \mu\text{m}$ fraction but elemental ratios were slightly lower or higher depending on soil samples. Suspended sediment samples did not match with the $<63\ \mu\text{m}$ fraction of soil source samples. However, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in the $<2\ \mu\text{m}$ fraction were even lower than in the $<63\ \mu\text{m}$ fraction, with ratios ranging between 0.713099 and 0.722535 and suspended sediment samples plotted with the $<2\ \mu\text{m}$ fraction of soil samples using K/Sr, Ca/Sr, 1/Sr, Rb/Sr and Mg/Sr elemental ratios. This was not observed for Na/Sr ratios which have very high values (524-1170) and were thus enriched Na concentrations in the $<2\ \mu\text{m}$ fraction relative to the other samples.

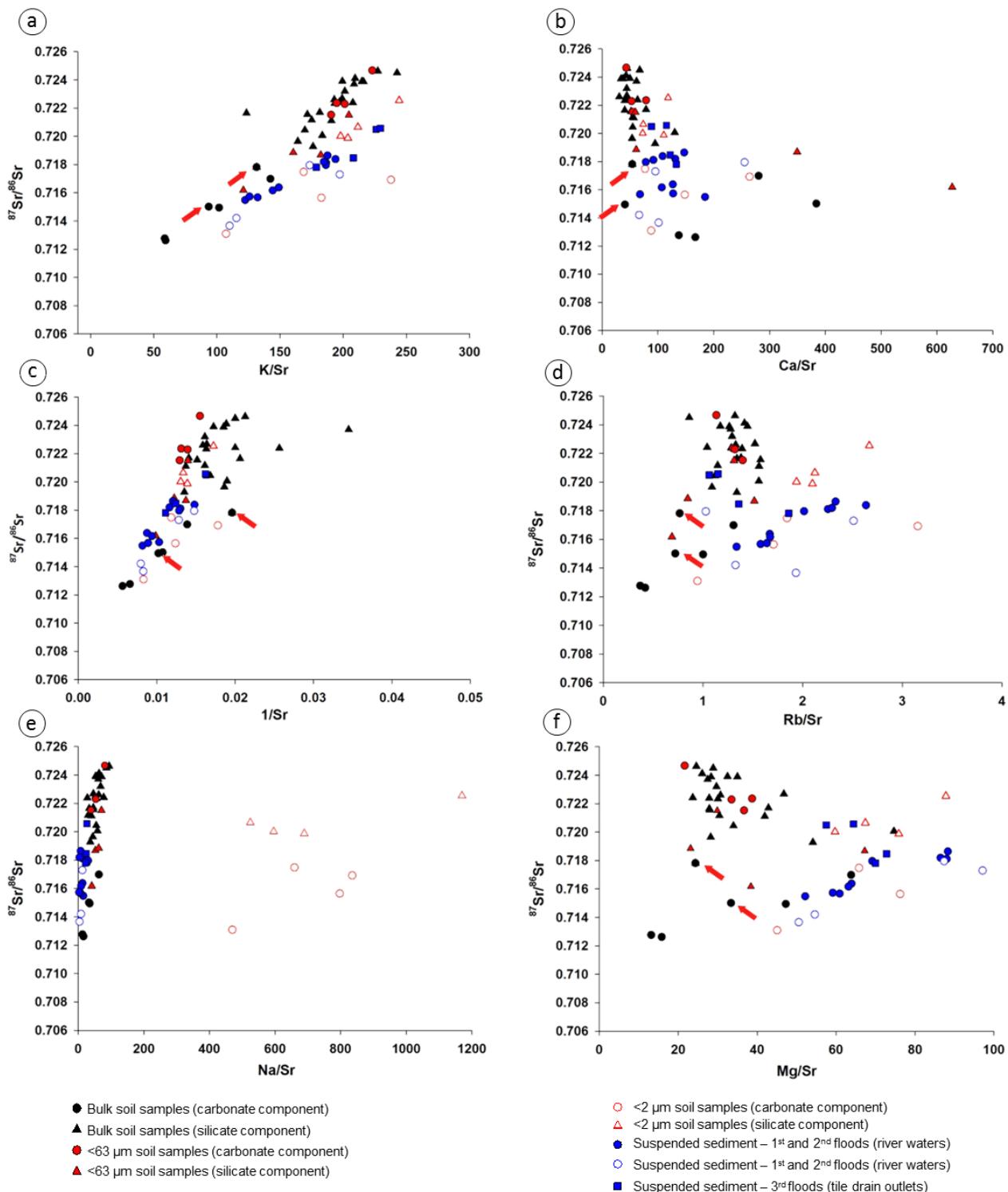


Figure 3.5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs K/Sr (a), Ca/Sr (b), $1/\text{Sr}$ (c), Rb/Sr (d), Sr/Na (e) and Mg/Sr (f) for suspended sediment, <2 mm, <63 µm and <2 µm fraction of soil samples. Red arrows indicate the two soil additional soil samples used to define the carbonate end-member using scatter plots.

1.3.4. Preliminary quantification of source contributions to suspended sediment

In this cultivated catchment, results indicated that Sr isotopic signatures varied according to the particle size fraction analyzed (*i.e.* <2 mm, <63 μm and <2 μm). Accordingly, suspended sediment may be interpreted as a mixture of two end-members characterized by different source soil particle size fractions depending on the flood intensity.

Sr isotopic signatures significantly discriminated between the <2 mm fraction of soil samples and suspended sediment from the two first flood events (MW $p=0.000$) though not the last flood event (MW $p=0.172$). This suggests, in combination with the figures above (Figure 3.3 and Figure 3.5), that the <2 mm fraction of soil samples could be used as a source of suspended sediment during the last flood event. Mann-Whitney tests were then performed to assess the ability of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios to discriminate between the <2 mm fraction of soil samples and the <63 and <2 μm fractions, respectively. Results reported the absence of significant differences between the <2 mm and <63 μm fractions (MW $p=0.115$) but they showed significant differences between the <2 mm and <2 μm fractions (MW $p<0.042$). Furthermore, no significant difference was observed between the <2 μm fraction of soil and suspended sediment collected during the two first flood events (MW $p=0.242$). These results suggest that the <2 μm and the <2 mm fraction of soil samples should be modelled as suspended sediment sources depending on hydrological conditions in the Louroux catchment as they control the particle size fractions transported in suspension.

As $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in soil samples reflect the mixing of carbonate and silicate source soils, the respective contributions of these two end-members to the suspended sediment were modelled (Eq. 1). $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations measured in the <2 μm and in the <2 mm fractions of soil samples were used to respectively investigate end-members contributions during the two first flood events and during the third flood event.

Table 3.1. Mean and Standard Deviation for Sr isotopic signatures, Sr concentrations (mg kg^{-1}) for the different end-members.

End-Members		$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	Sr
<2 μm	Carbonate soil samples	0.715222 \pm 7	86 \pm 7
	Silicate soil samples	0.720113 \pm 8	73 \pm 6
<2 mm	Carbonate soil samples	0.715024 \pm 8	107 \pm 9
	Silicate soil samples	0.722316 \pm 17	55 \pm 4

Results (Figure 3.6a,b,c) indicate that carbonate soil contributions were the highest during the two first flood events when the <2 μm fraction contributed to suspended sediment (mean carbonate contributions of 61% and 65%) compared to the third flood where the <2 mm fraction of silicate soils

contributed the highest proportions to the suspended sediment (mean silicate contribution of 72%) (Figure 3.6, Annexe A - Table A6 for all modelling results).

For the two first flood events, the $<2 \mu\text{m}$ fraction of the carbonate source soil end-member had the highest contributions, estimated between 73% to the GB station and 100% to the BR station, to the suspended sediment collected in the carbonate area located in the southern part of the catchment. In the northern part of the catchment, the silicate soil contributions remained in the same order of magnitude during the two first flood events with respective mean silicate contributions of 59% and 52%. During the third flood event, the $<2 \text{ mm}$ silicate soil end-member contributed the most to suspended sediment with contributions ranging between 55% and 86%, with a mean contribution of 72%.

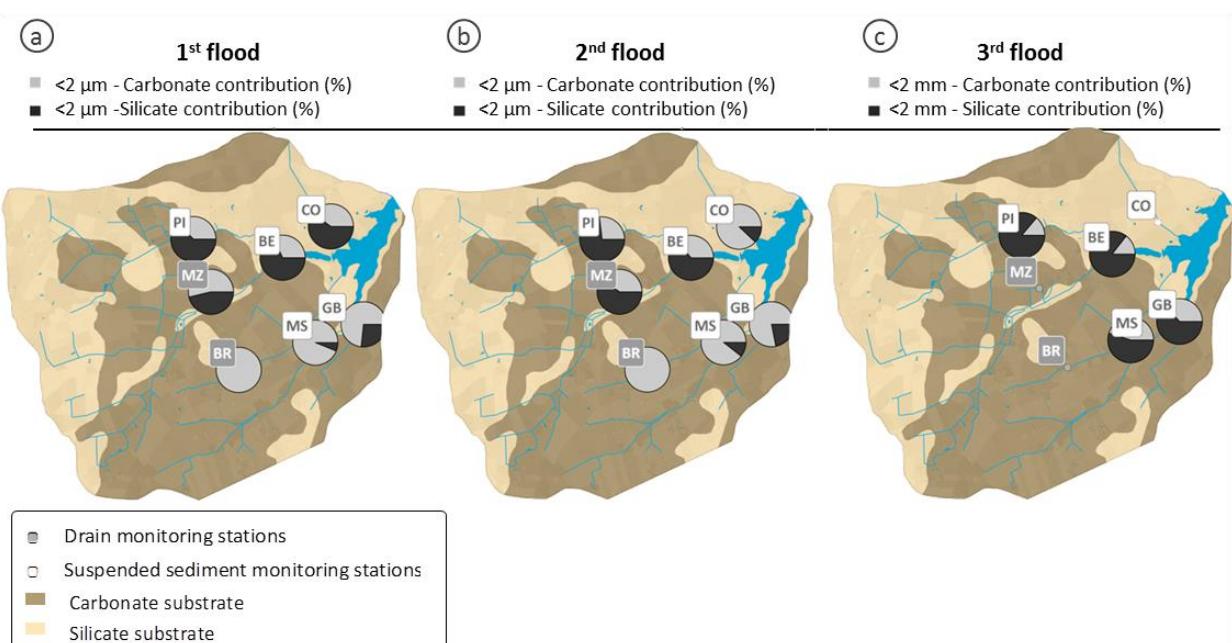


Figure 3.6. Carbonate and silicate soil contributions (%) to suspended sediment using $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the $<2 \mu\text{m}$ fraction for the two first flood events (a and b) and in the $<2 \text{ mm}$ fraction for the third flood event (c).

1.4 Discussion

1.4.1. Temporal variability of suspended sediment characteristics and source effect

1.4.1.a. Impact of flood events on suspended sediment transport

In the Louroux catchment, suspended sediment concentrations and water discharge exhibited clockwise hysteresis loops during the three flood events. Hysteresis patterns characterize suspended sediment stock and exhaustion and are commonly used to investigate their sources during floods (Williams, 1989; Sherriff et al., 2016). Clockwise hysteresis loops suggest that suspended sediment originates from a close source and reflects the progressive decline in suspended sediment

availability. They are commonly attributed to a depletion of available sediment before the maximum discharge is reached (Walling, 1977; Horowitz, 2008). Accordingly, suspended sediment transported in the Louroux catchment during the three flood events may correspond to material previously accumulated in the river bed and easily remobilized during the rising limb of the flood and/or to sediment that originated from eroded sources located relatively close to the monitoring stations.

Suspended sediment exported from local sources depends on the quantity of sediment previously stored in the river channels. In agricultural lowland catchments, higher suspended sediment concentrations may be observed in winter due to the higher sensitivity of soils to erosion during this season (Delmas et al., 2011). A previous study demonstrated that in the Louroux catchment, suspended sediment transported during floods almost exclusively originate from surface sources (Foucher et al., 2015), suggesting that the clockwise hysteresis loops observed may be attributed to the erosion of local surface sources, transiting the highly connected drainage network, rather than to the resuspension of channel bed sediment as observed in lowland catchments in the UK (Evans et al., 2003; Collins and Walling, 2006).

1.4.1.b. Source discrimination with $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios have been commonly used in sediment provenance studies in large river basins. However, less attention has been focused on local, small-scale catchments. Indeed, using $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios may be challenging at smaller scales because of potential local heterogeneities, which may be homogenized in larger scale research. In the Louroux catchment, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in soil and suspended sediment samples presented significant variations and highlighted the utility of using this tracer for tracing sediment source dynamics at smaller spatial scales.

In this study, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in soil and suspended sediment samples varied according to the particle size and to the hydrological conditions. As $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the suspended sediment did not plot along a mixing line between the carbonate and silicate <2 mm soil samples, Sr isotopic signatures were investigated in the <63 and <2 μm fractions of soil samples. When investigating $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios versus elemental ratios (K/Sr, Ca/Sr, 1/Sr, Rb/Sr), the <2 μm fraction of soil samples was shown to provide a more appropriate source for suspended sediment transported in the river network. Na/Sr ratios did not discriminate between the different soil fractions and suspended sediment samples. Indeed, the <2 μm fraction of soil samples was enriched in Na compared to suspended sediment samples (Annexe A - Table A3 and Table A5). These high concentrations may be explained by a supply in Na originating from the deionized water used to isolate the <2 μm particles. This contamination may have induced the crystallization of minerals

containing Na on fine particles, such as clays, when the solutions with $<2 \mu\text{m}$ particles were dried. Overall, the use of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios provided the best discrimination between suspended sediment samples and between the different soil fractions. A clear discrimination between suspended sediment samples from the two first flood events with signatures similar to that of the $<2 \mu\text{m}$ fraction of soil samples and suspended sediment from the third flood event with signatures similar to that of the $<2 \text{ mm}$ fraction of soil samples was observed (Figure 3.7).

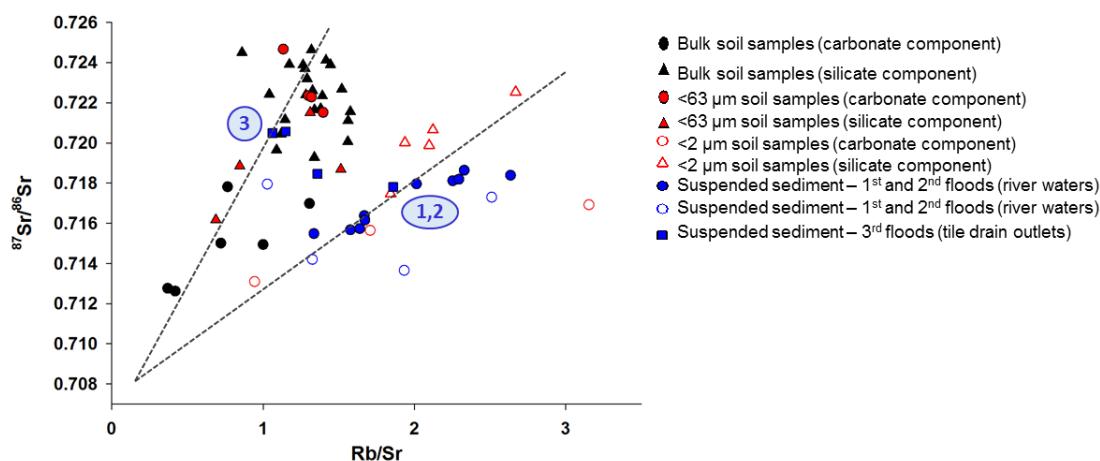


Figure 3.7. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs Rb/Sr in carbonate rocks, suspended sediment, carbonate and silicate soil samples (bulk, $<63 \mu\text{m}$ and $<2 \mu\text{m}$ fractions). 1,2,3: suspended sediment sampling campaign number.

These results indicate that in the Louroux catchment, suspended sediment collected during the two first floods, which plotted with the $<2 \mu\text{m}$ fraction of soil samples, corresponded to fine particles whereas suspended sediment from the third flood, that plotted with $<2 \text{ mm}$ soil samples, corresponded to a coarser fraction. The particle size composition of fine sediment exerts a significant control on its mineralogy and geochemistry. According to Walling et al. (2000), material sieved to $<2 \mu\text{m}$ will be mainly composed of primary or secondary silicate minerals, whereas larger particle size fractions will be dominated by quartz. Results of the current research indicate that the $<2 \mu\text{m}$ fraction of soil samples is characterized by a significant increase of the Rb/Sr ratios and a decrease or a stagnation of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios compared to those measured in larger particle size fractions. These variations illustrate differences in the mineralogy of the analyzed particle size fractions. The increase of Rb/Sr ratios in the $<2 \mu\text{m}$ fraction likely reflects an enrichment in secondary minerals, such as clays. However, to strengthen the Sr isotopic discrimination between the different particle size fractions of soils and the suspended sediment samples according to flood events, additional mineralogical analyses should be performed on the $<2 \mu\text{m}$, $<63 \mu\text{m}$ and $<2 \text{ mm}$ fractions of soil samples, suspended sediment and separate minerals. The particle size distribution in soil samples should also be investigated to evaluate the proportion of the $<2 \mu\text{m}$ fraction compared to the coarser fractions. Mineralogical and particle size measurements related to $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values could provide

additional information, demonstrating that very fine particles were transported through this river network.

1.4.2. Variations in source contributions to suspended sediment and modelling implications

To estimate the relative contribution of the $<2\text{ }\mu\text{m}$ and $<2\text{ mm}$ fractions of carbonate and silicate soils to suspended sediment depending on the flood event, a mixing equation incorporating $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations was used. This approach illustrated the interest of conducting $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio measurements in different particle size fractions and under varying hydrological conditions. Although several studies have used geochemical properties (mostly major and trace element concentrations) in mixing models to estimate the contribution of different lithological sources (Olley and Caitcheon, 2000; Douglas et al., 2003; Evrard et al., 2011; Navratil et al., 2012b) or investigated the relation between the chemical and isotopic composition of the sediment transported under varying hydrological conditions and their particle size distribution (Bouchez et al., 2011a; Bouchez et al., 2011b; Lupker et al., 2011), fewer studies estimated sediment sources contributions after conducting geochemical measurements on different particle size fractions of source material (Navratil et al., 2012; Haddadchi et al., 2015).

The preliminary results obtained in the Louroux catchment showed the importance of modelling and estimating source contributions to the suspended sediment with different particle size fractions depending on the flood intensities. These results highlighted that sediment fingerprinting approaches conducted in this catchment and in other similar environments should target multiple particle size fractions: the $<2\text{ }\mu\text{m}$ fraction in lower intensity events, and during more intense floods when a coarser fraction of sediment is transported, the $<2\text{ mm}$ fraction of soil samples should be used to characterize the potential sources of sediment. Ultimately, the variations of Sr isotopic signatures observed in the different particle size fractions also indicated that $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios are not a straightforward tracer of sediment sources in this catchment. Indeed, the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio must be traced across multiple particle size fractions in order to provide sediment source material. It is likely that there are other sediment fingerprint parameters that require a particle size fraction specific approach to accurately quantify sediment source dynamics.

1.4.3. Sediment transfer through the drainage network

The $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were an effective tracer of suspended sediment sources when incorporating particle size. However, the specific role of the drainage network in the transport and the supply of

sediment from tile drains to the river remains difficult to quantify. Sr isotopic measurements revealed that strong variations in signatures were observed in the different fractions of soils and in suspended sediment over the three flood events in the Louroux catchment. Hillslopes and drains mainly supplied very fine (clay-sized) particles to the rivers. Accordingly, the Sr isotopic signatures of suspended sediment coincided with the signatures of the <2 µm fraction of soil samples during the two first floods. The dense drainage system, with more than 220 tile drain outlets found across the catchment, could provide the main pathway for sediment delivery to the rivers during these events. These findings are consistent with the results obtained by [Foucher et al. \(2015\)](#), who found that sediment exported from the drains was modelled to originate almost exclusively from surface sources ($99 \pm 2.5\%$), suggesting that the drainage system facilitates the transfer of particles from the soil surface to the rivers in this cultivated catchment. The elevated contribution of the drainage system in the delivery of sediment to the rivers was also highlighted by other studies conducted in France and in the UK ([Russell et al., 2001](#); [Sogon et al., 1999](#); [Walling et al., 2002](#)). However, the migration of particles through the soil profile still remains poorly documented although the presence of macropores was suggested to provide a preferential pathway for particle transport in these drained environments ([Jagercikova et al., 2014](#); [Walling et al., 2002](#)).

Sr isotopes were used to provide additional information on the lithological sources of material transiting the drains. Lower $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were observed between the bulk and <2 µm fractions of soil samples. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment collected at tile drain outlets were lower than the ratios measured in suspended sediment directly collected in the river and even lower for the BR station than most of the signatures measured in the <2 µm fraction of soil samples, suggesting that the material transiting the drain may be finer than 2 µm. These downward trends observed in $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios may indicate that particles transiting the drains are finer than most particles transported in the river. This is consistent with a previous study demonstrating that sediment exported by the drainage system was enriched in ^{137}Cs compared to soil samples. A significant particle size selection process likely occurs in the soil profile, with the migration of the finest particles through the drainage system ([Foucher et al., 2014](#)). Particle size measurements also showed that suspended sediment collected at tile drain outlets were very fine, with 50% of the particles having a diameter lower than 1 µm ([S. Salvador-Blanes, unpublished results](#)), which is consistent with our observations.

These results highlighted the importance of considering tile drains as a preferential source of sediment. The material transiting the drainage system and contributing to the supply of sediment to the rivers consists of very fine material (<2 µm) originating from surface soils. Accordingly, it is crucial to improve the management of the drain system in order to reduce the amount of sediment that

they supply to the rivers. This is particularly true in winter, when flow from the drains is high and contributes significantly to sediment export.

1.5 Conclusions

This study highlighted the potential of Sr isotope measurements to identify suspended sediment sources and quantify their dynamics. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were used to discriminate between the potential sources of suspended sediment and to identify differences in their characteristics depending on flood intensity. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment varied in space and time reflecting changes in sources. The Sr isotopic signatures significantly varied in the different fractions of soil samples (*i.e.* <2 mm, <63 μm , and <2 μm) and in suspended sediment, reflecting the preferential transfer of fine particles during sediment transport in the Louroux catchment. The particle size of sediment transiting the river network changes with hydrological conditions and our results suggest it may be important to fractionate source material to different particle sizes depending on flood intensity.

A preliminary modeling approach used $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations to estimate the relative contribution of sources to the suspended sediment. Results demonstrated that different particle size fractions of sources can be used to estimate their respective contributions to the suspended sediment depending on hydrological conditions. Very fine sediment was shown to be exported from the tile drains, which demonstrates the need to better manage material supplied by tile drains to the river network. The creation of retention ponds could for instance trap this fine material and prevent it from reaching the river system.

These results highlighted the need to focus on the geochemical composition of soils instead of bedrock lithology to potentially better constrain sediment sources and pathways at the catchment scale in intensively cultivated environments. These investigations will improve our understanding of soil erosion processes and sediment supply in similar catchments. In the future, material separated to different particle size fractions could be used to identify the sources supplying sediment during floods of varying magnitude. For a better representativeness, suspended sediment should be monitored with high resolution sampling to characterize geochemical ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, elemental concentrations) and potential source variations over one single flood event. Additional radionuclide measurements (^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$, ^7Be) should also be conducted in order to identify parameters that may help better discriminate the contribution of tile drain material to rivers.

Acknowledgements

This work received financial support from the Loire-Brittany Water Agency (TrackSed and Drastic projects). Marion Le Gall received a PhD fellowship from CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, France) and the DGA (Direction Générale de l'Armement, France), French MoD.

2. Références bibliographiques Chapitre 3, article *Chemical Geology*

- Albarède, F., 1995. Introduction to Geochemical Modeling. Cambridge University Press.
- Allègre, C.J., Dupré, B., Philippe, N., Gaillardet, J., 1996. Sr-Nd-Pb isotope systematics in Amazon and Congo River systems : Constraints about erosion processes. *Chemical Geology*, 131: 93-112.
- Asahara, Y., Tanaka, T., Kamioka, H., Nishimura, A., Yamazaki, T., 1999. Provenance of the north Pacific sediments and process of source material transport as derived from Rb-Sr isotopic systematics. *Chemical Geology*, 158: 271-291.
- Audry, S., Schafer, J., Blanc, G., Jouanneau, J.M., 2004. Fifty-year sedimentary record of heavy metal pollution (Cd, Zn, Cu, Pb) in the Lot River reservoirs (France). *Environmental Pollution*, 132(3): 413-26.
- Beusen, A.H.W., Dekkers, A.L.M., Bouwman, A.F., Ludwig, W., Harrison, J., 2005. Estimation of global river transport of sediments and associated particulate C, N, and P. *Global Biogeochemical Cycles*, 19(4).
- Bouchez, J., Gaillardet, J., France-Lanord, C., Maurice, L., Dutra-Maia, P., 2011a. Grain size control of river suspended sediment geochemistry: Clues from Amazon River depth profiles. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 12(3).
- Bouchez, J., Métivier, F., Lupker, M., Maurice, L., Perez, M., Gaillardet, J., France-Lanord, C., 2011b. Prediction of depth-integrated fluxes of suspended sediment in the Amazon River: particle aggregation as a complicating factor. *Hydrological Processes*, 25(5): 778-794.
- Brennan, S.R., Fernandez, D.P., Mackey, G., Cerling, T.E., Bataille, C.P., Bowen, G.J., Wooller, M.J., 2014. Strontium isotope variation and carbonate versus silicate weathering in rivers from across Alaska: Implications for provenance studies. *Chemical Geology*, 389: 167-181.
- Brenot, A., Baran, N., Petelet-Giraud, E., Négré, P., 2008. Interaction between different water bodies in a small catchment in the Paris basin (Brévilles, France): Tracing of multiple Sr sources through Sr isotopes coupled with Mg/Sr and Ca/Sr ratios. *Applied Geochemistry*, 23(1): 58-75.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Ottlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene*, 1: 23-34.
- Collins, A.J., Walling, D.E., 2006. Investigating the remobilization of fine sediment stored on the channel bed of lowland permeable catchments in the UK. *Sediment Dynamics and the Hydromorphology of Fluvial Systems (Proceedings of a symposium, IAHS)*: 471-479.
- Collins, A.J., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1997. Source type ascription for fluvial suspended sediment based on a quantitative composite fingerprinting technique. *Catena*, 29: 1-27.
- Collins, A.L., Zhang, Y., Walling, D.E., Grenfell, S.E., Smith, P., 2010. Tracing sediment loss from eroding farm tracks using a geochemical fingerprinting procedure combining local and genetic algorithm optimisation. *Science of the Total Environment*, 408(22): 5461-71.
- Coynel, A., Schäfer, J., Blanc, G., Bossy, C., 2007. Scenario of particulate trace metal and metalloid transport during a major flood event inferred from transient geochemical signals. *Applied Geochemistry*, 22(4): 821-836.
- Delmas, M., Cerdan, O., Chevron, B., Mouchel, J.M., 2011. River basin sediment flux assessments. *Hydrological Processes*, 25(10): 1587-1596.
- Douglas, G., Gray, C.M., Hart, B., Beckett, R., 1995. A strontium isotopic investigation of the origin of suspended particulate matter (SPM) in the Murray-Darling River system, Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(18): 3799-3815.
- Eikenberg, J., Tricca, A., Vezzu, G., Stille, P., Bajo, S., Ruethi, M., 2001. $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}/^{224}\text{Ra}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ isotope relationships for determining interactions between ground and river water in the upper Rhine valley. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54: 133-162.
- European Environment Agency, EEA-ETC/TE 2002. CORINE land cover update. I&CLC2000 project. Technical Guidelines. .
- Evans, D.J., Johnes, P., Lawrence, D.S., 2003. Suspended and bed load sediment transport dynamics in two lowland UK streams—storm integrated monitoring. *Erosion and sediment transport measurement in rivers: technological and methodological advances. International Association of Hydrological Sciences*: 103-110.

- Evrard, O., Navratil, O., Ayraut, S., Ahmadi, M., Némery, J., Legout, C., Lefèvre, I., Poirel, A., Bonté, P., Esteves, M., 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surface Processes and Landforms*, 36(8): 1072-1089.
- Faure, G., 1986. *Principles of Isotopic Geology*. Wiley, New York.
- Foucher, A., Laceby, J.P., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Le Gall, M., Lefevre, I., Cerdan, O., Rajkumar, V., Desmet, M., 2015a. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: the application of a thorium-based particle size correction in sediment fingerprinting. *Geomorphology*.
- Foucher, A., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Simonneau, A., Chapron, E., Courp, T., Cerdan, O., Lefèvre, I., Adriaensen, H., Lecompte, F., Desmet, M., 2014. Increase in soil erosion after agricultural intensification: Evidence from a lowland basin in France. *Anthropocene*, 7: 30-41.
- Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., Negrel, P., 1997. Chemical and physical denudation in the Amazon River Basin. *Chemical Geology*, 142: 141-173.
- Gateuille, D., Evrard, O., Lefèvre, I., Moreau-Guigon, E., Alliot, F., Chevreuil, M., Mouchel, J.M., 2014. Mass balance and decontamination times of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in rural nested catchments of an early industrialized region (Seine River basin, France). *Science of the Total Environment*, 470-471: 608-17.
- Gay, A., Cerdan, O., Delmas, M., Desmet, M., 2014. Variability of suspended sediment yields within the Loire river basin (France). *Journal of Hydrology*, 519: 1225-1237.
- Gourdin, E., Evrard, O., Huon, S., Lefèvre, I., Ribolzi, O., Reyss, J.-L., Sengtaheuanghong, O., Ayraut, S., 2014. Suspended sediment dynamics in a Southeast Asian mountainous catchment: Combining river monitoring and fallout radionuclide tracers. *Journal of Hydrology*, 519: 1811-1823.
- Graustein, 1989. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measure the sources and flow of strontium in terrestrial ecosystems. Springer, New York.
- Grosbois, C., Negrel, P., Fouillac, C., Grimaud, D., 1999. Dissolved load of the Loire River: chemical and isotopic characterization. *Chemical Geology*, 170(1-4): 179-201.
- Haddadchi, A., Olley, J., Pietsch, T., 2015. Variable source contributions to river bed sediments across three size fractions. *Hydrological Processes*.
- Horowitz, A.J., 2008. Determining annual suspended sediment and sediment-associated trace element and nutrient fluxes. *Science of the Total Environment*, 400(1-3): 315-43.
- Jagercikova, M., Cornu, S., Le Bas, C., Evrard, O., 2014. Vertical distributions of ^{137}Cs in soils: a meta-analysis. *Journal of Soils and Sediments*, 15(1): 81-95.
- King, K.W., Fausey, N.R., Williams, M.R., 2014. Effect of subsurface drainage on streamflow in an agricultural headwater watershed. *Journal of Hydrology*, 519: 438-445.
- Koiter, A.J., Owens, P.N., Petticrew, E.L., Lobb, D.A., 2013. The behavioural characteristics of sediment properties and their implications for sediment fingerprinting as an approach for identifying sediment sources in river basins. *Earth-Science Reviews*, 125: 24-42.
- Laceby, J.P., Olley, J., Pietsch, T.J., Sheldon, F., Bunn, S.E., 2015. Identifying subsoil sediment sources with carbon and nitrogen stable isotope ratios. *Hydrological Processes*, 29(8): 1956-1971.
- Navratil, O., Evrard, O., Esteves, M., Ayraut, S., Lefèvre, I., Legout, C., Reyss, J.-L., Gratiot, N., Némery, J., Mathys, N., Poirel, A., Bonté, P., 2012a. Core-derived historical records of suspended sediment origin in a mesoscale mountainous catchment: the River Bléone, French Alps. *Journal of Soils and Sediments*, 9(1-16).
- Nérel, P., Allègre, C.J., Dupré, B., Lewin, E., 1993. Erosion sources determined by inversion of major and trace element ratios and strontium isotopic ratios in river water: The Congo Basin case. *Earth and Planetary Science Letters*, 120: 59-76.
- Nérel, P., Petelet-Giraud, E., 2004. Strontium isotopes as tracers of groundwater-induced floods: the Somme case study (France). *Journal of Hydrology*, 305(1-4): 99-119.
- Ollivier, P., Radakovich, O., Hamelin, B., 2011. Major and trace element partition and fluxes in the Rhône River. *Chemical Geology*, 285(1-4): 15-31.
- Owens, P.N., Batalla, R.J., Collins, A.J., Gomez, B., Hicks, D.M., Horowitz, A.J., Kondolf, G.M., Marden, M., Page, M.J., Peacock, D.H., Petticrew, E.L., Salomons, W., Trustrum, N.A., 2005. Fine-grained sediment in river systems: environmental significance and management issues. *River Research and Applications*, 21(7): 693-717.
- Petelet-Giraud, E., Nérel, P., 2007. Geochemical flood deconvolution in a Mediterranean catchment (Hérault, France) by Sr isotopes, major and trace elements. *Journal of Hydrology*, 337(1-2): 224-241.
- Pierson-Wickmann, A.-C., Aquilina, L., Weyer, C., Molénat, J., Lischied, G., 2009. Acidification processes and soil leaching influenced by agricultural practices revealed by strontium isotopic ratios. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73(16): 4688-4704.
- Priadi, C., Bourgeault, A., Ayraut, S., Gourlay-France, C., Tusseau-Vuillemin, M.H., Bonte, P., Mouchel, J.M., 2011. Spatio-temporal variability of solid, total dissolved and labile metal: passive vs. discrete sampling evaluation in river metal monitoring. *Journal of Environmental Monitoring*, 13(5): 1470-9.
- Probst, A., El Gh'mari, D., Aubert, D., Fritz, B., McNutt, R., 2000. Strontium as a tracer of weathering processes in a silicate catchment polluted by acid atmospheric inputs, Strengbach, France. *Chemical Geology*, 170: 203-219.
- Rasplus, L., Macaire, J.J., Alcaydé, G., 1982. Carte géologique de Bléré au 1:5000, Editions BRGM.
- Roy, S., Gaillardet, J., Allègre, C.J., 1999. Geochemistry of dissolved and suspended loads of the Seine river, France: Anthropogenic impact, carbonate and silicate weathering. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 63(9): 1277-1292.

Références

- Russell, R., Walling, D.E., Hodgkinson, R.A., 2001. Suspended sediment sources in two small lowland agricultural catchments in the UK. *Journal of Hydrology*, 252(1-4): 1-24.
- Semhi, K., Clauer, N., Probst, J.L., 2000. Strontium isotope compositions of river waters as records of lithology-dependent mass transfers: the Garonne river and its tributaries (SW France). *Chemical Geology*, 168: 173-193.
- Sherriff, S.C., Rowan, J.S., Fenton, O., Jordan, P., Melland, A.R., Mellander, P.-E., hHallachán, Ó., 2016. Storm Event Suspended Sediment-Discharge Hysteresis and Controls in Agricultural Watersheds: Implications for Watershed Scale Sediment Management. *Environmental Science & Technology*, 50(4): 1769-1778.
- Smith, H.G., Blake, W.H., 2014. Sediment fingerprinting in agricultural catchments: A critical re-examination of source discrimination and data corrections. *Geomorphology*, 204: 177-191.
- Smith, H.G., Dragovich, D., 2009. Interpreting sediment delivery processes using suspended sediment-discharge hysteresis patterns from nested upland catchments, south-eastern Australia. *Hydrological Processes*, 23(17): 2415-2426.
- Vanmaercke, M., Poesen, J., Govers, G., Verstraeten, G., 2015. Quantifying human impacts on catchment sediment yield: A continental approach. *Global and Planetary Change*, 130: 22-36.
- Verstraeten, G., Poesen, J., 1999. The nature of small-scale flooding, muddy floods and retention pond sedimentation in central Belgium. *Geomorphology*, 29: 275-292.
- Viers, J., Dupre, B., Gaillardet, J., 2009. Chemical composition of suspended sediments in World Rivers: New insights from a new database. *Science of the Total Environment*, 407(2): 853-68.
- Walling, D.E., Collins, A.L., 2008. The catchment sediment budget as a management tool. *Environmental Science & Policy*, 11(2): 136-143.
- Walling, D.E., Fang, D., 2003. Recent trends in the suspended sediment loads of the world's rivers. *Global and Planetary Change*, 39(1-2): 111-126.
- Walling, D.E., Owens, P.N., Waterfall, B.D., Graham, J.L., Wass, P.D., 2000. The particle size characteristics of fluvial suspended sediment in the Humber and Tweed catchments, UK. *Science of the Total Environment*, 251/252: 205-222.
- Walling, D.E., Russell, R., Hodgkinson, R.A., Zang, Y., 2002. Establishing sediment budgets for two small lowland agricultural catchments in the UK. *Catena*, 47: 323-353.
- Williams, G.P., 1989. Sediment concentration versus water discharge during single hydrologic events in rivers. *Journal of Hydrology*, 111(1-4): 89-106.
- World Reference Base for Soil Resources, 2006. A framework for international classification, correlation and communication. Food and Agriculture Organization of the United Nations - FAO. IUSS Working Group WRB. World Soil Resources Reports No. 103, Rome, Italy.

3. Investigating temporal dynamics of suspended sediment during flood events with ^{7}Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ measurements in a drained lowland catchment



Marion Le Gall^a, Olivier Evrard^a, Anthony Foucher^b, J. Patrick Laceby^a, Sébastien Salvador-Blanes^b, Louis Manière^b, Irène Lefèvre^a, Olivier Cerdan^c, Sophie Ayraut^a

^a Laboratoire des Sciences et de l'Environnement, UMR 8212 (CEA/CNRS/UVSQ), Université Paris-Saclay, Domaine du CNRS, Avenue de la Terrasse, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^b E.A 6293, Laboratoire GéoHydroSystèmes Continentaux (GéHCO), Université F. Rabelais de Tours, Faculté des Sciences et Techniques, Parc de Grandmont, 37200 Tours, France

^c Département Risques et Prévention, Bureau de Recherches Géologiques et Minières, Orléans (France)

Submitted on 19 September 2016 – Under corrections

Abstract

Soil erosion is recognized as one of the main processes of land degradation in agricultural areas. High suspended sediment loads, often generated from eroding agricultural landscapes, are known to degrade downstream environments. Accordingly, there is a need to understand their dynamics during flood events. Suspended sediment was therefore sampled in the river network and at tile drain outlets during five flood events in a lowland drained catchment in France. Source and sediment fallout radionuclide concentrations (^{7}Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) were measured to quantify the fraction of recently eroded particles transported during floods and their residence time. Results indicate that the mean fraction of recently eroded sediment, estimated for the entire Louroux catchment, increased from $40 \pm 20\%$ to $80 \pm 20\%$ between December 2013 and February 2014, and from $65 \pm 20\%$ to $80 \pm 20\%$ in January 2016. These results demonstrate an initial flush of sediment previously accumulated in the river channel before the increasing supply of recent sediment directly eroded from the hillslopes during subsequent events. This research highlights the utility of coupling continuous river monitoring and fallout radionuclide measurements to increase our understanding of sediment dynamics and improve the management of soil and water resources in agricultural catchments.

3.1 Introduction

Intensive agricultural activities often result in an increase of erosion and fine sediment supply to the river network. An excessive supply of fine sediment to water bodies may result in the sedimentation and the siltation of channels, reservoirs and estuaries (Vörösmarty et al., 2003). Furthermore, fine sediment may transport contaminants such as metals, radionuclides, organic compounds and nutrients (Ayraut et al., 2012; Chartin et al., 2013; Owens and Walling, 2002). These substances are

mainly associated with the <63 µm fraction of particles and they largely contribute to the decline of water quality (Owens et al., 2005).

Currently, there is a need to improve our understanding of sediment generation, transport and deposition processes in agricultural catchments in order to design efficient sediment management measures and reduce the fine particle supply to water bodies. This is particularly important in cultivated catchments of Northwestern Europe (Russell et al., 2001; Walling et al., 2002) where the intensification of agriculture after World War II resulted in an increase of sediment yields (Vanmaercke et al., 2015). Knowledge of erosion processes, sediment sources and dynamics is particularly limited for wetland catchments where tile drains were installed after 1945 to produce crops in these former cattle breeding areas (King et al., 2014; Sogon et al., 1999). Although several studies suggest that the drainage system may increase the connectivity between the cultivated hillslopes and the river network (Foucher et al., 2015a; Walling and Collins, 2008), additional information is needed to characterize the nature and the transit times of the material transported through these systems.

Natural fallout radionuclides (${}^7\text{Be}$, ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) with different half-lives were shown to be useful tracers to quantify sediment dynamics in rivers (Dominik et al., 1987a; Gartner et al., 2012; Le Cloarec et al., 2007). ${}^7\text{Be}$ is a short-lived cosmogenic radionuclide ($t_{1/2}=53$ days) generated in the stratosphere and the upper troposphere by cosmic ray spallation of nitrogen and oxygen (Brost et al., 1991). In contrast, ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ($t_{1/2} = 22.3$ years) is a longer-lived radionuclide, which is a product of ${}^{238}\text{U}$ ($t_{1/2}=4.5 \cdot 10^9$ years) that decays into ${}^{226}\text{Ra}$ ($t_{1/2} = 1600$ yr) and ${}^{222}\text{Rn}$ ($t_{1/2}=3.8$ days), a gas which partly remains in soils forming “supported” ${}^{210}\text{Pb}$ and which partly escapes to the atmosphere, generating “unsupported” or “excess” ${}^{210}\text{Pb}$ during its subsequent fallout. Both ${}^7\text{Be}$ and ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ are mainly supplied to the soil surface by precipitation. Once they reach the soil, these radionuclides are strongly bound to fine particles (Taylor et al., 2012).

Measuring these radionuclides in both precipitation (*i.e.* fallout) and sediment provides a way to discriminate between particles that have been recently eroded on hillslopes, enriched in ${}^7\text{Be}$, and material re-suspended from the channel bed, depleted in this radioisotope (Dominik et al., 1987b; Evrard et al., 2010; Matisoff et al., 2005). A further development of this method consists in calculating the ratio of both radioisotopes to determine percentages of recently eroded sediment and the residence times of sediment in river networks (Bonniwell et al., 1999; Evrard et al., 2010; Gourdin et al., 2014; Matisoff et al., 2005). A critique of this approach suggested that the ${}^7\text{Be}$ activity of sediment was controlled by the source of sediment and that subsurface material should be theoretically sheltered from atmospheric fallout (Walling, 2013). One way to address this critique is to apply this method in catchments where sediment is almost exclusively derived from surface

sources exposed to atmospheric fallout. Another challenge associated with this method was that recently mobilized sediment is characterized by a $^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratio similar to that of rainfall. To address this challenge, the analysis of sediment collected in ephemeral flow occurring on hillslopes of the catchment was recommended to characterize the signature of recent sediment sources (Evrard et al., 2016; Gourdin et al., 2014).

In this study, suspended sediment dynamics were investigated in the Louroux catchment (France), a small agricultural catchment (24 km^2) representative of lowland drained areas of Northwestern Europe. Natural fallout radionuclides (^{7}Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) were analyzed for overland flow and sediment samples collected at seven locations in the catchment during the floods that occurred in the 2013-2014 and the 2015-2016 winter floods. Previous research examining ^{137}Cs activities in material transiting the Louroux River indicated that sediment transported during flood events in this catchment almost entirely originated from surface sources (~99%) (Foucher et al., 2015b). The dominance of surface sources exposed to atmospheric fallout in this catchment justifies the application of this method while addressing recent criticisms of this technique (Walling, 2013).

3.2 Results

3.2.1. Flood characteristics

Hydrosedimentary parameters were recorded at seven locations of the Louroux catchment, including five stations installed on the main streams draining to the Louroux pond located at the outlet: the Conteraye (CO), Picarderie (PI), Beaulieu (BE) on the northern tributaries of the pond, and the Masniers (MS) and Grand Bray (GB) stations on the southern tributary. Furthermore, two additional stations monitored tile drain outlets: The Mazère (MZ) (northern tributary) and Brépinière (BR) (southern tributary) stations.

In 2013-2014, the two first floods of the winter season were generated by long-lasting low-intensity rainfall (Figure 3.8a) and they were characterized by similar suspended sediment concentrations. On December 30, 2013, water discharge and suspended sediment concentrations reached maximal values of $0.76 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ and 625 mg L^{-1} , respectively. On January, 29, 2014, these parameters reached maximal values of $0.42 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ and 416 mg L^{-1} respectively. The third flood event that occurred on February, 13, 2014 was more intense (Figure 3.8a) and characterized by the highest water discharge and suspended sediment concentrations recorded during the study period, with values of $1.1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ and 2450 mg L^{-1} . Due to the high cumulative precipitation recorded during this period, soils were saturated and the additional rainfall generated erosion and sediment transport with higher suspended sediment concentrations than during the first events investigated in 2013 (Figure 3.8a). In

2016, the two flood events were characterized by similar water discharges (Figure 3.8b) and suspended sediment concentrations which reached maximal values of $0.43 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ and 357 mg L^{-1} on January 7 and $0.64 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ and 529 mg L^{-1} at the CO station on January 11 (Figure 3.9).

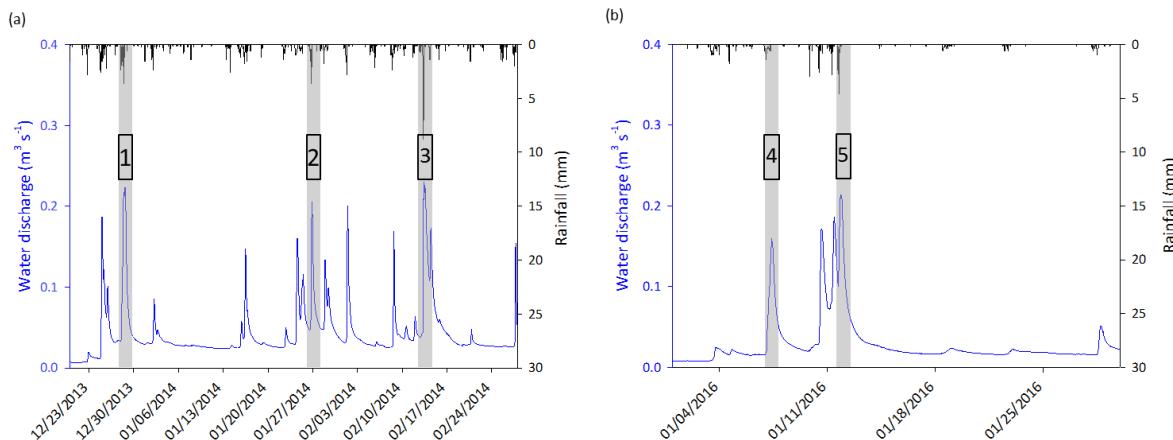


Figure 3.8. Evolution of water discharge ($\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$) (measured at Masniers (MS) station) and precipitation (mm) during the December 2013 to February 2014 (a) and the January 2016 (b) periods. The five monitored flood events (1, 2, 3, 4 and 5) are shown in grey.

During the five flood events monitored, clockwise hysteresis were observed with the record of higher suspended sediment concentrations during the rising limb of the flood compared to the falling limb, for a given value of water discharge (Figure 3.9).

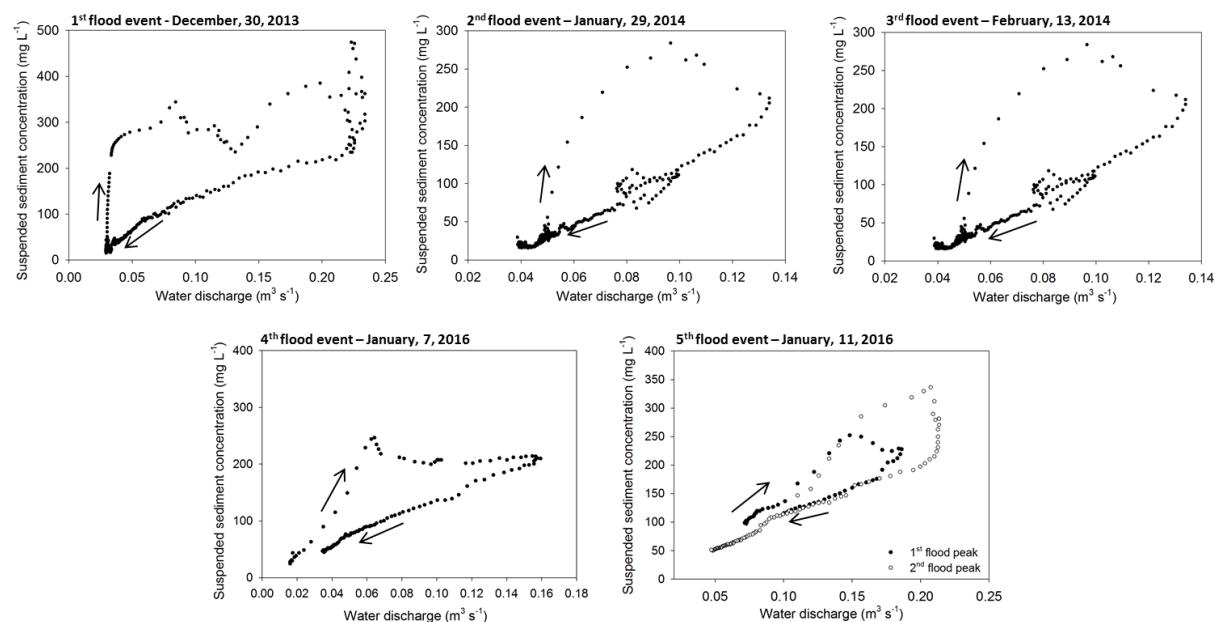


Figure 3.9. Water discharge and suspended sediment concentrations for the five monitored flood events at the Masniers (MS) station.

3.2.2. Evolution of radionuclide activities (^{7}Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) in suspended sediment

Radionuclide activities measured in sediment collected in overland flow occurring in an ephemeral rill during the three flood events recorded in 2013-2014 ranged between 120 ± 10 and $420 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$ for ^{7}Be , and between 10 ± 5 and $50 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$ for $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$. In January, 2016 ^{7}Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities were estimated to $175 \pm 5 \text{ Bq kg}^{-1}$ and $30 \pm 5 \text{ Bq kg}^{-1}$ respectively and could only be measured for the first of the two successive flood events.

In suspended sediment collected in 2013-2014, ^{7}Be activities were more variable than $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities which remained of the same order of magnitude during the three floods, with values that did not exceed $30 \pm 5 \text{ Bq kg}^{-1}$. The two first floods exhibited large variations in ^{7}Be concentrations, ranging between the Limit Detection (LD) and $130 \pm 5 \text{ Bq kg}^{-1}$. In contrast, the last flood exhibited lower variations of ^{7}Be activities, with values between 100 ± 5 and $140 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$ (Annexe B - Table B1).

In suspended sediment sampled on January 7, 2016, ^{7}Be activities ranged between 60 ± 10 and $135 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$ and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities varied between the LD and $40 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$. On January 11, 2016, ^{7}Be activities were higher, with values ranging between 120 ± 15 and $415 \pm 25 \text{ Bq kg}^{-1}$ while $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities remained in the same order of magnitude with values varying between 20 ± 5 and $70 \pm 10 \text{ Bq kg}^{-1}$. During that second flood, sediment transported in ephemeral flow could unfortunately not be sampled during the event, for logistical reasons. Consequently, the highest ^{7}Be activity of $415 \pm 25 \text{ Bq kg}^{-1}$ measured in suspended sediment collected at the BE station was used to characterize the signature of recently eroded particles for this event.

3.2.3. Evolution of the fraction of recently eroded particles during the five flood events

$^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratios were calculated and used to estimate the fraction of recently eroded sediment and the mean residence time of particles for each event and each station (Annexe B - Table B1 and Table B2). In the southern tributary (BR, MS and GB stations) for the 2013-2014 winter season, the first flood was characterized by an increase in the fraction of recently eroded sediment in downstream direction from $20 \pm 5\%$ at BR to $85 \pm 50\%$ at GB stations. In the northern tributaries of the pond (CO, PI, MZ and BE stations), contributions remained in the same order of magnitude as in the southern catchment (from $5 \pm 5\%$ at BE station to $80 \pm 20\%$ at CO station) (Figure 3.12a). Variations of the fraction of recent sediment were similar during the second flood with values ranging between 15 ± 15 and $80 \pm 20\%$ (BE) for sediment collected in the northern tributaries. In the southern tributary, the

contributions of recently eroded particles were less variable with a maximal contribution observed at the BR station ($70 \pm 65\%$) and lower contributions of $45 \pm 10\%$ and $40 \pm 10\%$ estimated at the MS and GB stations, respectively. The third flood was characterized by similar fractions of recently eroded sediment in the northern tributaries compared to the previous flood event (Figure 3.12b Figure 3.12c). In the southern tributary, higher fractions of recently eroded sediment were observed at the MS ($95 \pm 15\%$) and GB ($90 \pm 15\%$) stations compared to the previous flood event. Overall, the export of recently eroded sediment prevailed at all monitoring stations for this flood event.

For the two flood events of the 2015-2016 season, subsamples of suspended sediment were collected during the rising and the falling limbs of the floods. Values reported in the following text correspond to mean values calculated for the entire event at each station (Annexe B - Table B3). On January 7, 2016, in the southern tributary, the lowest fraction of recently eroded sediment was observed at the outlet of the BR drain station ($30 \pm 10\%$), while higher and similar fractions of recently eroded particles were observed downstream at the MS ($95 \pm 20\%$) and GB ($85 \pm 35\%$) stations. During the January 11, 2016 flood, the fraction of recently eroded particles dominated at all the monitoring stations, with contributions ranging between $70 \pm 15\%$ at MS and $70 \pm 20\%$ at BR stations, to $100 \pm 25\%$ at the BE station. In both the northern and southern tributaries, the lowest contributions of recently eroded sediment were observed at the uppermost BR ($75 \pm 25\%$) and PI ($70 \pm 20\%$) stations whereas the highest contributions were observed downstream, at GB ($70 \pm 20\%$) and BE ($90 \pm 25\%$) stations (Figure 3.10e, Annexe B - Table B3).

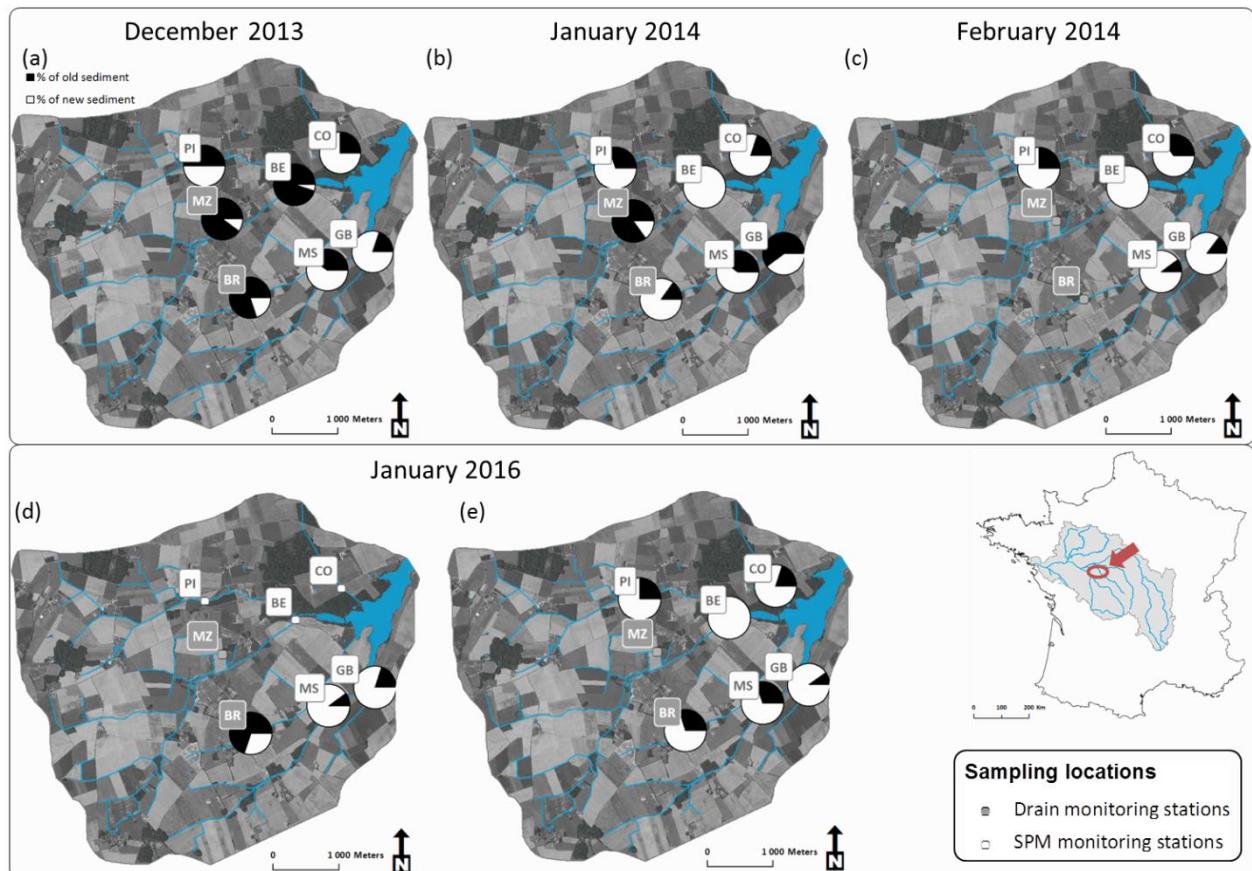


Figure 3.10. Evolution of the fraction of recently eroded sediment (%) during the five monitored floods.

Mean proportions of recently eroded particles and particle residence times were calculated for each flood to facilitate inter-event comparison. In 2013-2014, the fraction of recently eroded particles increased during the succession of floods (mean values of $40 \pm 20\%$ for the 1st flood, $70 \pm 40\%$ for the 2nd flood, $80 \pm 20\%$ for the last flood) (Annexe B -Table B4). In 2016, proportions of recently eroded particles increased between both events ($65 \pm 20\%$ for the January, 7 flood; $80 \pm 20\%$ for the January, 11 flood) (Annexe B - Table B4).

3.2.4. Intra-event variations of the fraction of recently eroded particles during the 2016 flood events

For the January 7, 2016 event, steady contributions were observed during the rising stage and the flood peak at BR station ($30 \pm 5\%$ and $30 \pm 10\%$) and during both rising and falling limbs at MS station ($95 \pm 25\%$ and $100 \pm 25\%$) (Figure 3.11d,e). For suspended sediment collected at GB station, the highest contribution of recently eroded particles was observed during the rising limb ($100 \pm 45\%$) compared to the falling limb ($70 \pm 20\%$) (Figure 3.11f).

For the January 11, 2016 event, contributions of recently eroded particles in the northern tributaries remained comparable between the first ($85 \pm 20\%$ at CO station and $100 \pm 25\%$ at BE station) and

second flood peaks ($70 \pm 15\%$ and $90 \pm 25\%$, respectively) (Figure 3.11a,c). In the southern tributary, at the tile drain outlet of BR, an increase of the fraction of recently eroded particles was observed with contributions increasing from $50 \pm 15\%$ to $100 \pm 30\%$ during the rising limb of the flood (Figure 3.11d). During the falling limb, a slight decrease was observed with a mean contribution of recently eroded particles of $80 \pm 25\%$. At the MS, the highest contributions of recently eroded particles were observed during the second flood peak ($90 \pm 25\%$ compared to $50 \pm 10\%$) while steady contribution were observed at the GB station ($90 \pm 25\%$ and $90 \pm 20\%$ respectively for the first and second flood peaks) (Figure 3.11e,f).

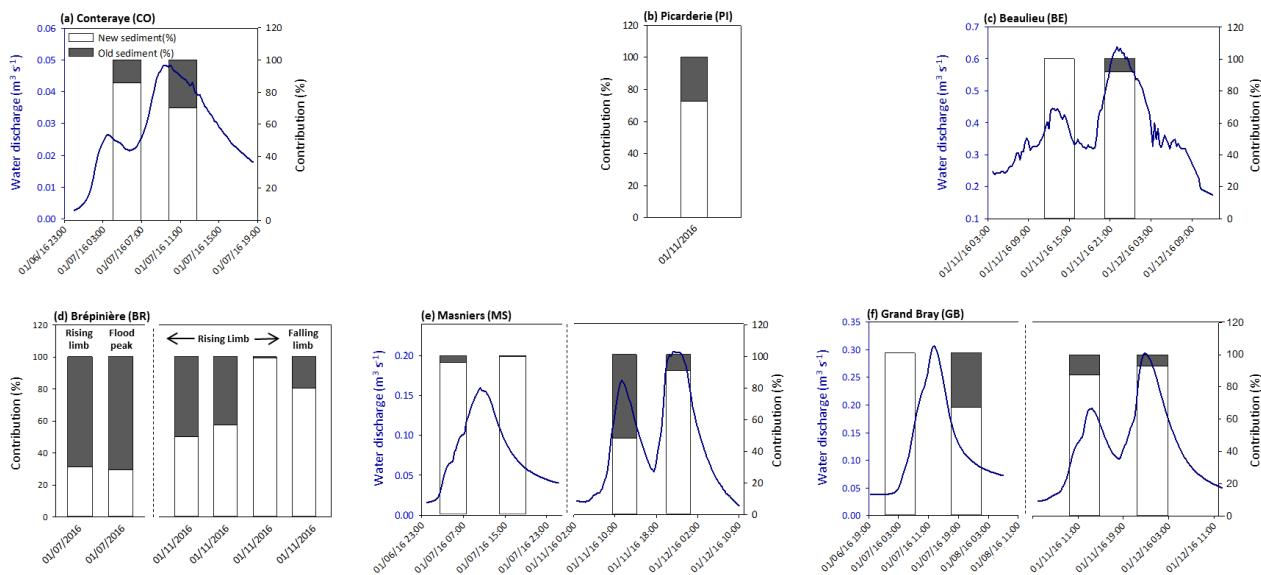


Figure 3.11. Variations of the fraction of recently eroded particles (%) during the two successive flood events of January, 2016 presented with the hydrographs (not available for the PI and BR stations).

3.3 Discussion

3.3.1. Hydro-sedimentary processes and sediment sources

Hysteresis patterns have been widely used to investigate geomorphic processes occurring in catchments and identify the spatial sources delivering sediment (Duvert et al., 2010; Williams, 1989). In the Louroux catchment, clockwise hysteresis loops were observed for the five monitored flood events, suggesting that after a rapid export from the river channel, the suspended sediment stock may be exhausted before the end of the flood. These hysteresis loops are generally attributed to a depletion of available sediment before the flood peak discharge is reached (Horowitz, 2008) and were shown to be the dominant hysteresis type in well-drained agricultural catchments (Sherriff et al., 2016). This suggests that suspended sediment originates from proximal sources in the Louroux catchment.

3.3.2. Temporal dynamics of suspended sediment within floods and during successive flood events

The fraction of recently eroded particles increased during the successive flood events monitored in 2013-2014 and 2015-2016 winter seasons. In 2013-2014, the erosive and monitored flood (December 2013) generated a large export of sediment accumulated in the riverbed during the previous months, especially in areas where the fraction of recently eroded particles was the lowest (MZ, BR and BE stations). Despite a higher mean contribution of recently eroded particles during the second flood (January 2014), the southern GB station was characterized by the transit of lower fractions of recently eroded particles, suggesting the accumulation of sediment in this area. Finally, the third flood (February 2014), which was more intense, mainly exported recently eroded particles (mean fraction of recently eroded particles estimated to $80 \pm 20\%$). Accordingly, the two first monitored floods partially exported sediment accumulated during the previous dry period. The first monitored flood mainly exported older sediment compared to the third larger event that mainly transported sediment directly eroded from hillslopes and flushed the previously deposited sediment, which is illustrated by the highest estimated contributions of recently eroded sediment, close to 100%. In 2016, the same trend was observed in the southern tributary of the pond, with an increase of the fraction of recently eroded particles between both events. A similar sediment turn-over cycle likely explains the variations observed in 2016. The analysis of several samples collected during the two floods investigated in 2016 confirms the validity of this interpretation.

3.3.3. Spatial variations of suspended sediment during a flood event

Overall, an increase of the fraction of recently eroded particles was observed in the downstream direction during each event. During each flood, the progressive depletion of recently eroded particles observed at the upper stations before propagating to the lower stations indicates that sediment previously accumulated in the river channel sections is progressively exported (to lower reaches of the river network). In December 2013 and January 2016, low contributions of recently eroded particles were estimated at the tile drain outlets of the BR and MZ stations, suggesting that drains transported ^{7}Be -dead sediment accumulated during the previous wet season. In the Louroux catchment, flow from the drains mainly takes place between November and April, when low-intensity and long-lasting rainfall occur, leading to soil saturation. Then, from May to September, drains remain dry and it is very likely that the contribution of the drain tiles remains very low during this period. This is consistent with the results of the first monitored erosive floods during which particles depleted in ^{7}Be corresponding to sediment previously deposited in the riverbed and in the

drains were exported. It would be useful to sample sediments from larger events to investigate whether there is some threshold where the drainage system starts to export sediment recently eroded from the surface soils.

3.3.4. The use of ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ to investigate suspended sediment dynamics

Previous modelling results based on ^{137}Cs measurements showed that suspended sediment transported in the Louroux pond tributaries during flood events were almost entirely supplied by surface sources ($99 \pm 0.5\%$) (Foucher et al., 2015b). Although the number of studies using $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratios to estimate the fraction and/or the age of suspended sediment increased during the last years (Bonniwell et al., 1999; Evrard et al., 2010; Gartner et al., 2012; Gourdin et al., 2014), it is difficult to compare their results to those obtained in the Louroux catchment. Indeed, climate and environmental conditions as well as spatial and temporal scales covered in the published studies are strongly variable. Matisoff et al. (2005) investigated sediment transport in three small US agricultural catchment ($<100 \text{ km}^2$) and estimated recently eroded contributions comprised between $36 \pm 6\%$ to $55 \pm 21\%$. Limited variations were observed in this study compared to the Louroux catchment (0–100%), highlighting its high reactivity, which is similar to other US agricultural (Huisman et al., 2013) (5-100%) and mountainous (Bonniwell et al., 1999) (12-96%) catchments.

3.3.5. Sediment transport in drained catchments and management implications

The progressive depletion of recently eroded particles in downstream direction, within a single flood and for a succession of floods demonstrate the very rapid turn-over of sediment in this drained catchment. After a progressive remobilization of ^7Be -dead material stored in the tile drains and the river channel, recent material tagged with ^7Be is directly exported to the pond. The material transiting the drains and the rivers is supplied by proximal sources, as indicated by the observation of clockwise hysteresis loops at all the stations, located at the soil surface, as modelled in a previous study (Foucher et al., 2015b).

The high contribution of recently eroded particles suggests a high connectivity between the hillslopes and the river network. The dense drainage network of the Louroux catchment may act as a preferential pathway for these eroded particles. Sediment sources are controlled by the sequence of rainfall events and the rainfall depths generating floods (Penven and Muxart, 1995). Radionuclide measurements demonstrated that the first erosive flood occurring at the beginning of the hydrological year mainly exported sediment accumulated in the tile drains and the river bed.

In this very reactive catchment, specific management strategies to reduce soil losses and sediment transport must be implemented. To improve the understanding of suspended sediment sources and dynamics, more flood events should be investigated during an entire year. Indeed, their seasonal variability must be well constrained to guide the implementation of efficient strategies to reduce sediment loads and limit their accumulation in the river channels. Attention should also focus on the drainage network which increases the connectivity between the hillslopes and the river network. In the future, complementary approaches including the clay mineralogy characterizations developed for investigating clay lessivage in soil profiles ([Cornu et al., 2012; Montagne et al., 2008](#)) could improve the discrimination between the particles transiting the tile drains and those supplied by ephemeral rills occurring on hillslopes.

Methods

Study site

The Louroux catchment (24 km²) is a small agricultural area located in the Loire River basin (France). The climate is temperate oceanic, with a mean annual rainfall of 684mm (between 1971 and 2000 for the nearby city of Tours; [Météo France, 2015](#)). The catchment is characterized by a flat topography (mean slope of 0.4%), and cropland is the main land use (78%) followed by grassland (18%) and woodland (4%) (Corine Land Cover 2006 data). The five main streams draining the Louroux pond, located at the outlet of the catchment, are equipped with monitoring stations (CO, PI, BE, MS, GB, Figure 3) along with two additional stations located at tile drain outlets (MZ, BR, Figure 3).

Sampling

Hydro-sedimentary parameters (water level, turbidity) were continuously recorded at the seven monitoring stations equipped with automatic samplers. Suspended sediment concentrations were estimated based on turbidity measurements. Rainfall intensity was monitored at the outlet of the catchment with an automatic weather station.

Three flood events were investigated in 2013-2014 (December 30, 2013, January 29, 2014 and February 13, 2014) and two successive flood events were studied in 2015-2016 (January 7 and 11, 2016). Overland flow was collected in an ephemeral rill during each flood event to characterize fallout radionuclide in source sediment (except for the January 11, 2016 event). River water samples (n=39) were collected to characterize the signature of sediment transiting the river, including stream (n=22) and tile drain outlets (n=17) samples, and compare it to that of source sediment.

In 2013-2014, during the two first floods, river water samples were collected at all stations whereas during the third flood, samples were only collected at four river stations (sampling was not possible at Conteraye and tile drain stations). In 2015-2016, sub-samples of suspended sediment were collected during the rising and the falling limb of the hydrograph at three monitoring stations (GB, MS, BR) for the first flood and at six monitoring stations during the second flood (*i.e.* all stations except MZ station) to characterize intra-event variations of sediment signatures.

Sample processing and analysis

Sample preparation. Sediment samples were oven-dried at 40°C for 48 h (Foucher et al., 2015b). Dry sediment (between 2 and 10 g) was then packed in containers and sealed airtight.

Radionuclide measurements. The ^7Be (477.6 keV) and ^{210}Pb (46.5 keV) activities were determined by gamma spectrometry using low background N and P type GeHP detectors at the Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement. $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities were calculated by subtracting the supported activity (determined using two ^{226}Ra daughters, ^{214}Pb (average count number at 295.2 and 351.9 keV) and ^{214}Bi (609.3 keV) from the total ^{210}Pb activity. Measured activities were decay-corrected to the sampling date. Associated uncertainties correspond to 2σ -errors for ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ measurements (Gourdin et al., 2014). Samples were measured within 50 days to ensure that ^7Be was detected.

Calculation of the contribution of recently eroded sediment. The percentage of recently eroded particles and the residence time of particles transiting the river network were calculated by using Eq. (1) and (2) (Matisoff et al., 2005)

$$\% \text{ of recently eroded sediment} = 100 \times \frac{(A/B)}{(A_0/B_0)} \quad (1)$$

$$t = \frac{-1}{(\lambda_{^7\text{Be}} - \lambda_{^{210}\text{Pb}})} \ln\left(\frac{A}{B}\right) + \frac{1}{(\lambda_{^7\text{Be}} - \lambda_{^{210}\text{Pb}})} \ln\left(\frac{A_0}{B_0}\right) \quad (2)$$

Where $\lambda_{^7\text{Be}}$ and $\lambda_{^{210}\text{Pb}}$ are the decay constants of ^7Be and ^{210}Pb (day^{-1}), A and B are ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities (Bq kg^{-1}) in the suspended particulate matter, A_0 and B_0 are the ^7Be and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ activities in sediment collected in overland flow occurring in an ephemeral rill.

4. Références bibliographiques Chapitre 3, article *Scientific Reports*

- Ayrault, S., Roy-Barman, M., Le Cloarec, M.F., Priadi, C.R., Bonte, P., Gopel, C., 2012. Lead contamination of the Seine River, France: geochemical implications of a historical perspective. *Chemosphere*, 87(8): 902-10.
- Blake, W.H., Wallbrink, P.J., He, Q., 1999. Fallout beryllium-7 as a tracer in soil erosion investigations. *Applied Radiation and Isotopes*, 51: 599-605.
- Bonniwell, E., Matisoff, G., Whiting, P.J., 1999. Determining the times and distances of particle transit in a mountain stream using fallout radionuclides. *Geomorphology*, 27: 75-92.
- Brost, R.A., Feichter, J., Heimann, M., 1991. 3-Dimensional simulation of ^{7}Be in a global climate model. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* 96: 22423-22445.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Ottlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene*, 1: 23-34.
- Cornu, S., Montagne, D., Hubert, F., Barré, P., Caner, L., 2012. Evidence of short-term clay evolution in soils under human impact. *Comptes Rendus Geoscience*, 344(11-12): 747-757.
- Dominik, J., Burrus, D., Vernet, J.-P., 1987a. Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed. *Earth and Planetary Science Letters*, 84: 165-180.
- Dominik, J., Burrus, D., Vernet, J.P., 1987b. Transport of the environmental radionuclides in an alpine watershed. *Earth and Planetary Science Letters*, 84: 165-180.
- Duvert, C., Gratiot, N., Evrard, O., Navratil, O., Némery, J., Prat, C., Esteves, M., 2010. Drivers of erosion and suspended sediment transport in three headwater catchments of the Mexican Central Highlands. *Geomorphology*, 123(3-4): 243-256.
- Evrard, O., Laceby, J.P., Huon, S., Lefèvre, I., Sengtaheuanghong, O., Ribolzi, O., 2016. Combining multiple fallout radionuclides (^{137}Cs , ^{7}Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$) to investigate temporal sediment source dynamics in tropical, ephemeral riverine systems. *Journal of Soils and Sediments*, 16(3): 1130-1144.
- Evrard, O., Némery, J., Gratiot, N., Duvert, C., Ayrault, S., Lefèvre, I., Poulenard, J., Prat, C., Bonté, P., Esteves, M., 2010. Sediment dynamics during the rainy season in tropical highland catchments of central Mexico using fallout radionuclides. *Geomorphology*, 124(1-2): 42-54.
- Foucher, A., Laceby, J.P., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Le Gall, M., Lefevre, I., Cerdan, O., Rajkumar, V., Desmet, M., 2015a. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: the application of a thorium-based particle size correction in sediment fingerprinting. *Geomorphology*.
- Foucher, A., Laceby, J.P., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Le Gall, M., Lefèvre, I., Cerdan, O., Rajkumar, V., Desmet, M., 2015b. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: The application of a thorium-based particle size correction in sediment fingerprinting. *Geomorphology*, 250: 271-281.
- Gartner, J.D., Renshaw, C.E., Dade, W.B., Magilligan, F.J., 2012. Time and depth scales of fine sediment delivery into gravel stream beds: Constraints from fallout radionuclides on fine sediment residence time and delivery. *Geomorphology*, 151-152: 39-49.
- Gourdin, E., Evrard, O., Huon, S., Lefèvre, I., Ribolzi, O., Reyss, J.-L., Sengtaheuanghong, O., Ayrault, S., 2014. Suspended sediment dynamics in a Southeast Asian mountainous catchment: Combining river monitoring and fallout radionuclide tracers. *Journal of Hydrology*, 519: 1811-1823.
- Horowitz, A.J., 2008. Determining annual suspended sediment and sediment-associated trace element and nutrient fluxes. *Science of the Total Environment*, 400(1-3): 315-43.
- Huisman, N.L.H., Karthikeyan, K.G., Lamba, J., Thompson, A.M., Peaslee, G., 2013. Quantification of seasonal sediment and phosphorus transport dynamics in an agricultural watershed using radiometric fingerprinting techniques. *Journal of Soils and Sediments*, 13(10): 1724-1734.
- King, K.W., Fausey, N.R., Williams, M.R., 2014. Effect of subsurface drainage on streamflow in an agricultural headwater watershed. *Journal of Hydrology*, 519: 438-445.
- Le Cloarec, M.F., Bonte, P., Lefèvre, I., Mouchel, J.M., Colbert, S., 2007. Distribution of ^{7}Be , ^{210}Pb and ^{137}Cs in watersheds of different scales in the Seine River basin: inventories and residence times. *Sci Total Environ*, 375(1-3): 125-39.
- Mabit, L., Benmansour, M., Walling, D.E., 2008. Comparative advantages and limitations of the fallout radionuclides ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and ^{7}Be for assessing soil erosion and sedimentation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(12): 1799-807.
- Matisoff, G., Wilson, C.G., Whiting, P.J., 2005. The $^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ ratio as an indicator of suspended sediment age or fraction new sediment in suspension. *Earth Surface Processes and Landforms*, 30(9): 1191-1201.
- Météo France, 2015.
- Montagne, D., Cornu, S., Le Forestier, L., Hardy, M., Josière, O., Caner, L., Cousin, I., 2008. Impact of drainage on soil-forming mechanisms in a French Albeluvisol: Input of mineralogical data in mass-balance modelling. *Geoderma*, 145(3-4): 426-438.
- Owens, P.N., Batalla, R.J., Collins, A.J., Gomez, B., Hicks, D.M., Horowitz, A.J., Kondolf, G.M., Marden, M., Page, M.J., Peacock, D.H., Petticrew, E.L., Salomons, W., Trustrum, N.A., 2005. Fine-grained sediment in river systems: environmental significance and management issues. *River Research and Applications*, 21(7): 693-717.
- Owens, P.N., Walling, D.E., 2002. The phosphorous content of fluvial sediment in rural and industrialized river basins. *Water Research*, 36: 685-701.
- Penven, M.-J., Muxart, T., 1995. Le drainage agricole : un rôle fondamental dans les transferts d'eau et de matière. L'exemple du plateau briard. *Annales de Géographie*, 104(581): 88-104.

Références

- Russell, R., Walling, D.E., Hodgkinson, R.A., 2001. Suspended sediment sources in two small lowland agricultural catchments in the UK. *Journal of Hydrology*, 252(1-4): 1-24.
- Sherriff, S.C., Rowan, J.S., Fenton, O., Jordan, P., Melland, A.R., Mellander, P.-E., hHallacháin, Ó., 2016. Storm Event Suspended Sediment-Discharge Hysteresis and Controls in Agricultural Watersheds: Implications for Watershed Scale Sediment Management. *Environmental Science & Technology*, 50(4): 1769-1778.
- Sogon, S., Penven, M.-J., Bonte, P., Muxart, T., 1999. Estimation of sediment yield and soil loss using suspended sediment load and ^{137}Cs measurements on agricultural land, Brie Plateau, France. *Hydrobiologia*, 410(251-261).
- Taylor, A., Blake, W.H., Couldrick, L., Keith-Roach, M.J., 2012. Sorption behaviour of beryllium-7 and implications for its use as a sediment tracer. *Geoderma*, 187-188: 16-23.
- Taylor, A., Blake, W.H., Smith, H.G., Mabit, L., Keith-Roach, M.J., 2013. Assumptions and challenges in the use of fallout beryllium-7 as a soil and sediment tracer in river basins. *Earth-Science Reviews*, 126: 85-95.
- Vanmaercke, M., Poesen, J., Govers, G., Verstraeten, G., 2015. Quantifying human impacts on catchment sediment yield: A continental approach. *Global and Planetary Change*, 130: 22-36.
- Vörösmarty, C.J., Meybeck, M., Fekete, B., Sharma, K., Green, P., Syvitski, J.P.M., 2003. Anthropogenic sediment retention: major global impact from registered river impoundments. *Global and Planetary Change*, 39(1-2): 169-190.
- Walling, D.E., 2013. Beryllium-7: The Cinderella of fallout radionuclide sediment tracers? *Hydrological Processes*, 27(6): 830-844.
- Walling, D.E., Collins, A.L., 2008. The catchment sediment budget as a management tool. *Environmental Science & Policy*, 11(2): 136-143.
- Walling, D.E., Russell, R., Hodgkinson, R.A., Zang, Y., 2002. Establishing sediment budgets for two small lowland agricultural catchments in the UK. *Catena*, 47: 323-353.
- Williams, G.P., 1989. Sediment concentration versus water discharge during single hydrologic events in rivers. *Journal of Hydrology*, 111(1-4): 89-106.

CHAPITRE 4

**Traçage des sources de particules dans
l'étang du Louroux, utilisation du ^{137}Cs et du
rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$**

Chapitre 4. Traçage des sources de particules dans l'étang du Louroux, utilisation du ^{137}Cs et du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

Ce chapitre est présenté sous la forme d'un article intitulé « *Quantifying sediment sources in a lowland agricultural catchment pond using ^{137}Cs activities and radiogenic $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios* » publié dans la revue *Science of the Total Environment*. En préambule, un résumé en français de cet article dédié au traçage des sources de particules accumulées dans l'étang du Louroux est proposé.

Démarche entreprise

Ce quatrième chapitre s'attache à identifier les sources des particules dans l'étang du Louroux. Situé à l'exutoire du bassin, celui-ci accumule une partie significative des sédiments produits sur les versants. En effet, le taux actuel d'érosion connectée est estimé entre 90 et 102 t.km $^2\text{.an}^{-1}$, valeur près de soixante fois plus élevée à celle estimée avant les fortes modifications de pratiques agricoles qui sont intervenues dès la fin de la seconde guerre mondiale (Foucher et al., 2014). Dans ce contexte, il est nécessaire de déterminer et de quantifier les sources de particules qui s'accumulent dans l'étang de manière à mettre en place des mesures de conservation des sols efficaces. Deux interrogations majeures ont motivé ce travail : quel compartiment des sols (surface vs profondeur) et quelles sources lithologiques contribuent aux sédiments accumulés dans l'étang du Louroux ?

Pour répondre à ces questions, différents échantillonnages ont été réalisés. Des échantillons de sols ($n=36$) et de berges ($n=17$), qui constituent les sources potentielles de particules (*i.e.* surface vs subsurface), ont été collectés sur l'ensemble du bassin. Des sédiments de surface ($n=42$) déposés dans l'étang ainsi qu'une carotte sédimentaire découpée en tranches de 2 cm d'épaisseur localisée à la confluence des deux chenaux qui drainent les principaux affluents de l'étang ont également été collectés. Ce « double » échantillonnage des sédiments de l'étang permet l'étude des dynamiques spatiales et temporelles des sources de particules qui s'y sont déposées.

Des mesures d'activités en ^{137}Cs ont été réalisées pour caractériser les sources de surface et de subsurface et ensuite estimer leur contribution relative aux sédiments en utilisant des modèles de mélange.

Pour identifier les sources lithologiques des sédiments, le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ a été utilisé comme traceur et mesuré dans les sédiments accumulés dans l'étang du Louroux. Le chapitre précédent a permis de discriminer les sols silicatés des sols carbonatés échantillonnés sur le bassin, et il a montré que le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesuré dans les MES reflétait des variations dans la contribution des sources selon les conditions hydrologiques. En effet, une contribution importante de la fraction fine ($<2\text{ }\mu\text{m}$) est observée lors de crues d'intensité moyenne alors que la contribution de particules plus grossières

est observée lors de crues plus intenses. Aussi, pour s'affranchir de cette sélectivité granulométrique, les sédiments collectés dans les anses nord et sud de l'étang et qui drainent respectivement les zones silicatées et carbonatées du bassin ont été utilisés comme sources potentielles des sédiments accumulés en aval de l'étang. Après mesure du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et discrimination des sédiments silicatés et carbonatés, des modèles de mélange ont été utilisés pour estimer la contribution relative de ces deux sources aux sédiments de l'étang et de la carotte.

Principaux résultats

Les activités en ^{137}Cs mesurées dans les échantillons de sols et de berges se sont révélées inférieures à celles mesurées dans les sédiments de l'étang, enrichis en ^{137}Cs . Pour s'affranchir de cette sélectivité granulométrique qui empêche la comparaison directe entre sources potentielles et sédiments, les activités ont été corrigées avec leur teneur en thorium, bon proxy de la fraction argileuse et dont l'efficacité en tant que facteur de correction granulométrique a été démontrée sur le bassin du Louroux (Foucher et al. 2015).

De fortes variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ont été observées dans l'ensemble des sédiments de l'étang et de la carotte avec des valeurs comprises entre 0,710739 et 0,716864, indiquant la contribution variable de différentes sources lithologiques. Les rapports les plus élevés (0,713867-0,716761) ont été mesurés dans les sédiments collectés dans l'anse nord de l'étang qui draine la zone silicatée alors que les rapports les plus faibles (0,711595-0,712502) ont été mesurés dans l'anse sud, qui draine la zone carbonatée. Des valeurs intermédiaires ont été déterminées dans les sédiments collectés en aval de l'étang et dans ceux de la carotte, suggérant un mélange de ces deux sources lithologiques. Aussi, les sédiments des anses nord et sud de l'étang ont été respectivement utilisés pour définir deux sources lithologiques distinctes, une source silicatée et une source carbonatée.

Après caractérisation des différentes sources de particules selon l'approche envisagée (*i.e.* utilisation du ^{137}Cs ou du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), des modèles de mélange ont été utilisés pour estimer la contribution relative de ces différentes sources (*i.e.* surface vs subsurface et lithologie silicatée vs carbonatée) aux sédiments de l'étang et de la carotte.

Les résultats ont montré une contribution très majoritaire des sources de surface (μ 82%, σ 1%). Certains sédiments, localisés dans les anses ou à proximité des rives de l'étang ont été caractérisés par une contribution plus importante de la part des berges (entre $7 \pm 2\%$ et $75 \pm 1\%$). Dans la partie supérieure de la carotte, non impactée par les retombées de Tchernobyl, les sources de surface sont également majoritaires avec une contribution moyenne de $89 \pm 3\%$. Ces résultats sont cohérents avec ceux de Foucher et al. (2015) qui ont montré que, lors des crues, les MES transportées par les

cours d'eau proviennent quasiment exclusivement de la surface des sols (μ 98%, σ 2%) alors qu'en période de basses eaux, une contribution plus importante des berges est observée (μ 60%, σ 2%).

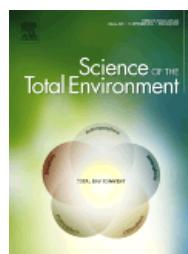
En ce qui concerne la contribution des différentes sources lithologiques, les résultats ont montré une contribution équilibrée des sources silicatées et carbonatées aux sédiments déposés dans l'étang (contribution moyenne carbonatée de $48 \pm 1\%$). En revanche, de fortes variations de ces contributions ont été reconstruites à partir de l'analyse de la carotte pour la période comprise entre 1953 et 2013. Ces variations ont été interprétées à partir des informations disponibles sur l'aménagement du bassin à cette période. Ainsi, entre 1953 et 1957, les variations observées ont été interprétées comme le résultat des remembrements successifs opérés à cette époque. La contribution croissante de la source silicatée observée entre 1957 et 1981 traduit probablement la mise en place d'un dense réseau de drainage et la création de fossés dans la zone silicatée du bassin. Enfin, entre 1981 et 2013, une stabilisation du système a été observée avec une diminution des contributions silicatées au profit de la source carbonatée dont les contributions sont relativement stables depuis 1986 (entre $53 \pm 1\%$ et $70 \pm 1\%$). Pour expliquer cette stabilisation, des extractions sélectives (fraction échangeable et liée aux carbonates), des analyses de Microscopie Electronique à Balayage (MEB) et de Diffraction des Rayons X (DRX) ont été réalisées sur une sélection d'échantillons de sédiments de l'étang et de la carotte et ont montré, en accord avec les résultats de Foucher et al. (2014), l'impact croissant de la pression anthropique sur les transferts sédimentaires dans le bassin du Louroux.

Principale conclusions

Cette étude a démontré le potentiel que présente l'utilisation couplée du ^{137}Cs et du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ pour tracer les sources de particules et étudier leurs variations spatio-temporelles dans un bassin versant agricole. Ces travaux ont montré l'intérêt d'utiliser une approche de collecte de sédiments sur les affluents drainant différents sous-bassins pour caractériser et tracer les sources lithologiques de particules. En effet, les sédiments des anses de l'étang ont été utilisés comme sources pour estimer leur contribution aux sédiments déposés en aval. Ainsi, les apports anthropiques (engrais...), la potentielle eutrophisation de l'étang, et la précipitation *in situ* de calcite, qui peuvent impacter les signatures isotopiques du strontium, ont été intégrés dans la démarche de traçage entreprise.

Ces résultats ont également montré la nécessité de mieux protéger contre l'érosion les sols cultivés dont la contribution aux sédiments est majoritaire dans ce bassin. Ils soulignent également l'intérêt de prélever des carottes sédimentaires pour reconstruire l'historique de l'impact des modifications de l'usage des sols et des pratiques agricoles sur les flux de particules dans les zones d'agriculture intensive.

1. Quantifying sediment sources in a lowland agricultural catchment pond using ^{137}Cs activites and radiogenic $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios



Marion Le Gall^a, Olivier Evrard^a, Anthony Foucher^b, J. Patrick Laceby^a, Sébastien Salvador-Blanes^b, François Thil^a, Arnaud Dapoigny^a, Irène Lefèvre^a, Olivier Cerdan^c, Sophie Ayrault^a

^c Laboratoire des Sciences et de l'Environnement, UMR 8212 (CEA/CNRS/UVSQ), Université Paris-Saclay, Domaine du CNRS, Avenue de la Terrasse, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^d E.A 6293, Laboratoire GéoHydroSystèmes Continentaux (GéHCO), Université F. Rabelais de Tours, Faculté des Sciences et Techniques, Parc de Grandmont, 37200 Tours, France

^e Département Risques et Prévention, Bureau de Recherches Géologiques et Minières, 3 avenue Claude Guillemin, 45060 Orléans, France

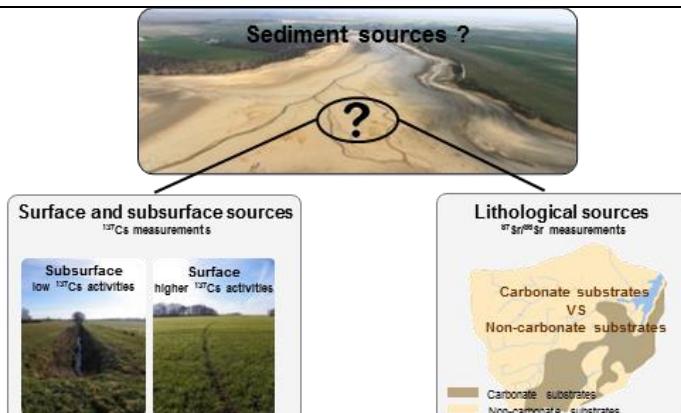
DOI : 10.1016/j.scitotenv.2016.05.093

Received 25 March 2016 –Accepted 13 May 2016

HIGHLIGHTS

- Surface sources supplied the majority of pond and core sediment
- Lithological sources were well mixed in surface pond sediment
- Lithological sources varied through time in the sediment core
- Temporal lithological fluctuations likely resulted from landscape modifications
- Understanding sediment dynamics is important in agricultural drained catchments

GRAPHICAL ABSTRACT



Abstract

Soil erosion often supplies high sediment loads to rivers, degrading water quality and contributing to the siltation of reservoirs and lowland river channels. These impacts are exacerbated in agricultural catchments where modifications in land management and agricultural practices were shown to accelerate sediment supply. In this study, sediment sources were identified with a novel tracing approach combining cesium (^{137}Cs) and strontium isotopes ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) in the Louroux pond, at the outlet of a lowland cultivated catchment (24 km^2 , Loire River basin, France) representative of drained agricultural areas of Northwestern Europe.

Surface soil ($n = 36$) and subsurface channel bank ($n = 17$) samples were collected to characterize potential sources. Deposited sediment ($n = 41$) was sampled across the entire surface of the pond to examine spatial variation in sediment deposits. In addition, a 1.10 m sediment core was sampled in the middle of the pond to reconstruct source variations throughout time. ^{137}Cs was used to

discriminate between surface and subsurface sources, whereas $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios discriminated between lithological sources. A distribution modeling approach quantified the relative contribution of these sources to the sampled sediment.

Results indicate that surface sources contributed to the majority of pond (μ 82%, σ 1%) and core (μ 88%, σ 2%) sediment with elevated subsurface contributions modeled near specific sites close to the banks of the Louroux pond. Contributions of the lithological sources were well mixed in surface sediment across the pond (*i.e.* carbonate sediment contribution, μ 48%, σ 1% and non-carbonate sediment contribution, μ 52%, σ 3%) although there were significant variations of these source contributions modeled for the sediment core between 1955 and 2013. These fluctuations reflect both the progressive implementation of land consolidation schemes in the catchment and the eutrophication of the pond.

This original sediment fingerprinting study demonstrates the potential of combining radionuclide and strontium isotopic geochemistry measurements to quantify sediment sources in cultivated catchments.

Keywords : Fallout radionuclides, Radiocesium, Strontium isotopes, Sediment tracing, Fingerprinting

1.1 Introduction

Soil erosion is a major environmental threat worldwide. This process of detachment, transportation and deposition of soil particles by rainfall and runoff particularly affects agricultural areas of Northwestern Europe (Boardman, 1993; Evrard et al., 2007; Le Bissonnais et al., 2005). Soil erosion not only results in decreasing soil fertility and crop yields (Bakker et al., 2004; Boardman et al., 2003), it often supplies high sediment loads to river networks (Owens et al., 2005).

High suspended sediment loads may increase turbidity and result in the sedimentation of downstream reservoirs and lowland river channels (Devlin et al., 2008; Vörösmarty et al., 2003). Sediment may also transport nutrients and contaminants including phosphorous, pesticides, persistent organic pollutants, heavy metals, pathogens and radionuclides (Ayrault et al., 2012; Chartin et al., 2013; Gateuille et al., 2014; Horowitz, 2008). Therefore, understanding spatial and temporal variations of sediment sources is useful for managing the supply of sediment and contaminants in river systems.

Agricultural landscapes have been extensively modified by human activities during the last century to facilitate mechanization and increase crop yields (Dotterweich, 2013; García-Ruiz, 2010; Valentin et al., 2005). In wetlands, tile drain outlets have been installed and channels have been created to

evacuate excess water. Although these alterations resulted in substantial increases in soil erosion and downstream sediment loads, there has been limited research quantifying erosion and sediment transport in these areas (Foucher et al., 2014; Russell et al., 2001; Sogon et al., 1999; Walling et al., 2002). Furthermore, even fewer studies (e.g. Russell et al., 2001) have examined the relative contribution of different sediment sources in these drained lowland agricultural catchments.

Quantifying sediment sources is important to target efficient management measures that reduce sediment supply in catchments. Sediment fingerprinting techniques are therefore increasingly applied to determine sediment sources and pathways in catchments and thus inform management interventions (Collins and Walling, 2002; Koiter et al., 2013; Walling, 2005). Sediment fingerprinting techniques often trace radionuclide, geochemical, and mineralogical soil and sediment properties (Collins et al., 2012; Evrard et al., 2016; Evrard et al., 2011; Olley et al., 1993; Walling and Collins, 2008). Sediment color or infrared spectroscopy (Martínez-Carreras et al., 2010; Poulenard et al., 2012), plant pollen (Brown et al., 2008), soil enzymes (Nosrati et al., 2011), sediment magnetic properties (Hatfield and Maher, 2009; Hatfield et al., 2008) or methyl esters (Banowetz et al., 2006) have also been used to discriminate between potential sediment sources. For a review of the strengths and limitations of different tracer properties and tracing approaches, please see Collins and Walling (2004), Davis and Fox (2009), Guzmán et al. (2013), Haddadchi et al. (2013), and Koiter et al. (2013).

The choice of discriminant properties is often guided by the sources supplying sediment. For example, fallout radionuclides discriminate between surface and subsurface sources (Owens and Walling, 2002; Smith and Dragovich, 2008). ^{137}Cs ($t_{1/2} = 30$ years) is an artificial radionuclide, produced by thermonuclear tests in the 1950s and 1960s, the Chernobyl accident that affected Northwestern Europe in 1986 and the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in 2011. Radiocesium is strongly bound to fine particles (He and Walling, 1996). In undisturbed soil profiles, ^{137}Cs concentrations are the highest at the surface before decreasing exponentially with depth (Mabit et al., 2008; Olley et al., 2013). Accordingly, sediment originating from the soil surface or the ploughed layer will contain higher ^{137}Cs concentrations compared to sediment originating from subsurface sources (e.g. channel bank and gully erosion), which will be depleted in ^{137}Cs . Therefore, it is possible to quantify the relative contribution of surface and subsurface sources by modeling ^{137}Cs soil and sediment concentrations (Caitcheon et al., 2012; Olley et al., 2013).

In comparison, strontium isotopes ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) were shown to be effective tracers of water, soil, sediment and biological material in the environment as they are not fractionated by chemical or biological processes (Aberg, 1995; Graustein, 1989). The abundance of ^{87}Sr produced by the radioactive decay of ^{87}Rb (expressed as the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio) varies with rock type and its formation age

(Négrel and Roy, 1998; Yasuda et al., 2014). Accordingly, strontium isotopic ratios reflect catchment lithology and thus they have been used to trace the geological sources of soils, suspended particulate matter and riverine water in catchments (Faure, 1986).

Strontium isotopic ratios have mainly been measured in the dissolved load (Gaillardet et al., 1997; Grosbois et al., 1999; Pande et al., 1994) to identify and quantify chemical weathering fluxes in major rivers (*e.g.* the Amazon, Congo, Garonne, Indus, Loire, Rhine Rivers catchments) and to provide information about surface and subsurface water circulations (Bakari et al., 2013; Brenot et al., 2008; Eikenberg et al., 2001; Petelet-Giraud et al., 2007), water-rock interactions (Aubert et al., 2001; Blum et al., 1994) or seawater dynamics (Jørgensen et al., 2008). Strontium isotopic ratios were also measured in suspended matter to identify the sources of particles transported in the ocean (Asahara et al., 1999; Goldstein and Jacobsen, 1988), in estuarine (Douglas et al., 2003; Smith et al., 2009) and fluvial systems (Asahara et al., 2006; Douglas et al., 1995; Négrel and Grosbois, 1999; Viers et al., 2000; Wasson et al., 2002). Despite their use in investigations of particulate material dynamics at large catchment scales, few studies investigated spatial and temporal variations of sediment sources with strontium isotopic ratios in small agricultural catchments (<50 km²). Small catchment scale research is important for improving our understanding of the impact of land use and farming practice changes on sediment dynamics.

In this study, sediment sources are identified and quantified through the combination of ¹³⁷Cs and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratio measurements on soil and sediment collected in the Louroux catchment (24 km² - Loire River basin, France), representative of drained, lowland, cultivated areas of Northwestern Europe. The Louroux pond, at the catchment outlet, is significantly impacted by sedimentation from increased sediment yields. Intense modifications in agricultural practices and land use in the catchment resulted in the excessive transport of fine sediment that was predominantly deposited in the Louroux pond. Fine sediment also transfers particulate-bound nutrients and contaminants and degrades water quality. As water quality may be directly impacted by this excess supply of sediment in this catchment, research is required to better understand sediment source dynamics in order to meet the requirements of the EU Water Framework Directive.

In this agricultural catchment, sediment surface sources were defined as topsoil material eroded from the cropland whereas subsurface sources were defined as material eroded from channel banks. Surface sources were shown to dominate (99 ± 1%) the supply of suspended matter transiting this catchment's rivers during flood events in 2013 (Foucher, 2015). However, the dominance of surface source contributions to sediment deposited throughout the pond and over a longer temporal period requires further investigation. Furthermore, information on the main spatial sources of sediment in the Louroux pond is required. To investigate spatial and temporal variations in sediment sources,

^{137}Cs concentrations and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were measured to estimate the relative contributions of surface, subsurface and lithological sources to multiple short sediment cores (*i.e.* < 10 cm) sampled throughout the Louroux pond as well one long sediment core (*i.e.* 1.1 m) sampled in the central pond depression.

1.2 Material and methods

1.2.1. Study site

The Louroux catchment (24 km^2) is a small agricultural lowland basin with elevation ranging between 99 and 127 m and a mean slope of 0.4%. The climate is temperate oceanic with a mean annual rainfall of 696 mm (Tours, data from [Météo France, 2015](#)). Cropland is the main land use (78%) followed by grassland (18%) and woodland (4%) (Corine Land Cover 2006 data). According to a geological survey, the lithology consists of post-Helvetic sand and continental gravels (32%), Senonian flint clays (23%), Quaternary loess (18%), Helvetic shelly sands (18%), Ludian Touraine lacustrine limestones (6%) and Eocene silicic conglomerates (2%) (Annexe C - Figure C1) ([Rasplus et al., 1982](#)). These lithologies were regrouped in two classes ([Le Gall et al., under review](#)): a southern carbonate area composed of Touraine Lacustrine limestone and shelly limestone, and a northern non-carbonate grouping of the remaining lithologies (Figure 4.1a).

In the Louroux catchment, land consolidation started in the 1950s. Channels were created and others modified > 220 tile drain outlets were installed to drain soils and facilitate intensive crop farming. As a result, soil erosion and sediment fluxes strongly increased, contributing to the siltation of the river network, the Beaulieu pond (3 ha – nearly filled), and the Louroux pond (52 ha) (Figure 4.1c). [Foucher et al. \(2014\)](#) showed that terrigenous inputs to the Louroux pond reached maximum rates of $2100 \text{ t km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ between 1945 and 1960, before decreasing to lower rates ($90 - 102 \text{ t km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$) since 2000.

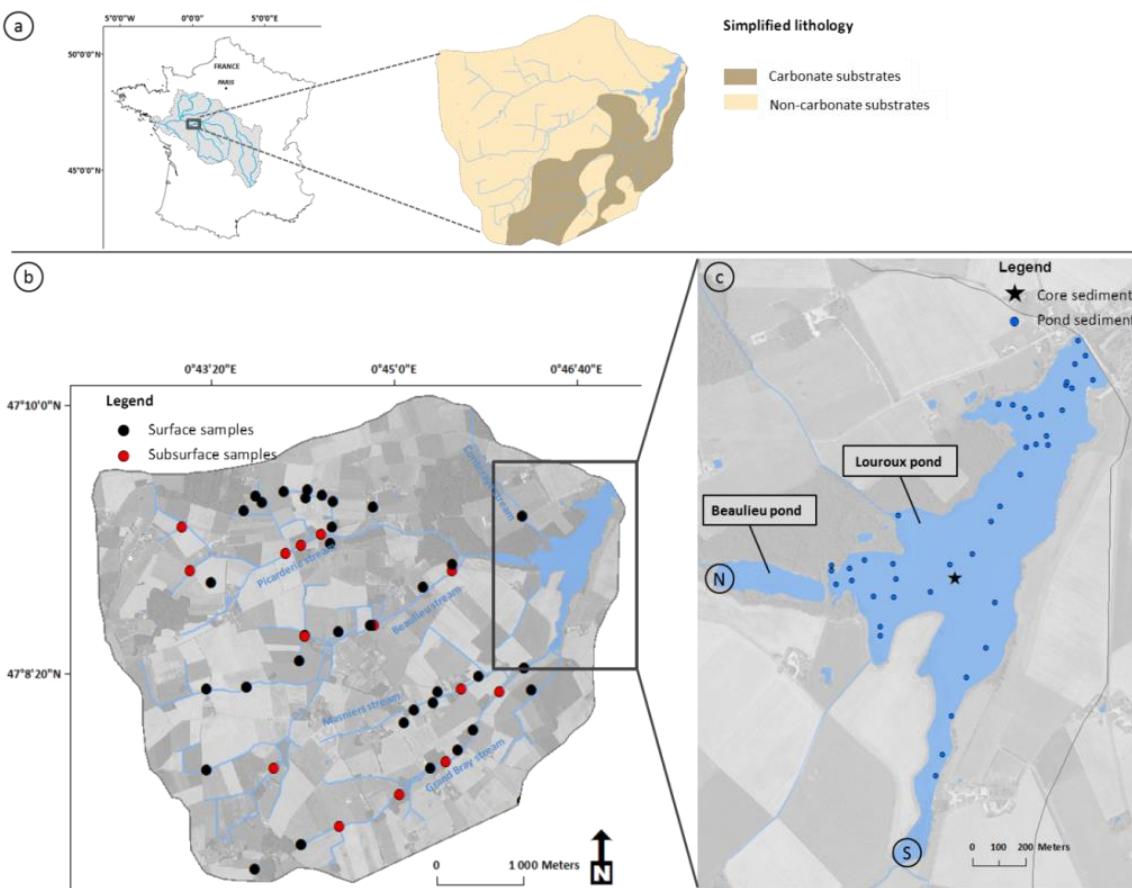


Figure 4.1. Map of the Louroux catchment in the Loire River basin (France) along with simplified lithological map of the area (Le Gall et al., 2016) (a) and the locations of surface and subsurface source (b), pond and core sediment (c) sample locations. N and S correspond to the northern and southern inlets of the main tributaries.

1.2.1.a. Louroux pond sediment sampling

Surface samples of deposited pond sediment ($n = 41$) were collected in September 2012 using a floating platform and a short (top 0–10 cm) gravitational corer UWITEC ($\varnothing 90$ mm) during a period of low water level (see graphical abstract). Attention was paid to collect the most recent deposits following a random location sampling technique. A longer sediment core was collected in the central depression of the pond (1.10 m length) in March 2013, at the confluence between the Grand Bray and Beaulieu streams (Figure 4.1c). The sediment core was dated in a previous study using an age depth model based on fallout radionuclide measurements (^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) (Foucher et al., 2014). In the remainder of the text, dates attributed to the successive sediment core layers are used to facilitate the interpretation of the core results. Carbonate outcrops ($n = 3$), shelly sand ($n = 1$), and three types of fertilizers (N, 33.5/P.K, 25–25/N.P.K, 15–15–15) commonly used by farmers in this catchment were also sampled to characterize their strontium isotopic signatures.

1.2.2. Sample processing and laboratory analysis

1.2.2.a. Gamma spectrometry measurements

Soil ($n = 36$), channel bank ($n = 17$) and sediment ($n = 41$) samples were dried at 40 °C and sieved to 2 mm before analysis. For radio-nuclide measurements, approximately 80 g of material was analyzed. ^{137}Cs (662 keV) activities were determined by gamma spectrometry using low background N and P type GeHP detectors (Canberra and Ortec) at the Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement. Measured activities were decay-corrected to the sampling date and provided with 2σ -errors. Th concentrations (mg kg^{-1}) were calculated from ^{228}Th activity concentrations. Assuming that ^{232}Th and its daughter products were in secular equilibrium, ^{228}Th activities were calculated using the average between the gamma rays of two of its daughter products, ^{212}Pb (239 keV) and ^{208}Tl (583 keV). Counting efficiencies and reliability were conducted using certified International Atomic Energy Agency (IAEA) standards (IAEA-444, 135, 375, RGU-1 and RGTh-1) prepared in the same containers as the samples. Uncertainties on radionuclides activities were ca. 5% for ^{228}Th , and up to 10% for ^{137}Cs .

Based on ^{228}Th activities, the total Th concentration (mg kg^{-1}) of sediment samples was calculated using the universal law of radioactive decay.

1.2.2.b. Thorium particle size correction for ^{137}Cs activities

As ^{137}Cs is strongly bound to fine particles, potential particle size differences between sources and sediment may prevent their direct comparison. To avoid errors in the estimation of source contributions, the impacts of particle size on sediment properties must be carefully addressed. As an alternative to a specific surface area (SSA) derived correction, a thorium correction was effectively applied by [Foucher et al. \(2015\)](#) in the Louroux pond catchment. These authors demonstrated that thorium-corrected particle size corrections produced globally better results compared to SSA corrections in this catchment.

The Th correction factor was calculated based on the variations of Th and ^{137}Cs concentrations in each sediment sample and each source sample (Eq. (1)) compared to the mean Th and ^{137}Cs concentrations of the considered source.

$$\text{Th sediment correction factor} = \frac{[\text{Th}]_{i,j} / [\text{Th}]_{\text{mean source}(s)}}{[^{137}\text{Cs}]_{i,j} / [^{137}\text{Cs}]_{\text{mean source}(s)}} \quad (\text{Eq. 1})$$

where $[\text{Th}]_i$ and $[^{137}\text{Cs}]_i$ are the respective thorium and cesium concentration of each individual sediment sample (i), and $[\text{Th}]_{\text{mean source}(s)}$ and $[^{137}\text{Cs}]_{\text{mean source}(s)}$ are the respective thorium and cesium

concentrations of both surface and subsurface samples when applied to each sediment sample while $[Th]_j$ and $[^{137}Cs]_j$ are the respective thorium and cesium concentrations of each individual source sample (j) (*i.e.* surface or subsurface samples) and $[Th]_{\text{mean source(s)}}$ and $[^{137}Cs]_{\text{mean source(s)}}$ are the respective thorium and cesium mean concentrations of each source when respectively applied to surface and subsurface samples. Corrected ^{137}Cs concentrations were calculated by dividing each measured ^{137}Cs concentration of each individual sample by the associated Th correcting factor.

1.2.2.c. Geochemical measurements

A selection of 31 surface sediment samples and 20 core sediment samples were analyzed for strontium isotopes. As recommended in several sediment fingerprinting studies (Collins and Walling, 2002; Motha et al., 2003; Tiecher et al., 2015; Walling et al., 2000), geochemical measurements were performed on the < 63 µm fraction of material, obtained by dry sieving. Sieving samples to the <63 µm fraction theoretically allows for a more direct comparison between sediment and potential sources elemental concentrations, as it is assumed that this size fraction corresponds to the bulk of the sediment.

Mineralization and selective extraction of the “exchangeable and carbonate” fraction. Details of the mineralization of source, sediment, carbonate rocks and fertilizer samples are given in Supplementary Material. Approximately 100 mg or 125 mg of material was dissolved by the successive addition of HF (47–51%), HClO_4 (65–71%), HCl (34–37%) and HNO_3 (67%) in closed Teflon vessels on hot plates. Proportions of reagents used and durations varied according to the sample nature.

Selective extractions using diluted acetic acid (F1 fraction of the BCR protocol) were performed to characterize the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ signature and composition of the exchangeable/carbonate fraction of sediment samples (Pueyo et al., 2001). Selective extractions of the exchangeable and carbonate phase (F1) were performed to evaluate the amount of calcium extracted and to characterize the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ signature of the exchangeable/carbonate fraction of sediment samples. This fraction corresponds to the metals affected by sorption and desorption effects (bound to particles) and/or (the elements) associated with carbonates.

The selective extraction procedure was adapted from the BCR protocol (Rauret et al., 1999). 20 mL of a solution of acetic acid (0.11 mol L^{-1}) was added to approximately 500 mg of sediment in a centrifuge tube and was shaken for 16 h at room temperature. The extractant solution was separated from the residue by centrifugation (4000 rpm min^{-1} during 20 min) and stored at 4 °C before analysis. Reproducibility of the extraction was controlled through triplicate analyses of core

sediment samples ($n = 8$). These sediment samples were selected to cover the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio variations observed in the $< 63 \mu\text{m}$ fraction of all core sediment samples. Results will be presented as the average strontium concentrations and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured for each triplicate.

Elemental concentrations and strontium isotopic analyses. Major and trace element concentrations (Na, Mg, K, Ca, Rb, Sr, Zn) were analyzed in mineralized solutions using an inductively coupled plasma qua-drupolar mass spectrometer (ICP-QMS) (X-Series, CCT II+ Thermoelectron, France). Internal standards (Re, Rh and In; SPEX, SCP Science, France) were used to correct for instrumental drift and plasma fluctuation. To limit interference, analysis was performed using a collision cell technology (CCT) which introduces a supplementary gas mixture of H₂ (7%) and He (93%) for the determination of Zn, Rb, and Sr concentrations.

A certified river water sample (SRM 1640a, NIST, Gaithersburg, USA) was used to control the ICP-MS calibration. The overall quality of ICP-MS measurements was controlled by analyzing a certified lake sediment material (IAEA lake sediment SL1). These standards were checked routinely during analysis (every 15–25 samples). Good agreement was observed between the data obtained and the certified values ($n = 91$ for SL-1 measurements). In the particulate compartment, analytical uncertainties did not exceed 10% (except for Ca, with a maximum analytical error of 13%).

Chemical separation of strontium from rubidium and calcium was performed using a cation-exchange procedure. More details are given in Supplementary Material. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were determined using a Thermo Finnigan Neptune-Plus Multi-collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer (MC-ICP-MS). The purified strontium fractions were diluted with 0.5 N HNO₃, adjusting the strontium concentration to 20 µg/L. The reproducibility of the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio measurements was evaluated through replicate analyses of the NBS 987 standard. An average value $0.710306 \pm 10 \times 10^{-6}$ (2σ , $n = 92$) was obtained. Ratios were normalized to the NBS 987 standard value of 0.710245.

1.2.3. Mineralogical characterization (SEM-EDS and X-ray diffraction)

The mineralogy of a selection ($n = 7$) of surface and core sediment was characterized by scanning electron microscopy (SEM) at Geosciences Paris Sud (GEOPS). Thin sections of powdered material were mounted on a carbon sample-holder, coated with carbon and observed with a Phenom ProX scanning electron microscope using an accelerating voltage of 15 keV coupled with an X-ray energy dispersive spectral analyzer for element discrimination.

In addition, core sediment was characterized by X-ray diffraction (XRD) using Cu K α radiation on powdered core samples. Diffractograms were recorded from 4° to $80^\circ 2\theta$, under a voltage of 45 kV and an intensity of 40 mA using a PANalytical X'Pert PRO diffractometer.

These mineralogical analyses were performed to provide information about the potential occurrence of eutrophication processes in the pond and to check for the presence of calcite in sediment samples. Sediment samples were selected depending on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and calcium concentrations previously measured to cover their range of variation.

1.2.4. Source discrimination

Cluster analyses were performed to test the similarity or differences between sediment samples and classify them into individual categories. A hierarchical cluster analysis (HCA) combined with geochemical observations was used to discriminate between sediment samples according to the lithologies of the delineated carbonate and non-carbonate subcatchments (Figure 4.1). Cluster analyses were performed with XLstat using the Ward-algorithmic method and the distance between two clusters was defined as the Euclidean distance.

A non-parametric test was used to examine similarities and differences between sediment samples. The Mann-Whitney U test was used to determine the ability of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and strontium concentrations to provide a significant discrimination between pond sediment samples at a significance level of $p < 0.05$ (Laceby et al., 2015a; Walling, 2005).

1.2.5. Distribution modeling

A distribution mixing model was used to quantify the relative contributions of sources to sediment (Caitcheon et al., 2012; Foucher et al., 2015; Laceby and Olley, 2014). For ^{137}Cs , a binary mixing model incorporating distributions was used:

$$Ax + B(1 - x) = C \quad (\text{Eq. 2})$$

where A and B are the modeled distributions of ^{137}Cs in surface and sub-surface sources respectively, C is the ^{137}Cs distribution in sediment and x is the relative contribution of the surface sources (A). x is modeled as a truncated normal distribution ($0 \leq x \leq 1$) with a mixture mean (μ_m) and a standard deviation (σ_m).

As stable isotopes do not mix linearly and are dependent of their elemental concentrations (Laceby et al., 2015b; Phillips and Koch, 2002), a different equation was used to model source concentrations $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio to incorporate their concentration dependency:

$$MMD = ABS\left(\left(E_r - \left(\sum_{s=1}^m E_s x_s\right)\right)/E_r\right) + ABS\left(\left(R_r - \left(\left(\sum_{s=1}^m C_s R_s x_s\right)/\left(\sum_{s=1}^m C_s R_s\right)\right)\right)/R_r\right) \quad (\text{Eq. 3})$$

where E_r is the elemental strontium concentration in the suspended sediment, E_s is the elemental strontium concentration in source (s), R_r is the strontium isotopic ratio in the suspended sediment, R_s is the strontium isotopic ratio in sources (s), x_s is the modelled proportional contribution of sources (s); and MMD is the mixing model difference. Absolute values (ABS) are summed in Eq. (3).

Non-negative constraints were imposed and normal distributions were modeled for all distributions. Pond and core sediment samples were individually modeled with their analytical error substituted as a standard deviation to model a normal distribution around each of the individual sediment samples ([Evrard et al., 2016; Wilkinson et al., 2015](#)).

Source contributions were determined with the Optquest algorithm in Oracle's Crystal Ball Software (see [Laceby and Olley, 2014](#)). To determine one optimal source contribution, the μ_m and σ_m for each source's contribution distribution (x or x_s) were randomly varied during the equation solving process while minimizing the median difference between both sides of Eq. (2) and the MMD in Eq. (3), and simultaneously solving these equations 2500 times with 2500 random samples (Latin Hypercube - 500 bins) drawn from each sediment and source distribution. This model simulation and solving process was then repeated 2500 times. The median proportional source contribution (x or x_s) from these 2500 additional simulations is reported as the contribution from each source.

Model uncertainty was determined by summing the modeled standard deviation (σ_m), the median absolute deviation (MAD) of the modeled source contribution and the MAD of the modeled standard deviation for the 2500 model simulations ([Laceby et al., 2015a](#)). Results (concentrations and contributions) are presented using the notation \pm to express the standard error associated to one sample whereas the mean (μ) and standard deviation (σ) are used for groups of samples.

1.3 Results

1.3.1. ^{137}Cs concentrations in source and sediment samples

^{137}Cs activities in channel bank samples ranged from 0.0 to 3.0 Bq kg $^{-1}$ (μ 1.4 Bq kg $^{-1}$, σ 1 Bq kg $^{-1}$). In surface soil samples, activities varied between 1.0 and 8.0 Bq kg $^{-1}$ (μ 3.3 Bq kg $^{-1}$, σ 1.4 Bq kg $^{-1}$). Surface and subsurface sources were statistically different ($p < 0.0001$). Sediment had higher ^{137}Cs concentrations than their potential source samples with activities varying between 1.2 and 23.1 Bq kg $^{-1}$ (μ 12.6 Bq kg $^{-1}$, σ 5.5 Bq kg $^{-1}$) for pond surface sediment and between 10.9 and 16.3 Bq kg $^{-1}$ (μ 13 Bq kg $^{-1}$, σ 2.4 Bq kg $^{-1}$) for core sediment. ^{137}Cs concentrations were only considered in sediment from the top layers of the core, between 0 and 16 cm of depth ($n = 5$), to avoid disturbances from the input of ^{137}Cs from the Chernobyl accident which had peak activities at 29 cm ([Foucher et al., 2015](#)) and Fukushima ^{137}Cs fallout inputs were shown to be negligible in France ([Evrard et al., 2012](#)).

As pond and core sediment sample concentrations did not plot between the source concentrations, a Th-based particle-size correction was applied (Figure 4.2a). After the Th particle size correction, activities in channel bank samples ranged between 0.0 and 1.7 Bq kg^{-1} ($\mu 1.2 \text{ Bq kg}^{-1}$, $\sigma 0.5 \text{ Bq kg}^{-1}$), between 0.3 and 15.7 Bq kg^{-1} in surface samples ($\mu 3.8 \text{ Bq kg}^{-1}$, $\sigma 3.0 \text{ Bq kg}^{-1}$), between 0.7 and 4.1 Bq kg^{-1} in pond sediment samples ($\mu 3.2 \text{ Bq kg}^{-1}$, $\sigma 0.5 \text{ Bq kg}^{-1}$) and between 3.1 and 3.4 Bq kg^{-1} in the upper core sediment samples ($\mu 3.3 \text{ Bq kg}^{-1}$, $\sigma 0.1 \text{ Bq kg}^{-1}$). The corrected sediment ^{137}Cs concentrations remained within the range of corrected concentrations found in their potential sources (Figure 4.2b).

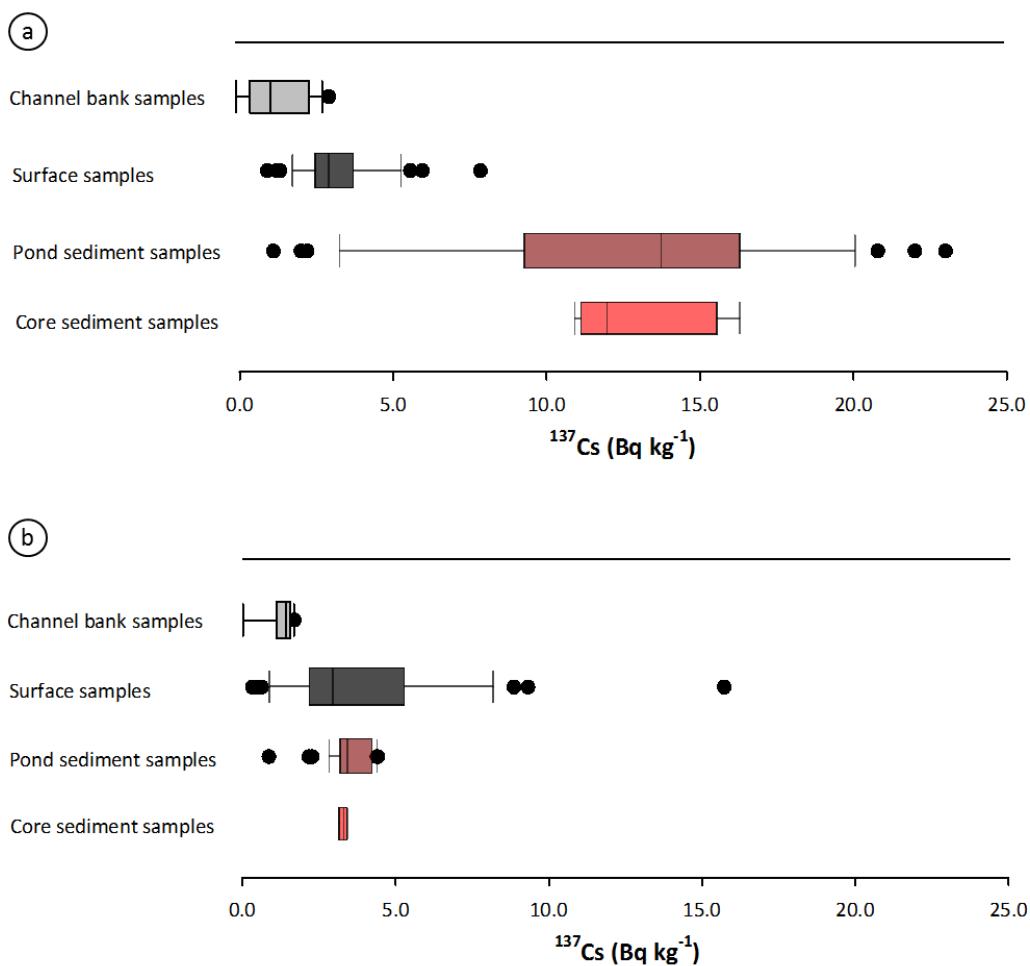


Figure 4.2. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}) in channel bank, soil, pond and core sediment samples before (a) and after (b) the Th particle size correction (bold horizontal line = median, box extent = 25th percentiles, error bars = non-outlier range, black dots = outliers).

1.3.2. Geochemical discrimination of potential sediment sources

There were large variations in sediment $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, ranging from 0.710739 to 0.716864 (Annexe C - Table C2) indicating contributions from different lithological sources. The highest values (0.713867 to 0.716761, $n = 8$) were generally observed at the inlet of the stream draining the non-carbonate subcatchment. In contrast, the lowest values (0.711595 to 0.712502, $n = 6$) were found at

the inlet of the stream draining the carbonate subcatchment, except for one sample (0.711999) located at the inlet of the non-carbonate subcatchment (Figure 4.3a). Intermediate $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios with values between these two end-members (ranging from 0.712151 to 0.714711) characterized sediment collected in downstream sections of the pond (Figure 4.3a).

A hierarchical cluster analysis (HCA) based on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and strontium concentrations was performed to examine potential sources of pond sediment (Annexe C - Figure C2). Three main groups or clusters were discriminated based on this analysis.

Samples from Cluster 1 (N°24, 25, 26, 28, 29, 17 and 57) are located at the inlet of southern tributaries in the pond with the exception of two samples (N°17 and 57) located at the inlet of the northern tributaries and in the downstream part of the pond. These sediment samples displayed the lowest pond sediment signatures with $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios ranging between 0.711595 and 0.712316.

Samples from Cluster 2 (N°01, 07, 09, 10, 12, 13, 14, 18, 47, 49 and 61) had the highest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, with values varying between 0.712466 and 0.716761. They are mainly located in the inlet of the northern tributaries, with the exception of three samples (N°47, 49 and 61) located in downstream areas of the pond.

Cluster 3 (N°19, 20, 21, 22, 27, 33, 34, 38, 41, 43, 52, 70 and 73) is composed of samples located close to the inlet of the northern tributaries, in the middle and in the downstream areas of the pond. One sample (27) located in the inlet of the southern tributaries is likely an outlier. These sediment samples displayed $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios comprised between 0.712502 and 0.713467 and show intermediate values compared to those grouped in Clusters 1 and 3.

When taking into account the location of the sediment samples in the pond, the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ signatures and the lithologies drained by northern and southern tributaries, sediment samples from Cluster 1 can be defined as a southern/carbonate source (except 17 and 57 samples) whereas sediment samples from Cluster 2 can be referred to as a northern/non-carbonate source (except 47, 49 and 61 samples). The remaining sediment samples (from Cluster 3 and those classified in Clusters 1 and 2 but located in the downstream section of the pond) were hypothesized to be derived from a mixture of sediment originating from the two previously defined end-members. Scatter plots with $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratios (Rb/Sr, Ca/Sr, Mg/Sr, K/Sr, Na/Sr) were also used to confirm the discrimination between these sediment sources (Annexe C - Figure C3). Therefore, sediment samples collected in the two inlets draining the carbonate and non-carbonate subcatchments were used to characterize the two main potential sources of downstream pond sediment.

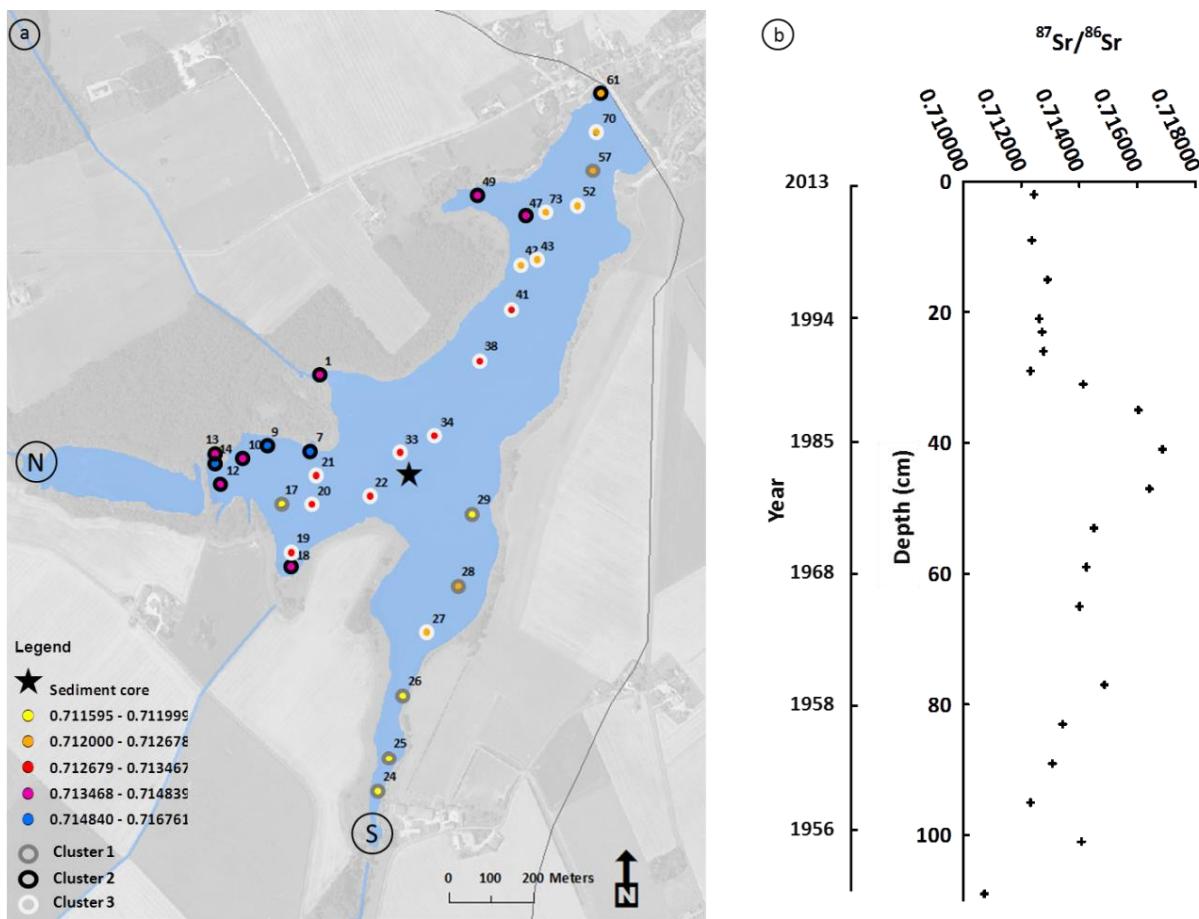


Figure 4.3. Spatial (a) and temporal (b) variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in pond and core sediment samples. N and S correspond to the northern and southern inlets of the main tributaries, respectively (a).

In addition to these two main sources, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios were measured in carbonate rocks, shelly sands and fertilizers. In the carbonate rocks, signatures varied between 0.707968 and 0.708789 while the shelly sand signature reached a value of 0.709538. In fertilizers typically used in this catchment, strontium isotopic ratios varied between 0.707877 and 0.716224. The N fertilizer had the highest value (0.716224). However, it was removed from further analysis owing to a very low Sr concentration (0.5 mg kg^{-1}). In P.K and N.P.K fertilizers, Sr ratios varied between 0.707877 and 0.709178 (Annexe C - Table C6). In addition, elevated zinc concentrations were measured in these samples (136 and 184 mg kg^{-1} , respectively, see Annexe C - Table C6). High zinc concentrations were also observed in surface pond (with concentrations ranging between 67 and 124 mg kg^{-1}) and core sediment (Annexe C - Table C3 and Table C4). In the core, a progressive increase in zinc concentrations was observed from the bottom (47 mg kg^{-1}) to the top (102 mg kg^{-1}).

1.3.3. Temporal variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in core sediment samples

In the Louroux sediment core, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios ranged from 0.710739 to 0.716864 (Figure 4.3b). The lowest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio (0.710739) was observed in 1955, on the bottom of the core. From 1956 to 1976, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios tended to increase to a maximum of 0.716864. Then, from 1976 to 1986, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios decreased until they stabilized with values ranging between 0.712318 and 0.712900 from 1986 to 2013 (Figure 4.3b). Strontium isotopic signatures in core sediment samples have the same range of variations as those observed in pond sediment samples.

1.3.4. Mineralogical characterization and selective extraction performed on selected core and pond sediment samples

XRD analyses indicated the presence of calcite in all core sediment samples, with contributions varying between 10 and 32% (Annexe C - Table C1). SEM micrographs confirmed the presence of calcite in the sediment samples. The calcite was well precipitated, partially precipitated and potentially associated with clays depending on the samples (Annexe C - Figure C4f, Figure C4a-b-c-d-g-h and Figure C4a-b-c-d-i, respectively). Furthermore, silica tubes and diatoms were observed in two core sediment samples (Annexe C - Figure C4e and g, respectively).

Between 1955 and 1963, the proportion of strontium contained in the exchangeable and carbonate fraction (F1) oscillated between 56 and 73%, the lowest proportion being observed on the bottom of the core. The lowest F1 fraction of the entire sequence (43%) was observed in 1976, before increasing to reach a stable state between 1986 and 2005 with a F1 fraction ranging between 68 and 73% (Figure 4.4a).

Between 1955 and 2005, the proportion of calcium contained in the F1 fraction increased from 62% to a maximum of 90%. The highest contributions were observed between 1976 and 2005 (Figure 4.4b). $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the F1 fraction increased from 1955 to 2005, following the same trends as calcium in this fraction (Figure 4.4). The two lowest $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios (0.709216 and 0.709236) were observed in 1955 and 1957. A strong increase was observed from 1957 to 1976, and stable ratios (0.709380 to 0.709395) occurred between 1986 and 2005, when the stabilization of the F1 fraction was observed.

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios plotted between the signatures of the carbonate rocks, the fertilizers and the shelly sand, suggesting a potential impact of all these sources on the isotopic signature of the core sediment samples (Figure 4.5). Sediment sources were thus modeled following a tributary tracing approach ([Laceby et al., 2015a; Vale et al., 2016](#)). With this approach, pond sediment samples from inlets of the two main tributaries were modeled as the two main lithological sources (carbonate and

non-carbonate) to downstream pond sediment and the sediment core. The potential influence of carbon-ate rocks, shelly sands, fertilizers, and eutrophication is incorporated within these two tributary sources with this sediment-based sampling approach for surface pond sediment.

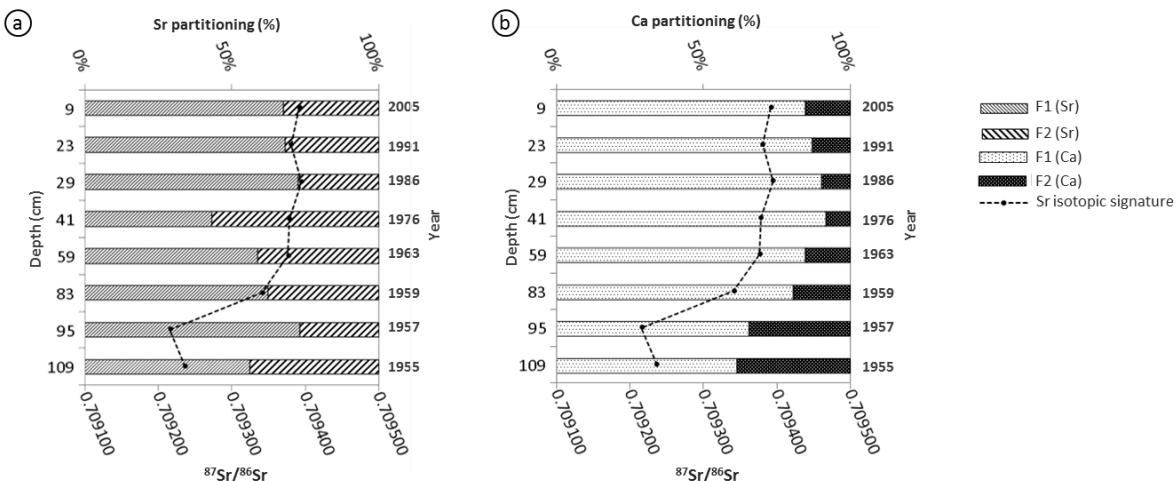


Figure 4.4. Strontium (a) and calcium (b) partitioning in core sediment between two defined fractions F1 (exchangeable and carbonate fraction) and F2 (residual fraction) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the fraction F1.

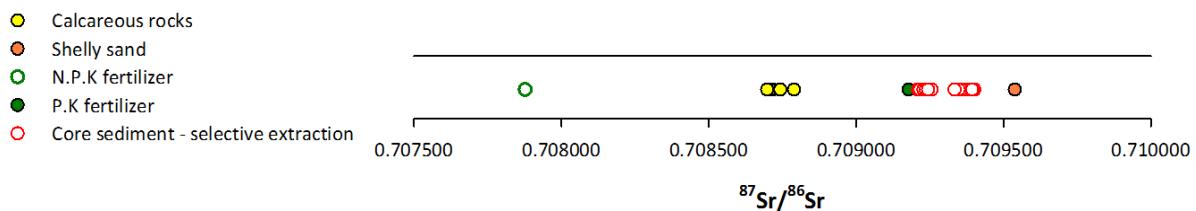


Figure 4.5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios variations in carbonate rocks, shelly sand, fertilizers and the exchangeable/carbonate fraction of core sediment samples.

1.3.5. Modeling results

1.3.5.a. Spatial variations of sediment sources in the pond

Surface sources dominated the supply of sediment to the pond ($\mu 82\%$, $\sigma 1\%$). Surface source contributions varied between $26 \pm 1\%$ and $100 \pm 4\%$, and fifteen sediment samples were modeled to be derived exclusively from surface sources (Figure 4.6a). Samples characterized by a significant contribution from subsurface sources were mainly located at the inlet of the two main tributaries (the Beaulieu and Grand Bray streams, with contributions of the channel banks varying between $12 \pm 1\%$ and $67 \pm 1\%$) or near pond banks in the downstream section of the pond with contributions varying between $7 \pm 2\%$ and $75 \pm 1\%$.

Mixing model results using pond sediment samples from the inlet of the two main tributaries as subcatchment sources indicated that the carbonate tributary supplied between $4 \pm 1\%$ and $100 \pm 1\%$ of downstream sediment in the pond ($\mu 48$, $\sigma 1\%$) (Figure 4.6b). One sediment sample (N°17) located

in the inlet of the non-carbonate tributary had a high carbonate contribution of $89 \pm 1\%$. In the central part of the pond, sources contributions were well balanced with the carbonate tributary inputs ranging between $52 \pm 1\%$ and $56 \pm 1\%$. In the downstream area of the pond, the carbonate tributary contributions were more variable, with the lowest and the highest contributions observed in this well-mixed section.

1.3.5.b. Temporal variation of sediment sources in the core

Modeling results indicate that during the last 17 years, surface sources supplied the majority of core sediment, with a mean contribution of $89 \pm 3\%$ (Figure 4.7b). Overall, contributions varied between $80 \pm 3\%$ and $96 \pm 5\%$. Between 1999 and 2001, a slight increase in the surface source contribution was observed with values increasing from $86 \pm 1\%$ to $96 \pm 5\%$ before decreasing again between 2009 and 2013 to values between $80 \pm 3\%$ and $83 \pm 1\%$. As previously indicated, ^{137}Cs concentrations were only considered in the top 0-16 cm to avoid disturbances from the input of ^{137}Cs from the Chernobyl accident recorded at 29 cm ([Foucher et al., 2015](#)). Accordingly, contributions were not estimated below a depth of 16 cm.

Between 1955 and 1957, high variations in sediment spatial sources were observed (Figure 4.7a). In 1955, sediment exclusively originated from the southern/carbonate tributary ($100 \pm 1\%$). Then, dramatic changes were observed with a dominant contribution from the northern/non-carbonate tributary ($96 \pm 4\%$) in 1956. The main source changed again, with the dominance of the southern/carbonate tributary ($89 \pm 2\%$) in 1957. From 1957 to 1981, the contribution of the northern/ non-carbonate tributary progressively increased to a maximum contribution of $100 \pm 13\%$. Then, between 1981 and 1986, these contributions decreased to reach a stable state in the upper part of the core (0–31 cm of depth) where the northern/non-carbonate tributary contributed between $30 \pm 1\%$ and $47 \pm 1\%$ of sediment from 1986 to 2013.

1.4 Discussion

1.4.1. Surface and channel bank source contributions

Surface soils were identified as the main source of surface pond sediment. This result is consistent with the observations of [Foucher et al. \(2015\)](#) for suspended sediment collected during flood events upstream of the Louroux pond. They showed that virtually all the sediment originated from the soil surface ($\mu 98\%$, $\sigma 2\%$). However, during low flow periods, they found that suspended sediment transiting the river network had elevated subsurface source contributions ($\mu 60\%$, $\sigma 2\%$) ([Foucher et](#)

al., 2015). In this current research, subsurface contributions to pond sediment were shown to be significant in areas located in the inlets of the main tributaries close to the pond banks (with contributions ranging between $12 \pm 1\%$ and $67 \pm 1\%$). In the rest of the pond, surface sources dominated ($\mu 86\%$, $\sigma 1\%$). The potential erosion of the banks of the pond may also explain the significant contributions of the subsurface source observed near the pond banks and in the downstream section of the pond, simply owing to their proximity, or possibly smaller tributaries draining into these locations (e.g. N°47, 49).

In the sediment core, there were also subsurface contributions (maximum contribution of $20 \pm 3\%$). These contributions remained stable ($\mu 11\%$, $\sigma 3\%$), indicative of an ongoing channel bank sediment source contribution, though less than what Foucher et al. (2015) modeled for the low-flow conditions in 2013. Overall, channel bank contributions to the pond and core sediment were similar ($\mu 18\%$, $\sigma 1\%$ and $\mu 11\%$, $\sigma 3\%$ respectively). In fact, the core sediment mean subsoil contribution between 2009 and 2013 (18%) was equivalent to the mean subsoil contribution for the pond sediment. These results suggest that although surface sources dominated sediment supply to the pond during the last seventeen years, channel bank contributions should not be neglected.

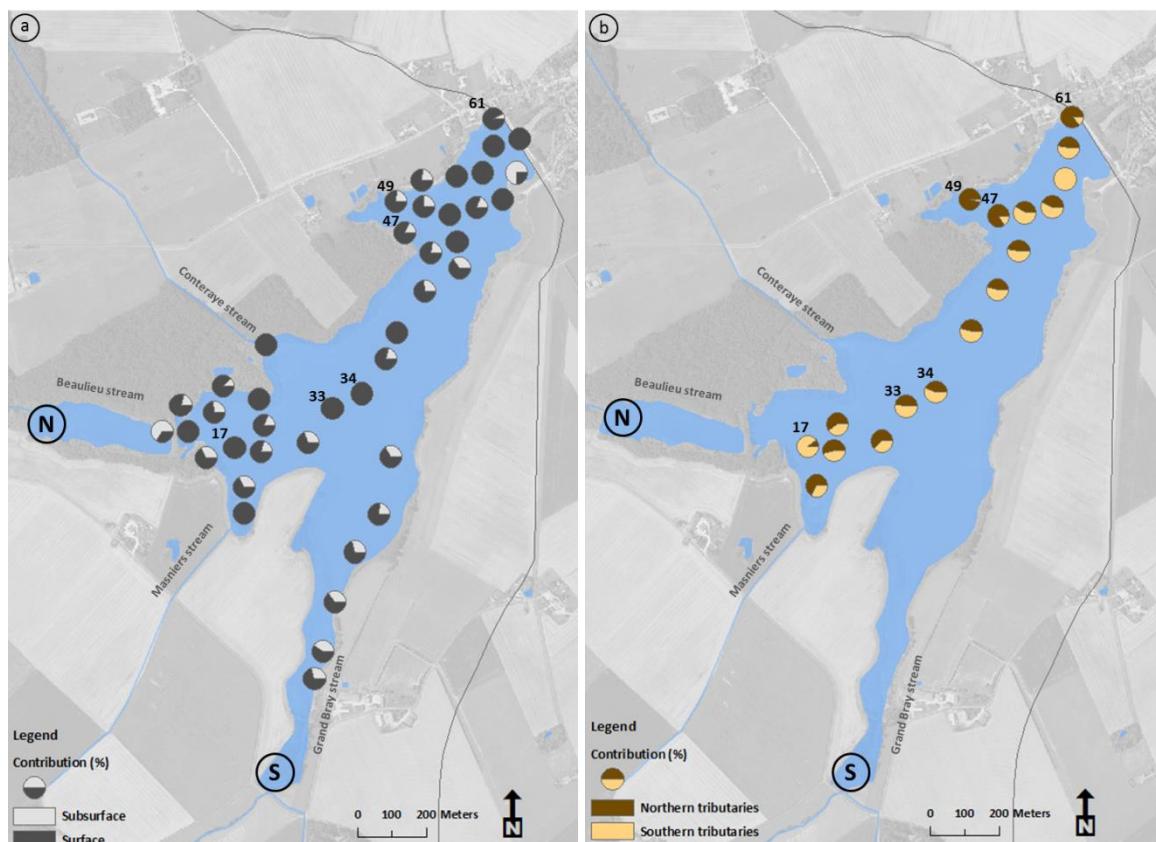


Figure 4.6. Contributions of the surface and subsurface sources (a) and of the carbonate (southern) and non-carbonate (northern) sources (b) to the surface sediment collected in the Louroux pond. N and S correspond to the northern and southern inlets of the main tributaries.

1.4.2. Tributary contributions to pond sediment

Modeling results based on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios indicate that the southern/carbonate and northern/non-carbonate tributary contributions to pond sediment were nearly equivalent ($\mu 48\%$, $\sigma 1\%$ and $\mu 52\%$, $\sigma 3\%$ respectively). Over the last seventeen years, both tributaries contributed in stable proportions to sediment sampled in the core ($\mu 64\%$, $\sigma 1\%$ for the southern/carbonate tributary).

The southern tributaries drain most of the carbonate substrates that only cover 24% of the catchment surface area and their derived sediment were modeled to contribute more than half of the downstream pond sediment. Therefore, this research implies that the southern/carbonate area supplied disproportionately more sediment to the pond than the northern/non-carbonate area.

One sediment sample (N°17) located in the inlet of the non-carbonate tributary was shown to mainly originate from the carbonate area ($89 \pm 1\%$). Field observations indicated that crushed limestone was used to stabilize channel banks in that section of the pond and a mix of sediment and this limestone may have been sampled at that location. Three sediment samples (N°47, 49 and 61) located in the down-stream section of the pond were statistically classified as northern/non-carbonate (Cluster 3). Field observations revealed that ephemeral tributaries draining flint clay substrate areas flow into the pond at these locations, which may explain their classification as northern/non-carbonate sediment.

Model results obtained from the core samples demonstrate high variations in lithological sources from 1955 to 2013. The variations are likely related to the spatial evolution of the land consolidation and river design schemes implemented in the catchment since the 1950s. The drastic changes in source contributions observed between 1955 and 1957 could be interpreted as the response to a large-scale phase of land consolidation in 1955 ([Foucher et al., 2014](#)). The increasing contribution of the northern/non-carbonate tributary from 1957 to 1981 may be directly related to the implementation of a dense drainage network, the creation of ditches, and the removal of hedges in this northern/non-carbonate area. From 1981 until 1986, the contribution of the carbonate tributary increased and then reached a relatively steady state between 1986 and 2013, with carbonate tributary contributions fluctuating between $53 \pm 1\%$ and $70 \pm 1\%$. The Beaulieu pond, located directly upstream of the Louroux pond and currently almost filled with sediment, could act as a buffer, reducing the sediment contributions from the northern/non-carbonate tributary to downstream Louroux pond sediment.

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, calcium and strontium concentrations (Annexe C - Table C5) were measured in the exchangeable and carbonate fraction of a selection of core sediment samples to provide information on the biological and chemical processes that may have occurred in the Louroux pond. Results

indicated that the carbonate fraction (F1) in the core sediment increased between 1955 and 2005 and had a maximal contribution since 1976. This may be related to higher amounts of carbonates precipitated in the pond during this period, which confirms previous findings showing the occurrence of a progressive eutrophication of the pond. This is confirmed by the presence of algae typical of eutrophic environments and the increase of autochthonous material, with contributions estimated between 44 and 50% (Foucher et al., 2014). These observations are also consistent with the results of XRD and SEM analyses.

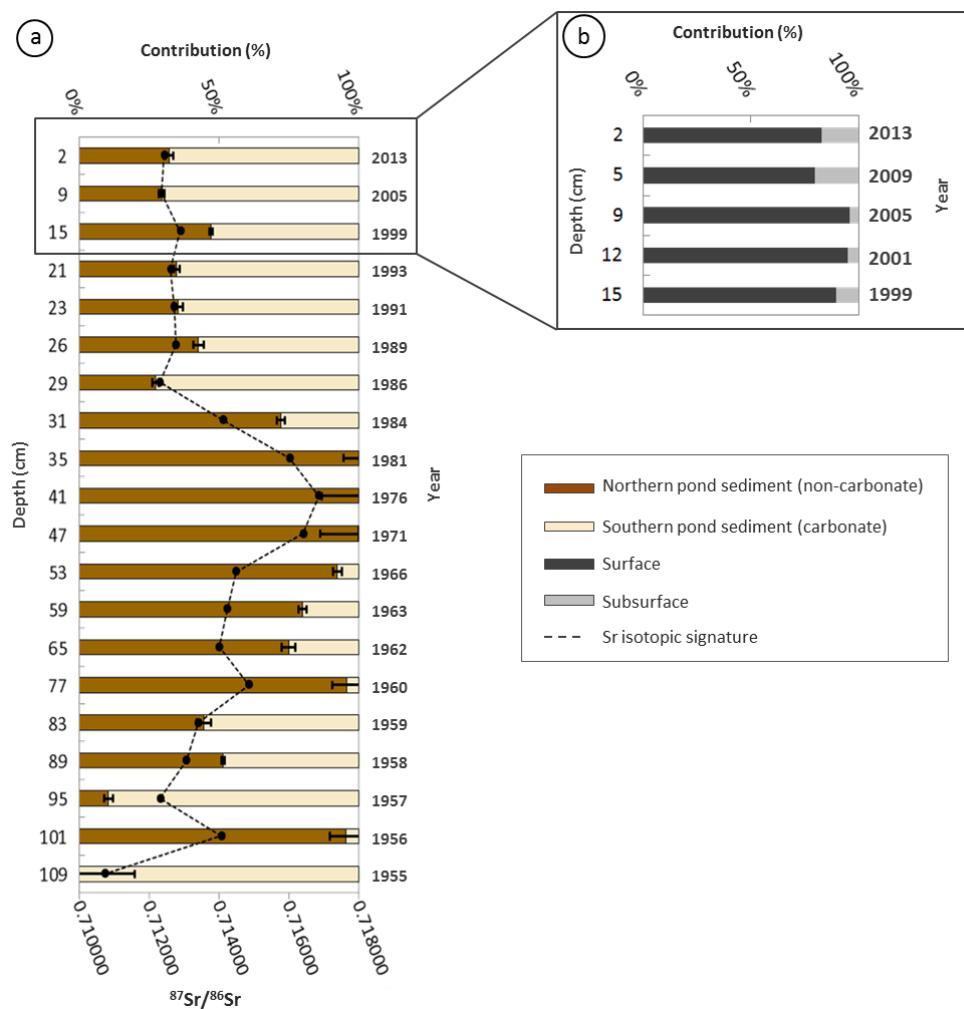


Figure 4.7. Evolution of the lithological (a), surface and subsurface (b) sediment sources contributions and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios along the sediment core (error bars reflect the modeling standard deviation for each sediment sample).

Well crystallized calcite was exclusively observed on the bottom of the core (Annexe C - Figure C4f) during a period that occurred before the implementation of land consolidation programs in the catchment. In contrast, partially precipitated calcite, which is potentially easier to extract, was observed on top of the core, suggesting the occurrence of in situ precipitation. Previous studies conducted in the Loire River (France) observed authigenic calcite precipitation during low flow in summer (Négrel and Grosbois, 1999). In addition, it has been demonstrated that under temperate

climates, calcite precipitation can be directly related to inputs of nutrients and thus to primary production ([Hamilton et al., 2009](#)). Strontium contributions in the F1 fraction did not follow exactly the same trend as calcium contributions, with a slight shift towards higher ratios in the most recent sediment. This suggests that strontium sources of the carbonate fraction evolved through time and did not exclusively originate from litho-logical carbonates. Additional sources, such as fertilizers, may potentially explain strontium variations in the carbonate fraction.

1.4.3. Implications for sediment tracing, catchment management and future studies

The tributary tracing approach may be a useful approach to addressing potential eutrophication, anthropogenic inputs (fertilizers) and in situ precipitation when using $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios for tracing sediment in agricultural catchments. In particular, fertilizers are known to be a major source of contaminants (Zn, Cu, Cd, Pb and Ni) in agricultural soils ([Nziguheba and Smolders, 2008](#)) and erosion of these contaminated soils may lead to the deterioration and eutrophication of water bodies ([Otero et al., 2005; Vitoria et al., 2004](#)). Furthermore, strontium concentrations may vary between 10 and 4500 mg kg⁻¹ in phosphate fertilizers ([Otero et al., 2005](#)). Although $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ fractionation in ecological systems is negligible, the redistribution and accumulation of strontium originating from fertilizers in soils may contribute to changes in their isotopic signatures ([Borg and Banner, 1996](#)). As an example, [Hosono et al. \(2007\)](#) indicated that 25% of the dissolved Sr was derived from fertilizers in rivers draining a Japanese agricultural catchment. In the Louroux catchment, P.K and N.P.K fertilizers were characterized by high zinc concentrations. Similarly, high Zn concentrations were measured in surface pond sediment and in core sediment since 1983. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the mobile fraction (F1) of core sediment were between the signatures of carbonate rocks and shelly sands and the signature of the P.K fertilizers. These results suggest that fertilizers have impacted sediment composition in this catchment since the beginning of the 1980s.

The potential impact of these fertilizers on sediment and source soil properties resulted in the need to adopt a tributary tracing approach in this current research. This approach directly incorporates fertilizers and other potential influences on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios when tracing the source of downstream sediment in the Louroux Pond. Although the sediment core $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios plotted within the tributary source range, it would be useful for future research to compare 3–5 sediment cores of equivalent length, sampled in each tributary, to sediment cores downstream in order to comprehensively investigate tributary $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ source ratios and variations over an equivalent temporal period.

Importantly, these results demonstrate the need to better manage cultivated soils. Land consolidation schemes, modifications in farming practices and in catchment management were shown to have a strong impact on spatial variations of the main sources of sediment. To date, sedimentary archives were mainly collected in lacustrine environments to reconstruct historical sediment fluxes related to environmental changes over longer periods (typically the Holocene period). However, they were mostly collected in mountainous environments (Arnaud et al., 2012; Chapron et al., 2002; Simonneau et al., 2013). Sediment cores were also used to reconstruct concentrations of various contaminants in sediment with time in a large number of rivers of the world (Barra et al., 2001; Bertrand et al., 2013; Elbaz-Poulichet et al., 2011; Rawn et al., 2001). This current approach, combining radionuclide and isotopic geochemical measurements to pond sediment cores, provides important information on sediment source evolution in agricultural lowland catchments in relation to changes in land use and agricultural practices.

1.5 Conclusions

A targeted fingerprinting approach that combined fallout radio-nuclides (^{137}Cs), including a thorium-based particle size correction, and strontium isotopic geochemistry ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) was used to examine spatial and temporal variations of sediment sources in a low-land, drained agricultural catchment. A within-pond tributary tracing approach was developed to mitigate the potential influence of eutrophication, anthropogenic inputs (fertilizers) and in situ precipitation. This research demonstrated the utility of coupling radionuclides and strontium isotopic geochemistry to quantify sediment sources and collecting sediment in pond tributary inlets to use as a source surrogate to trace the origin of sediment sampled downstream.

Surface sources dominated the Louroux pond sediment supply ($\mu 82\%$, $\sigma 1\%$). The tributaries draining both the carbonate and the non-carbonate subcatchments contributed approximately half of the surface pond sediment. In contrast, large fluctuations of these tributary contributions were modeled from the analysis of a sediment core. These variations likely reflect the spatial pattern of the land consolidation scheme implemented in this catchment that started in the 1950s.

This research demonstrates the utility of using sediment archives to reconstruct the impact of large scale catchment modifications on sediment dynamics. Further analysis of sediment draining agricultural areas should be encouraged to improve our understanding of erosion processes that occurred in these environments. Understanding past impacts of land management on soil erosion and sediment dynamics is fundamental to improving future best management practices in agricultural catchments

Acknowledgements

The authors would like to thank Louise Bordier for technical assistance with ICP-MS measurements, Serge Miska for XRD analyses and Julius Nouet for SEM analyses. This work received financial support from the Loire-Brittany Water Agency (in the framework of the Tracksed (no. 120081601) and Drastic (no. 130467101) research projects, under the close supervision of Xavier Bourrain, Jean-Noël Gauthier and Anne Colmar). Marion Le Gall received a PhD fellowship from CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, France) and DGA (Direction Générale de l'Armement, Ministry of Defense, France).

2. Références bibliographiques Chapitre 4

- Aberg, G., 1995. The use of natural strontium isotopes as tracers in environmental studies. *Water, Air and Soil Pollution*, 79: 309-322.
- Arnaud, F., Révillon, S., Debret, M., Revel, M., Chapron, E., Jacob, J., Giguet-Covex, C., Poulenard, J., Magny, M., 2012. Lake Bourget regional erosion patterns reconstruction reveals Holocene NW European Alps soil evolution and paleohydrology. *Quaternary Science Reviews*, 51: 81-92.
- Asahara, Y., Ishiguro, H., Tanaka, T., Yamamoto, K., Mimura, K., Minami, M., Yoshida, H., 2006. Application of Sr isotopes to geochemical mapping and provenance analysis: The case of Aichi Prefecture, central Japan. *Applied Geochemistry*, 21(3): 419-436.
- Asahara, Y., Tanaka, T., Kamioka, H., Nishimura, A., Yamazaki, T., 1999. Provenance of the north Pacific sediments and process of source material transport as derived from Rb-Sr isotopic systematics. *Chemical Geology*, 158: 271-291.
- Aubert, D., Stille, P., Probst, A., 2001. REE fractionation during granite weathering and removal by waters and suspended loads: Sr and Nd isotopic evidence. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65(3): 387-406.
- Ayrault, S., Roy-Barman, M., Le Cloarec, M.F., Priadi, C.R., Bonte, P., Gopel, C., 2012. Lead contamination of the Seine River, France: geochemical implications of a historical perspective. *Chemosphere*, 87(8): 902-10.
- Bakari, S.S., Aagaard, P., Vogt, R.D., Ruden, F., Johansen, I., Vuai, S.A., 2013. Strontium isotopes as tracers for quantifying mixing of groundwater in the alluvial plain of a coastal watershed, south-eastern Tanzania. *Journal of Geochemical Exploration*, 130: 1-14.
- Bakker, M.M., Govers, G., Rounsevell, M.D.A., 2004. The crop productivity–erosion relationship: an analysis based on experimental work. *Catena*, 57(1): 55-76.
- Banowetz, G.M., Whittaker, G.W., Dierkson, K.P., Azevedo, M.D., Kennedy, A.C., Griffith, S.M., Steiner, J.J., 2006. Fatty acid methyl ester analysis to identify sources of soil in surface waters. *Journal of Environmental Quality*, 35: 133-140.
- Barra, R., Cisternas, M., Urrutia, R., Pozo, K., Pacheco, P., Parra, O., Focardi, S., 2001. First report on chlorinated pesticide deposition in a sediment core from a small lake in central Chile. *Chemosphere*, 45: 749-757.
- Bertrand, O., Montargès-Pelletier, E., Mansuy-Huault, L., Losson, B., Faure, P., Michels, R., Pernot, A., Arnaud, F., 2013. A possible terrigenous origin for perylene based on a sedimentary record of a pond (Lorraine, France). *Organic Geochemistry*, 58: 69-77.
- Blum, J.D., Erel, Y., Brown, K., 1994. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of Sierra Nevada stream waters: Implications for relative mineral weathering rates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58: 5019-5025.
- Boardman, J., 1993. Soil erosion and flooding as a result of a summer thunderstorm in Oxfordshire and Berkshire, May 1993. *Applied Geography*, 16(1): 21-34.
- Boardman, J., Poesen, J., Evans, R., 2003. Socio-economic factors in soil erosion and conservation. *Environmental Science & Policy*, 6(1): 1-6.
- Borg, L.E., Banner, J.L., 1996. Neodymium and strontium isotopic constraints on soil sources in Barbados, West Indies. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60(21): 4193-4206.
- Brenot, A., Baran, N., Petelet-Giraud, E., Négrel, P., 2008. Interaction between different water bodies in a small catchment in the Paris basin (Brévilles, France): Tracing of multiple Sr sources through Sr isotopes coupled with Mg/Sr and Ca/Sr ratios. *Applied Geochemistry*, 23(1): 58-75.
- Brown, A.G., Carpenter, R.G., Walling, D.E., 2008. Monitoring the fluvial palynomorph load in a lowland temperate catchment and its relationship to suspended sediment and discharge. *Hydrobiologia*, 607(1): 27-40.
- Caitcheon, G.G., Olley, J.M., Pantus, F., Hancock, G., Leslie, C., 2012. The dominant erosion processes supplying fine sediment to three major rivers in tropical Australia, the Daly (NT), Mitchell (Qld) and Flinders (Qld) Rivers. *Geomorphology*, 151-152: 188-195.
- Chapron, E., Desmet, M., De Putter, T., Loutre, M.F., Beck, C., Deconinck, J.F., 2002. Climatic variability in the northwestern Alps, France, as evidenced by 600 years of terrigenous sedimentation in Lake Le Bourget. *The Holocene*, 12(2): 177-185.
- Chartin, C., Evrard, O., Onda, Y., Patin, J., Lefèvre, I., Ottlé, C., Ayrault, S., Lepage, H., Bonté, P., 2013. Tracking the early dispersion of contaminated sediment along rivers draining the Fukushima radioactive pollution plume. *Anthropocene*, 1: 23-34.

- Collins, A.J., Walling, D.E., 2002. Selecting fingerprint properties for discriminating potential suspended sediment sources in river basins. *Journal of Hydrology*, 261: 218-244.
- Collins, A.J., Walling, D.E., 2004. Documenting catchment suspended sediment sources: problems, approaches and prospects. *Progress in Physical Geography*, 28(2): 159-196.
- Collins, A.L., Zhang, Y., McChesney, D., Walling, D.E., Haley, S.M., Smith, P., 2012. Sediment source tracing in a lowland agricultural catchment in southern England using a modified procedure combining statistical analysis and numerical modelling. *Science of the Total Environment*, 414: 301-17.
- Davis, C.M., Fox, J.F., 2009. Sediment fingerprinting: review of the method and future improvements for allocating nonpoint source pollution. *Journal of Environmental Engineering*, 135: 490-504.
- Devlin, M.J., Barry, J., Mills, D.K., Gowen, R.J., Foden, J., Sivyer, D., Tett, P., 2008. Relationships between suspended particulate material, light attenuation and Secchi depth in UK marine waters. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 79(3): 429-439.
- Dotterweich, M., 2013. The history of human-induced soil erosion: Geomorphic legacies, early descriptions and research, and the development of soil conservation—A global synopsis. *Geomorphology*, 201: 1-34.
- Douglas, G., Gray, C.M., Hart, B., Beckett, R., 1995. A strontium isotopic investigation of the origin of suspended particulate matter (SPM) in the Murray-Darling River system, Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(18): 3799-3815.
- Douglas, G., Palmer, M., Caitcheon, G., 2003. The provenance of sediments in Moreton Bay, Australia: a synthesis of major, trace element and Sr-Nd-Pb isotopic geochemistry, modelling and landscape analysis. *Hydrobiologia*, 494: 145-152.
- Eikenberg, J., Tricca, A., Vezzu, G., Stille, P., Bajo, S., Ruethi, M., 2001. $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ isotope relationships for determining interactions between ground and river water in the upper Rhine valley. *Journal of Environmental Radioactivity*, 54: 133-162.
- Elbaz-Poulichet, F., Dezileau, L., Freydier, R., Cossa, D., Sabatier, P., 2011. A 3500-Year Record of Hg and Pb Contamination in a Mediterranean Sedimentary Archive (The Pierre Blanche Lagoon, France). *Environmental Science & Technology*, 45(20): 8642-8647.
- Evrard, O., Bielders, C.L., Vandaele, K., van Wesemael, B., 2007. Spatial and temporal variation of muddy floods in central Belgium, off-site impacts and potential control measures. *Catena*, 70(3): 443-454.
- Evrard, O., Laceby, J.P., Huon, S., Lefèvre, I., Sengtaheuanghong, O., Ribolzi, O., 2016. Combining multiple fallout radionuclides (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) to investigate temporal sediment source dynamics in tropical, ephemeral riverine systems. *Journal of Soils and Sediments*, 16(3): 1130-1144.
- Evrard, O., Navratil, O., Ayrault, S., Ahmadi, M., Némery, J., Legout, C., Lefèvre, I., Poirel, A., Bonté, P., Esteves, M., 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surface Processes and Landforms*, 36(8): 1072-1089.
- Evrard, O., Van Beek, P., Gateuille, D., Pont, V., Lefevre, I., Lansard, B., Bonte, P., 2012. Evidence of the radioactive fallout in France due to the Fukushima nuclear accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, 114: 54-60.
- Faure, G., 1986. Principles of Isotopic Geology. Wiley, New York.
- Foucher, A., 2015. Reconstruction de la cascade sédimentaire en contexte de plaine agricole drainée : Sources, voies de transfert et stockage de matière dans le bassin versant du Louroux (Indre-et-Loire) - Université François Rabelais de Tours, Ecole doctorale EMSTU, Thèse, 203 pp.
- Foucher, A., Laceby, P.J., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Le Gall, M., Lefèvre, I., Cerdan, O., Rajkumar, V., Desmet, M., 2015. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: The application of a thorium-based particle size correction in sediment fingerprinting. *Geomorphology*, 250: 271-281.
- Foucher, A., Salvador-Blanes, S., Evrard, O., Simonneau, A., Chapron, E., Courp, T., Cerdan, O., Lefèvre, I., Adriaensen, H., Lecompte, F., Desmet, M., 2014. Increase in soil erosion after agricultural intensification: Evidence from a lowland basin in France. *Anthropocene*, 7: 30-41.
- Gaillardet, J., Dupré, B., Allègre, C.J., Negrel, P., 1997. Chemical and physical denudation in the Amazon River Basin. *Chemical Geology*, 142: 141-173.
- García-Ruiz, J.M., 2010. The effects of land uses on soil erosion in Spain: A review. *Catena*, 81(1): 1-11.
- Gateuille, D., Evrard, O., Lefevre, I., Moreau-Guigon, E., Alliot, F., Chevreuil, M., Mouchel, J.M., 2014. Mass balance and decontamination times of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in rural nested catchments of an early industrialized region (Seine River basin, France). *Science of the Total Environment*, 470-471: 608-17.
- Goldstein, S.J., Jacobsen, S.B., 1988. Nd and Sr isotopic systematics of river water suspended material: implications for crustal evolution. *Earth and Planetary Science Letters*, 87: 249-265.
- Graustein, W.C., 1989. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measure the sources and flow of strontium in terrestrial environment. In: Springer, N.-Y. (Ed.), Stable Isotopes in Ecological Research, pp. 491-512.
- Grosbois, C., Negrel, P., Fouillac, C., Grimaud, D., 1999. Dissolved load of the Loire River: chemical and isotopic characterization. *Chemical Geology*, 170(1-4): 179-201.
- Guzmán, G., Quinton, J.N., Nearing, M.A., Marbit, L., Gómez, J.A., 2013. Sediment tracers in water erosion studies: current approaches and challenges. *Journal of Soils and Sediments*, 13(4): 816-833.
- Haddadchi, A., Ryder, D.S., Evrard, O., Olley, J., 2013. Sediment fingerprinting in fluvial systems: review of tracers, sediment sources and mixing models. *International Journal of Sediment Research*, 28(4): 560-578.
- Hamilton, S.K., Bruesewitz, D.A., Horst, G.P., Weed, D.B., Sarnelle, O., 2009. Biogenic calcite-phosphorus precipitation as a negative feedback to lake eutrophication. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences*, 66(2): 343-350.
- Hatfield, R.G., Maher, B.A., 2009. Fingerprinting upland sediment sources: particle size-specific magnetic linkages between soils, lake sediments and suspended sediments. *Earth Surface Processes and Landforms*, 34(10): 1359-1373.

- Hatfield, R.G., Maher, B.A., Pates, J.M., Barker, P.A., 2008. Sediment dynamics in an upland temperate catchment: changing sediment sources, rates and deposition. *Journal of Paleolimnology*, 40: 1143-1158.
- He, Q., Walling, D.E., 1996. Interpreting particle size effects in the adsorption of ^{137}Cs and unsupported ^{210}Pb by mineral soils and sediment. *Journal of Environmental Radioactivity*, 30(2): 117-137.
- Horowitz, A.J., 2008. Determining annual suspended sediment and sediment-associated trace element and nutrient fluxes. *Science of the Total Environment*, 400(1-3): 315-43.
- Hosono, T., Nakano, T., Igeta, A., Tayasu, I., Tanaka, T., Yachi, S., 2007. Impact of fertilizer on a small watershed of Lake Biwa: use of sulfur and strontium isotopes in environmental diagnosis. *Science of the Total Environment*, 384(1-3): 342-54.
- Jørgensen, N.O., Andersen, M.S., Engesgaard, P., 2008. Investigation of a dynamic seawater intrusion event using strontium isotopes ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$). *Journal of Hydrology*, 348(3-4): 257-269.
- Koiter, A.J., Owens, P.N., Petticrew, E.L., Lobb, D.A., 2013. The behavioural characteristics of sediment properties and their implications for sediment fingerprinting as an approach for identifying sediment sources in river basins. *Earth-Science Reviews*, 125: 24-42.
- Laceby, J.P., McMahon, J., Evrard, O., Olley, J., 2015a. A comparison of geological and statistical approaches to element selection for sediment fingerprinting. *Journal of Soils and Sediments*, 15(10): 2117-2131.
- Laceby, J.P., Olley, J., 2014. An examination of geochemical modelling approaches to tracing sediment sources incorporating distribution mixing and elemental correlations. *Hydrological Processes*, 29(6): 1669-1685.
- Laceby, J.P., Olley, J., Pietsch, T.J., Sheldon, F., Bunn, S.E., 2015b. Identifying subsoil sediment sources with carbon and nitrogen stable isotope ratios. *Hydrological Processes*, 29(8): 1956-1971.
- Le Bissonnais, Y., Cerdan, O., Lecomte, V., Benkhadra, H., Souchère, V., Martin, P., 2005. Variability of soil surface characteristics influencing runoff and interrill erosion. *Catena*, 62(2-3): 111-124.
- Le Gall, M., Evrard, O., Thil, F., Foucher, A., Laceby, J.P., Salvador-Blanes, S., Ayrault, S., under review. Examining suspended sediment sources and dynamics during flood events in a drained catchment using radiogenic strontium isotope ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$).
- Mabit, L., Benmansour, M., Walling, D.E., 2008. Comparative advantages and limitations of the fallout radionuclides ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ and ^{7}Be for assessing soil erosion and sedimentation. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99(12): 1799-807.
- Martínez-Carreras, N., Udelhoven, T., Krein, A., Gallart, F., Iffly, J.F., Ziebel, J., Hoffmann, L., Pfister, L., Walling, D.E., 2010. The use of sediment colour measured by diffuse reflectance spectrometry to determine sediment sources: Application to the Attert River catchment (Luxembourg). *Journal of Hydrology*, 382(1-4): 49-63.
- Météo France, 2015.
- Motha, J.A., Wallbrink, P.J., Hairsine, P.B., Grayson, R.B., 2003. Determining the sources of suspended sediment in a forested catchment in southeastern Australia. *Water Resources Research*, 39(3): 39-1059.
- Négrel, P., Grosbois, C., 1999. Changes in chemical and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ signature distribution patterns of suspended matter and bed sediments in the upper Loire river basin (France). *Chemical Geology*, 156: 231-249.
- Négrel, P., Roy, S., 1998. Chemistry of rainwater in the Massif Central (France): a strontium isotope and major element study. *Applied Geochemistry*, 8: 941-952.
- Nosrati, K., Govers, G., Ahmadi, H., Sharifi, F., Amoozegar, M.A., Merckx, R., Vanmaercke, M., 2011. An exploratory study on the use of enzyme activities as sediment tracers: biochemical fingerprints? *International Journal of Sediment Research*, 26(2): 136-151.
- Nziguheba, G., Smolders, E., 2008. Inputs of trace elements in agricultural soils via phosphate fertilizers in European countries. *Science of the Total Environment*, 390(1): 53-7.
- Olley, J., Brooks, A., Spencer, J., Pietsch, T., Boromboivits, D., 2013. Subsoil erosion dominates the supply of fine sediment to rivers draining into Princess Charlotte Bay, Australia. *J Environ Radioact*, 124: 121-9.
- Olley, J.M., Murray, A.S., Mackenzie, D.H., Edwards, K., 1993. Identifying sediment sources in a gullied catchment using natural and anthropogenic radioactivity. *Water Resources Research*, 29(4): 1037-1043.
- Otero, N., Vitòria, L., Soler, A., Canals, A., 2005. Fertiliser characterisation: Major, trace and rare earth elements. *Applied Geochemistry*, 20(8): 1473-1488.
- Owens, P.N., Batalla, R.J., Collins, A.J., Gomez, B., Hicks, D.M., Horowitz, A.J., Kondolf, G.M., Marden, M., Page, M.J., Peacock, D.H., Petticrew, E.L., Salomons, W., Trustrum, N.A., 2005. Fine-grained sediment in river systems: environmental significance and management issues. *River Research and Applications*, 21(7): 693-717.
- Owens, P.N., Walling, D.E., 2002. Changes in sediment sources and floodplain deposition rates in the catchment of the River Tweed, Scotland, over the last 100 years: the impact of climate and land use change. *Earth Surface Processes and Landforms*, 27(4): 403-423.
- Pande, K., Sarin, M.M., Trivedi, J.R., Krishnaswami, S., Sharma, K.K., 1994. The Indus river system (India-Pakistan)" Major-ion chemistry, uranium and strontium isotopes. *Chemical Geology*, 116: 245-259.
- Petelet-Giraud, E., Négrel, P., Gourcy, L., Schmidt, C., Schirmer, M., 2007. Geochemical and isotopic constraints on groundwater-surface water interactions in a highly anthropized site. The Wolfen/Bitterfeld megasite (Mulde subcatchment, Germany). *Environmental Pollution*, 148(3): 707-17.
- Phillips, D.L., Koch, P.L., 2002. Incorporating concentration dependence in stable isotope mixing models. *Oecologia*, 130(1): 114-125.
- Poulenard, J., Legout, C., Némery, J., Bramorski, J., Navratil, O., Douchin, A., Fanget, B., Perrette, Y., Evrard, O., Esteves, M., 2012. Tracing sediment sources during floods using Diffuse Reflectance Infrared Fourier Transform Spectrometry (DRIFTS): A case study in a highly erosive mountainous catchment (Southern French Alps). *Journal of Hydrology*, 414-415: 452-462.

- Pueyo, M., Rauret, G., Lück, D., Yli-Halla, M., Muntau, H., Quevauviller, P., López-Sánchez, J.F., 2001. Certification of the extractable contents of Cd, Cr, Cu, Ni, Pb and Zn in a freshwater sediment following a collaboratively tested and optimised three-step sequential extraction procedure. *Journal of Environmental Monitoring*, 3: 243-250.
- Rasplus, L., Macaire, J.J., Alcaydé, G., 1982. Carte géologique de Bléré au 1:5000, Editions BRGM.
- Rauret, G., López-Sánchez, J.F., Sahuquillo, A., Rubio, R., Davidson, C., Ure, A., Quevauviller, P., 1999. Improvement of the BCR three step sequential extraction procedure prior to the certification of new sediment and soil reference materials. *Journal of Environmental Monitoring*, 1(1): 57-61.
- Rawn, D.F.K., L., L.W., Wilkinson, P., Savoie, D.A., Rosenberg, G.B., Muir, D.C.G., 2001. Historical contamination of Yukon Lake sediments by PCBs and organochlorine pesticides: influence of local sources and watershed characteristics. *The Science of the Total Environment*, 280: 17-37.
- Russell, R., Walling, D.E., Hodgkinson, R.A., 2001. Suspended sediment sources in two small lowland agricultural catchments in the UK. *Journal of Hydrology*, 252(1-4): 1-24.
- Simonneau, A. et al., 2013. Holocene land-use evolution and associated soil erosion in the French Prealps inferred from Lake Paladru sediments and archaeological evidences. *Journal of Archaeological Science*, 40(4): 1636-1645.
- Smith, H.G., Dragovich, D., 2008. Improving precision in sediment source and erosion process distinction in an upland catchment, south-eastern Australia. *Catena*, 72(1): 191-203.
- Smith, J.P., Bullen, T.D., Brabander, D.J., Olsen, C.R., 2009. Strontium isotope record of seasonal scale variations in sediment sources and accumulation in low-energy, subtidal areas of the lower Hudson River estuary. *Chemical Geology*, 264(1-4): 375-384.
- Sogon, S., Penven, M.-J., Bonte, P., Muxart, T., 1999. Estimation of sediment yield and soil loss using suspended sediment load and ¹³⁷Cs measurements on agricultural land, Brie Plateau, France. *Hydrobiologia*, 410(251-261).
- Tiecher, T., Caner, L., Minella, J.P.G., Bender, M.A., dos Santos, D.R., 2015. Tracing sediment sources in a subtropical rural catchment of southern Brazil by using geochemical tracers and near-infrared spectroscopy. *Soil and Tillage Research*.
- Valentin, C., Poesen, J., Li, Y., 2005. Gully erosion: Impacts, factors and control. *Catena*, 63(2-3): 132-153.
- Viers, J., Dupré, B., Braun, J.-J., Deberdt, S., Angeletti, B., Ndam Ngoupayou, J., Michard, A., 2000. Major and trace element abundances, and strontium isotopes in the Nyong basin rivers Cameroon/ : constraints on chemical weathering processes and elements transport mechanisms in humid tropical environments. *Chemical Geology*, 169: 211-241.
- Vitoria, L., Otero, N., Soler, A., Canals, A., 2004. Fertilizer characterisation: Isotopic data (N, S, O, C, and Sr). *Environmental Science & Technology*, 38: 3254-3262.
- Vörösmarty, C.J., Meybeck, M., Fekete, B., Sharma, K., Green, P., Syvitski, J.P.M., 2003. Anthropogenic sediment retention: major global impact from registered river impoundments. *Global and Planetary Change*, 39(1-2): 169-190.
- Walling, D.E., 2005. Tracing suspended sediment sources in catchments and river systems. *Science of the Total Environment*, 344(1-3): 159-84.
- Walling, D.E., Collins, A.L., 2008. The catchment sediment budget as a management tool. *Environmental Science & Policy*, 11(2): 136-143.
- Walling, D.E., Owens, P.N., Waterfall, B.D., Graham, J.L., Wass, P.D., 2000. The particle size characteristics of fluvial suspended sediment in the Humber and Tweed catchments, UK. *Science of the Total Environment*, 251/252: 205-222.
- Walling, D.E., Russell, R., Hodgkinson, R.A., Zhang, C., 2002. Establishing sediment budgets for two small lowland agricultural catchments in the UK. *Catena*, 47: 323-353.
- Wasson, R.J., Caitcheon, G., Murray, A.S., McCulloch, M., Quade, J.A.Y., 2002. Sourcing Sediment Using Multiple Tracers in the Catchment of Lake Argyle, Northwestern Australia. *Environmental Management*, 29(5): 634-646.
- Wilkinson, S.N., Olley, J.M., Furuichi, T., Burton, J., Kinsey-Henderson, A.E., 2015. Sediment source tracing with stratified sampling and weightings based on spatial gradients in soil erosion. *Journal of Soils and Sediments*, 15(10): 2038-2051.
- Yasuda, T., Asahara, Y., Ichikawa, R., Nakatsuka, T., Minami, H., Nagao, S., 2014. Distribution and transport processes of lithogenic material from the Amur River revealed by the Sr and Nd isotope ratios of sediments from the Sea of Okhotsk. *Progress in Oceanography*, 126: 155-167.

CHAPITRE 5

**Traçage des sources de particules dans le
bassin de Guaporé (Brésil) : utilisation de la
géochimie élémentaire et du rapport**

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

Chapitre 5. Traçage des sources de particules dans le bassin de Guaporé (Brésil) : utilisation de la géochimie élémentaire et du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$

Ce chapitre est présenté sous la forme d'un article intitulé « *Tracing sediment sources in a subtropical catchment of Southern Brazil cultivated with conventional and conservation practices* » et soumis à la revue *Land Degradation and Development*. En préambule, un résumé en français de cet article dédié au traçage des sources de particules dans le bassin de Guaporé est proposé.

Démarche entreprise

Ce chapitre s'attache à identifier les sources de particules qui transitent au sein du bassin versant de Guaporé (Brésil), qui est particulièrement impacté par l'érosion des sols. Les versants cultivés de l'État du Rio Grande do Sul sont en effet actuellement soumis à des taux d'érosion estimés entre 140 et 270 t.km².an⁻¹ à l'exutoire des bassins versants de Conceição et de Guaporé (Didoné et al., 2014) et similaires aux taux moyens d'érosion actuels estimés entre 120 et 360 t.km².an⁻¹ en Europe. Dans cette région au relief contrasté, située à l'extrême méridionale du plateau basaltique de la *Serra Geral*, les terres ont été mises en culture de manière intensive pour la première fois dans les années 1960. Une intensification progressive des pratiques agricoles s'y est opérée au cours des dernières décennies, avec le développement de la culture intensive du soja, et celle-ci s'est traduite par une détérioration accrue de la qualité des sols. Pour lutter contre l'érosion, le Brésil est devenu l'un des pionniers de l'agriculture de conservation (cf. chapitre 1). Cependant, ces pratiques qui requièrent un équipement spécifique et une organisation adaptée sont surtout mises en œuvre dans les grandes exploitations agricoles, et elles le sont beaucoup moins au sein des exploitations familiales traditionnelles. De plus, seule l'absence de labour est généralisée, les autres mesures préconisées dans le cadre de l'agriculture de conservation sont souvent inappliquées (absence de rotation des cultures, semis direct dans le sens de la pente la plus forte). La sensibilité des sols à l'érosion reste donc non négligeable, d'autant plus que le sud du Brésil est soumis à un climat subtropical humide, caractérisé par l'occurrence de fortes pluies érosives.

Le bassin de Guaporé, où agriculture intensive et familiale coexistent, constitue un site idéal pour comprendre et quantifier la contribution des sols cultivés selon différentes pratiques aux sédiments transportés par les rivières. Les parties supérieures du bassin sont caractérisées par un relief ondulé, des sols profonds et une culture intensive du soja avec absence de labour alors que les parties inférieures sont caractérisées par des pentes plus importantes, des sols minces (50 cm d'épaisseur pour les Luvisols) et des exploitations familiales concentrées sur la culture du tabac, sans mesure de

conservation. Dans ce contexte, une approche de traçage sédimentaire combinant géochimie élémentaire et isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) a été développée pour discriminer les sources de particules selon les différents types de sols du bassin et modéliser leurs contributions aux sédiments transportés jusqu'à l'exutoire. Pour ce faire, un échantillonnage des sources potentielles de sédiments a été réalisé ($n=75$) de manière à couvrir les différentes lithologies (Ferralsol, Nitisol, Acrisol, Luvisol et Leptosol) et les usages du sol du bassin. De même, des échantillons de sédiments ont été collectés dans des trappes à l'exutoire ($n=7$) du bassin, entre 2012 et 2014.

Principaux résultats

La mesure des concentrations élémentaires et celle du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ au sein des sources de particules, combinées à des tests statistiques (Kruskal-Wallis H -test, DFA), ont permis de déterminer la combinaison de paramètres permettant de maximiser la discrimination des cinq types de sols du bassin ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, K, Ti, Co, As, Pb et Ba). Ces paramètres ont été incorporés dans des modèles de mélange pour estimer la contribution relative des différents types de sols aux sédiments.

Les résultats montrent une contribution majoritaire des sols localisés en aval du bassin et une contribution très minoritaire des sols amont. En effet, Acrisols (moyenne 41%, SD 2%), Leptosols (moyenne 34%, SD 4%) et Luvisols (moyenne 17%, SD 4%) présentent des contributions moyennes plus élevées aux sédiments transitant à l'exutoire que celle des Ferralsols (moyenne 4%, SD 2%) ou des Nitisols (moyenne 4%, SD 6%). Les contributions contrastées des sols de l'amont et de l'aval du bassin reflèteraient dès lors leur sensibilité croissante à l'érosion.

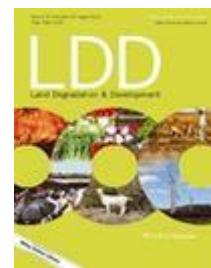
Les variations des caractéristiques topographiques et des propriétés des sols du bassin, associées aux différentes pratiques agricoles, peuvent expliquer la contribution majoritaire des sols de l'aval de la zone d'étude. Les Ferralsols et Nitisol de l'amont du bassin sont des sols profonds, lixiviés et bien drainés. Ces sols fertiles et cultivés sur de faibles pentes, présentent de bonnes propriétés physiques favorisant la cohésion des agrégats (fortes teneurs en argiles, en oxydes de fer et d'aluminium) et sont par conséquent moins sensibles à l'érosion que la plupart des sols latéritiques subtropicaux. De plus, le recours au semis direct en amont du bassin de Guaporé limite le détachement des particules de sol, et la présence de mares où les particules érodées se déposent, réduit la connectivité entre versants et cours d'eau. Au contraire, les Acrisols et les Leptosols sont des sols minces, développés sur de fortes pentes et présentant un faible potentiel agricole. Cependant, la culture du tabac sur les pentes fortes des versants dégradés et bien connectés à l'hydro-système favorise l'arrachement des particules de sols, en l'absence de mesure effective de conservation des sols (pratiques agricoles

conventionnelles). L'ensemble de ces facteurs explique les fortes contributions modélisées pour les sols de l'aval du bassin.

Principales conclusions

Le traçage sédimentaire réalisé dans le bassin de Guaporé a montré que la géochimie élémentaire et le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, combinés à un suivi hydrologique continu, permettent de quantifier les variations spatiales et temporelles des sources de particules. La contribution majoritaire des types de sol localisés en aval (Acrisols, Leptosols, Luvisols) du bassin est cohérente avec les observations faites sur le terrain et, ce, en lien avec les variations des pratiques agricoles. La sensibilité des sols à l'érosion est d'autant plus importante que les sols sont dégradés, cultivés de longue date sans pratique de conservation sur des pentes connectées à l'hydrosystème. La mise en place de pratiques agricoles de conservation, comme c'est partiellement le cas à l'amont du bassin (Ferralsols et Nitisols), devrait être encouragée et étendue aux sols de la partie aval du bassin.

1. Tracing sediment sources in a subtropical agricultural catchment of Southern Brazil cultivated with conventional and conservation farming practices



Marion Le Gall^a, Olivier Evrard^a, Arnaud Dapoigny^a, Tales Tiecher^b, Mohsin Zafar^c, Jean Paolo Gomes Minella^c, J. Patrick Laceby^a, Sophie Ayral^a

^a Laboratoire des Sciences et de l'Environnement, UMR 8212 (CEA/CNRS/UVSQ), Université Paris-Saclay, Domaine du CNRS, Avenue de la Terrasse, 91198 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^b Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Faculty of Agronomy, Department of Soil Science, 7712 Bento Gonçalves Avenue, 91540-000 Porto Alegre, RS, Brazil

^c Universidade Federal de Santa Maria, Department of Soils, 1000 Roraima Avenue, 97105-900 Santa Maria, RS, Brazil

DOI : 10.1002/ldr.2662

Received 29 July 2016 – Accepted 03 November 2016

Abstract

In Brazil, agricultural expansion has increased soil erosion and the sediment supply to waterways. As elevated sediment loads often degrade freshwater environments, sediment fingerprinting techniques are increasingly used to identify the sources supplying sediment to riverine and lacustrine environments. Accordingly, the contribution of various soil types to sediment are modelled based on their elemental geochemistry and radiogenic strontium isotope ratios in the Guaporé catchment (2,032 km²) in southern Brazil.

Soil samples (n=75) were collected to characterize the five soil types: Ferralsols (n=26), Nitisols (n=13), Acrisols (n=8), Leptosols (n=6), Luvisols (n=22). Sediment samples (n=7) were collected in a trap installed at the catchment outlet. Sediment source contributions were modelled according to soil types with elemental geochemistry and ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios.

⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios, K, Ti, Co, As, Ba and Pb were selected as the optimal suite of properties discriminating between soil types. Sediment samples were modelled to mainly originate from downstream Acrisols (mean 41%, SD 2%), Leptosols (mean 34%, SD 4%) and Luvisols (mean 17%, SD 4%). In contrast, contributions of upstream Ferralsols (mean 4%, SD 2%) and Nitisols (mean 4%, SD 6%) were low.

These results suggest that downstream soils, cultivated with conventional agriculture on steep slopes, were likely the most sensitive to erosion processes and the most connected to the river network. In contrast, upstream soils, cultivated with soybean under direct sowing, were less eroded or deposited before reaching the sediment sampling location. These findings demonstrate that the management of local and degraded soil sources is important for reducing sediment loads.

Keywords: Soil erosion, Sediment fingerprinting, Farming practices, Direct sowing, Tillage

1.1 Introduction

Soil erosion is a major process of land degradation worldwide. The detachment and subsequent transport of soil particles is accelerated by land use change and increasing anthropogenic pressure in agricultural landscapes (Sharma, et al., 2011; Zhao, et al., 2016). The negative consequences of soil erosion include declining soil fertility and crop yields (Bakker, et al., 2008). Soil loss and the transfer of fine sediment (<63 µm) to the river network may also result in the degradation of water quality by sediment-bound contaminants, and to dam and river channel siltation (Owens, et al., 2005; Yuan, et al., 2015). Therefore, information on the spatial and temporal sources of sediment and their variability is essential to implement effective management strategies that reduce sediment loads and improve our understanding of sediment and contaminant source dynamics (Masselink, et al., 2016; Vaezi, et al., 2016).

In Brazil, the rapid intensification of agriculture led to an increase in soil erosion rates and sediment yields (Manzatto, et al., 2002), resulting in soil losses that often exceeded 50 Mg ha⁻¹ yr⁻¹, making Brazil a worldwide hotspot of soil erosion (Casão Junior, et al., 2012). As conventional tillage dominated in the 1950s and 1960s, multiple initiatives were implemented across Brazil in the 1970s to reduce soil loss with the promotion of conservation agricultural practices such as no-till systems. However, most soils were still inadequately managed and the lack of additional runoff control measures (*e.g.* crop rotation, contour farming, retention ponds, and dense soil cover with crop residues) resulted in ongoing erosion issues.

The Rio Grande do Sul State was particularly impacted with estimated average erosion rates of 40 Mg ha⁻¹ yr⁻¹ (Schmidt, 1989). Since the 1990s, concerns regarding soil loss in agricultural catchments increased in this state where direct sowing (without the implementation of additional runoff control measures) and soybean monoculture dominate (Merten, et al., 2010). However, there remains a lack of information regarding sediment sources and processes in this region in particular, and medium to large scale Brazilian agricultural catchments in general.

Sediment source fingerprinting techniques provide a direct approach to identify and quantify sources supplying sediment to river systems. This method involves the measurement of physical and/or chemical parameters in both potential sources and sediment (Ben Slimane, et al., 2016; Martínez-Carreras, et al., 2010; Walling, et al., 2002; Zhang, et al., 2016). Often, sediment fingerprinting studies rely on the discrimination of potential sediment sources according to land use (*e.g.* cropland, channel bank, road, pasture, damaged roads) (Collins, et al., 2012; Sherriff, et al., 2015) or catchment geology (Evrard, et al., 2011; Hughes, et al., 2009; Laceby, et al., 2015). Recently, a geochemical fingerprinting approach was used to apportion sediment sources based on catchment soil types (Lepage, et al.,

2016). Weathering and erosion result in the formation of soils with geochemical properties related to their bedrock source. As sediment predominantly originates from soils, lithological/soil fingerprinting approaches could logically provide further sediment source information, particularly when related to agricultural practices in different regions.

Strontium isotopic ratios ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) vary depending on bedrock composition and age (Albarède, 1995) and they are not fractionated by natural processes (Bullen & Kendall, 1998). $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in suspended sediment are representative of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of their eroded parent material and have been used to identify suspended sediment sources in riverine, estuarine and marine environments (Asahara, et al., 2006; Douglas, et al., 1995; Wasson, et al., 2002). Accordingly, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios have a strong potential for continental fingerprinting studies and could provide complementary sediment source information to elemental concentrations and improve sediment source identification based on soil type.

Sediment source fingerprinting research in Brazilian catchments has mainly focused on hydrological and erosion processes and on the estimation of erosion rates (Merten, et al., 2015; Merten & Minella, 2013; Minella, et al., 2014). Most of these fingerprinting studies were implemented in the Rio Grande do Sul State, identifying sediment sources according to land use with geochemical measurements. Results estimated contributions ranging between 57 and 64% for croplands, 23 and 36% for unpaved roads and 20 to 36% for channel banks (Minella, et al., 2004; Tiecher, et al., 2015a; Tiecher, et al., 2015b).

In this current study, sediment sources are investigated in the agricultural Guaporé catchment (Rio Grande do Sul, Brazil) where croplands were modelled to dominate the sediment supply ($88 \pm 19\%$) (Tiecher, 2015). Contrasting farming practices (e.g. conventional tillage and no-till systems) were implemented in this catchment since the 1960s and it is important to understand the contribution from soils under these different practices to sediment degrading local river networks. Accordingly, the optimum set of fingerprinting parameters that best discriminate between the soil types was incorporated into a distribution modelling approach to quantify the relative contributions of the soil sources to sediment sampled at the outlet of the Guaporé catchment. Variations in sediment source contributions are discussed in relation to agricultural practices to highlight management implications.

1.2 Material and methods

1.2.1. Study site

The Guaporé catchment ($2,032 \text{ km}^2$) is located in the northeastern region of the Rio Grande do Sul State, in southern Brazil (Figure 5.1a). The catchment has a subtropical climate with annual rainfall ranging between 1,400 and 2,000 mm (Didoné, et al., 2014). The geology is characterized by lava flows from the *Serra Geral* formation with basalts locally overlaid by rhyodacites (Riccomini, et al., 2016). This parent material is impermeable across the entire catchment. Upper parts of the catchment are characterized by gentle slopes and deep soils (4 m depth), corresponding to the edge of the Meridional Plateau of the *Serra Geral*, whereas the lower parts of the catchment are characterized by steep slopes ($> 60\%$) and shallow soils ($< 1 \text{ m}$) that are well connected to the river network. Five soil types are identified in this catchment: Ferralsols (31%) and Nitisols (21%) located in upper part of the catchment and Luvisols (24%), Acrisols (17%) and Leptosols (7%) in the lower part of the catchment.

Ferralsols and Nitisols are deeply weathered, well drained (Gardi, et al., 2015; Quesada, et al., 2011) and characterized by the dominance of vertical hydrological flows. Their physical properties (*i.e.* high clay and iron/aluminum oxide contents, aggregation, and stable microstructure) further decrease their sensitivity to soil erosion compared to most of the weathered subtropical soils. In contrast, Acrisols and Leptosols are shallow soils mostly found in forested and steep areas, with a lower potential for agriculture (Bockheim, 2015; Fernández-Getino & Duarte, 2015; Towett, et al., 2015). Acrisols, characterised by a low fertility and high concentrations in aluminum, show an increase in clay content in the subsurface horizon compared to the upper sandy horizon. This subsurface clay layer reduces water infiltration resulting in the formation of lateral subsurface flows. When cultivated, these soils have to be protected by a dense vegetation cover to prevent soil erosion (Gardi, et al., 2015; World Reference Base for Soil Resources, 2006). Highly degraded by soil erosion, Leptosols are shallow and stony, and mainly dedicated to forestry and pasture (Fink & Pedro, 2015). These soils may be rapidly saturated with water, generating runoff. Luvisols are the only fertile soils suitable for a wide range of agricultural uses in lower parts of the Guaporé catchment (Quesada, et al., 2011).

Land use in the Guaporé catchment is a heterogeneous mixture of forests (58%), croplands (31%) and pastures (10%) (Figure 5.1b). Native forests are mainly composed of *Araucaria angustifolia* although a total of 81 tree and shrub species are found in the region. Soybean (*Glycine max*), maize (*Zea mays*) and wheat (*Triticum*) under direct sowing are predominantly cultivated in the upper area of the catchment. In lower parts of the catchment, tobacco (*Nicotina tabacum*) and maize (*Zea mays*) are

cultivated with conventional plowing, although forests and pastures dominate this area. Native grasslands are composed of perennial grass species (*Cynodon* spp) and annual pastures are mainly composed of black oats (*Avena strigosa* Schreb.) and Italian ryegrass (*Lolium multiflorum* Lam.).

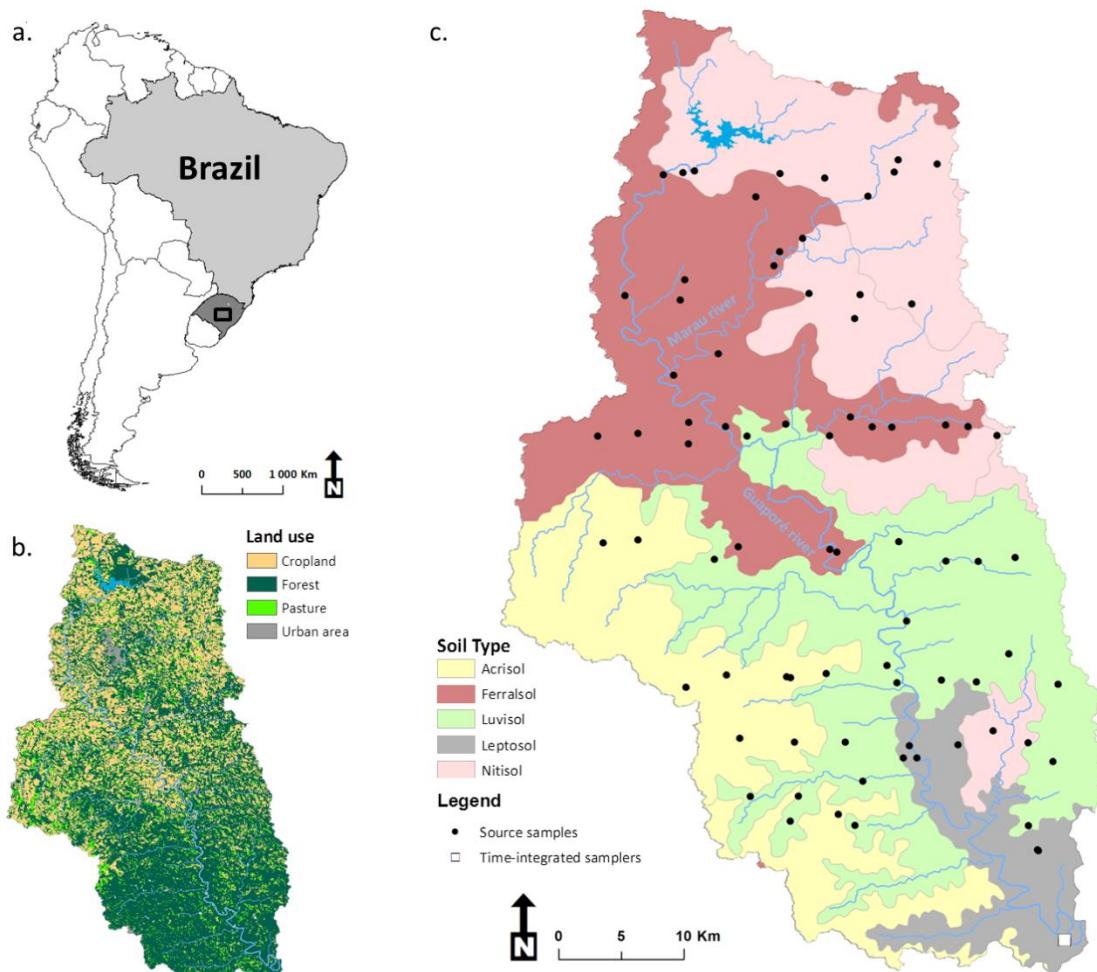


Figure 5.1 Maps of the Guaporé catchment in the Rio Grande do Sul State (dark grey) in Brazil (light grey) (a), land use (b), and soil type along with the location of the time-integrated river samplers and source samples (c).

1.2.2. Sampling

Source samples were collected in 2012. Before sampling, sediment mobilization and transport were observed during storm events and soil sampling was restricted to areas sensitive to erosion and potentially connected to the river network. In total, the source samples covered the range of different soil types identified in the catchment: Ferralsols (n=26), Luvisols (n=22), Nitosols (n=13), Acrisols (n=8) and Leptosols (n=6). Samples (n=75) were collected by scraping the top 2-3 cm layer of soil and by scraping a 2-3 cm layer of the sidewall from eroding channel banks. Each sample was composed of ten sub-samples collected randomly. A plastic spatula was used to collect samples to avoid potential metal contamination.

Sediment samples ($n=7$) were collected between March 2012 and February 2014 using *in situ* time-integrated suspended sediment samplers ([Phillips, et al., 2000](#)). Two sediment samplers consisting of polyvinyl chloride (PVC) pipes (1m long and 0.1m in diameter) were installed at the outlet of the Guaporé catchment (Figure 5.1c). The inlet and outlet of the tubes were composed of semi-rigid nylon pneumatic tubing with 4 mm diameter and 150 mm length. Each sampler collected between 20 and 100 g of sediment depending on the campaign. Seven periods were monitored with immersion durations ranging between 59 and 181 days (Table 5.1). Each period corresponds to the cumulative amount of rainfall required to generate runoff and erosion. Overall, periods ranging between two and three months were sufficient to collect significant amounts of sediment.

1.2.3. Hydrological characteristics

Daily rainfall, water discharge and suspended sediment concentrations were recorded at the outlet of the Guaporé catchment. For more details on the data acquisition, see [Didoné et al. \(2014\)](#). Sediment yields were calculated by multiplying the daily suspended sediment concentrations by the daily river discharge and summing it over the period investigated to estimate the quantity of sediment transiting the river network and reaching the catchment outlet. For each period of sediment collection, the mean daily flux ($Mg\ d^{-1}$) was estimated ([Evrard, et al., 2010b](#)). These sediment yields and mean daily fluxes were used to weight the different soil source contributions. To better characterize temporal variations in sediment sources, soil type contributions to each outlet sediment sample was weighted with the mean daily sediment loads exported during each monitoring period.

1.2.4. Sample processing and laboratory analysis

Sediment sources were oven-dried at 50°C and dry-sieved to <2 mm and then to <63 µm to facilitate direct comparison with sediment. Samples were digested with hydrofluoric (5 mL), perchloric (3 mL) acids and aqua regia (5 mL). Major and trace element concentrations were measured using an Inductively Coupled Plasma - Quadrupolar Mass Spectrometer (ICP-QMS). Samples were analyzed for major and minor elements (Na, Mg, Al, K, Ca, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Rb, Sr, Mo, Ag, Cd, Sb, Ba, Tl, Pb). Chemical separation and purification of strontium from digested solutions was carried out using a strontium specific resin following a standard chromatographic procedure and $^{87}Sr/^{86}Sr$ ratios were measured using a Thermo Finnigan Neptune-Plus Multi-Collector Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry (MC-ICP-MS) instrument. For more details, see [Le Gall et al. \(in review\)](#).

1.2.5. Source discrimination and modelling

Elements that provide discrimination between the different soil types were selected following a three-step process. First, the conservative behavior of each element was examined. Elements were considered to be conservative when the sediment concentrations plotted within the source range ([Wilkinson et al., 2013](#)). Second, the ability of the conservative elements to discriminate between sources was examined using the Kruskal-Wallis H -test. Elements with p -values > 0.05 were excluded from further analysis. Finally, a stepwise discriminant function analysis (DFA) selected elements that provide optimal source discrimination based on the minimization of Wilk's lambda ([Collins et al., 2010](#)). Elements that passed this three-step process were then incorporated in mixing models.

A distribution modelling approach was used to quantify the relative contribution of each source to sediment through the minimization of the mixing model difference (MMD) ([Laceby and Olley, 2014](#); [Le Gall et al., 2016](#)):

$$MMD = ABS \left(\left(C_i - \left(\sum_{s=1}^m S_{si} x_s \right) \right) / C_i \right) + ABS \left(\left(C_r - \left(\left(\sum_{s=1}^m S_{sr} W_s x_s \right) / \left(\sum_{s=1}^m W_s x_s \right) \right) \right) / C_r \right) \quad (\text{Eq. 1})$$

where C_i is the concentration of element i in the suspended sediment, m is the number of sources in the catchment, S_{si} is the concentration of element i in source (s) , C_r is the strontium isotopic ratio (r) in the suspended sediment, S_{sr} is the strontium isotopic ratio (r) in source (s) , W_s is the strontium concentration in source (s) which is used to weight the strontium isotopic ratios, MMD is the mixing model difference and x_s is the proportional contribution of source (s) which is modelled as a truncated normal distribution ($0 \leq x_s \leq 1$) with a mixture mean (μ_m) and a standard deviation (σ_m). Absolute values (ABS) are summed in Eq. (1).

Normal distributions were modelled for sediment and source samples. Sediment samples were modelled as a group of samples (*i.e.* grouping the entire monitoring period) and also individually (*i.e.* individual monitoring periods). When the monitoring groups were sampled individually, their analytical errors were used as an alternative to the standard deviation to model normal distributions ([Evrard et al., 2016](#)). The Optquest algorithm in Oracle's Crystal Ball software solved Eq. (1) by minimizing the median of the MMD. Distributions were modelled within a Monte Carlo approach (for more information see [Foucher et al., 2015](#), [Haddadchi et al., 2014](#), [Laceby & Olley, 2014](#)). Non-negative constraints were modelled for all source and sediment distributions. The optimal source contribution (x_s) was determined by solving Eq (1) 2500 times. For each simulation, 2500 Latin Hypercube samples were drawn from the source and sediment distributions by varying μ_m and σ_m .

Correlations were maintained throughout the modelling process ([Laceby and Olley, 2014](#)) (Annexe D - Table D1).

This model simulation and solving process was repeated 2500 times with the median proportional source contribution from these 2500 simulations reported as the contribution of each source. Model uncertainties were determined through the sum of the modelled standard deviation, the median absolute deviation (MAD) of the modelled source contribution and the MAD of the modelled standard deviation for the 2500 simulations ([Laceby et al., 2015](#)). Results are presented using the notation \pm to express the standard error associated with one sample whereas the mean and standard deviation (SD) are used for groups of samples. When soil type contributions were summed, the combined standard errors were defined as the mean of the errors estimated for each soil type contribution.

1.3 Results

1.3.1. Geochemical discrimination of sediment sources

Na was the only non-conservative parameter, with concentrations in sediment being higher than in the potential sources. Consequently, Na was removed from further analysis. Using the Kruskal-Wallis *H*-test, three elements did not provide significant discrimination (Al, Rb and Cd) and from the twenty remaining parameters (Annexe D - Table D2), seven were selected for modelling with the forward stepwise DFA ($p < 0.05$) (K, Ti, Co, As, Ba, Pb and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) (Annexe D - Table D3, Figure D1). Variations in elemental and strontium isotopic ratios were observed for the different soil type samples (Figure 5.2). Ferralsols had the largest variations, with highly dispersed values that overlapped with those observed in the remaining soil type samples. Variations observed for Nitisols systematically plotted within those of Ferralsols. Elemental concentrations and strontium isotopic ratios in Luvisols also displayed large variations, and those observed in Acrisols and Luvisols remained in the same range of values. Nitisols and Acrisols exhibited the lowest Co, K, and Ti concentrations (Figure 5.2b,c,e), intermediate As and Ba concentrations (Figure 5.2d,f) and high Pb concentrations (Figure 5.2g) compared to the Ferralsols, Luvisols and Leptosols. Variations in Leptosol concentrations were lower than those observed in Luvisols although exhibited the same trends with high Co, Ti and Ba (Figure 5.2b,e,f) concentrations, low As and Pb concentrations (Figure 5.2d,g) and intermediate K concentrations (Figure 5.2c) compared to Ferralsols, Nitisols and Acrisols. Sediment concentrations and strontium isotopic ratios were well constrained with low variations within the source range.

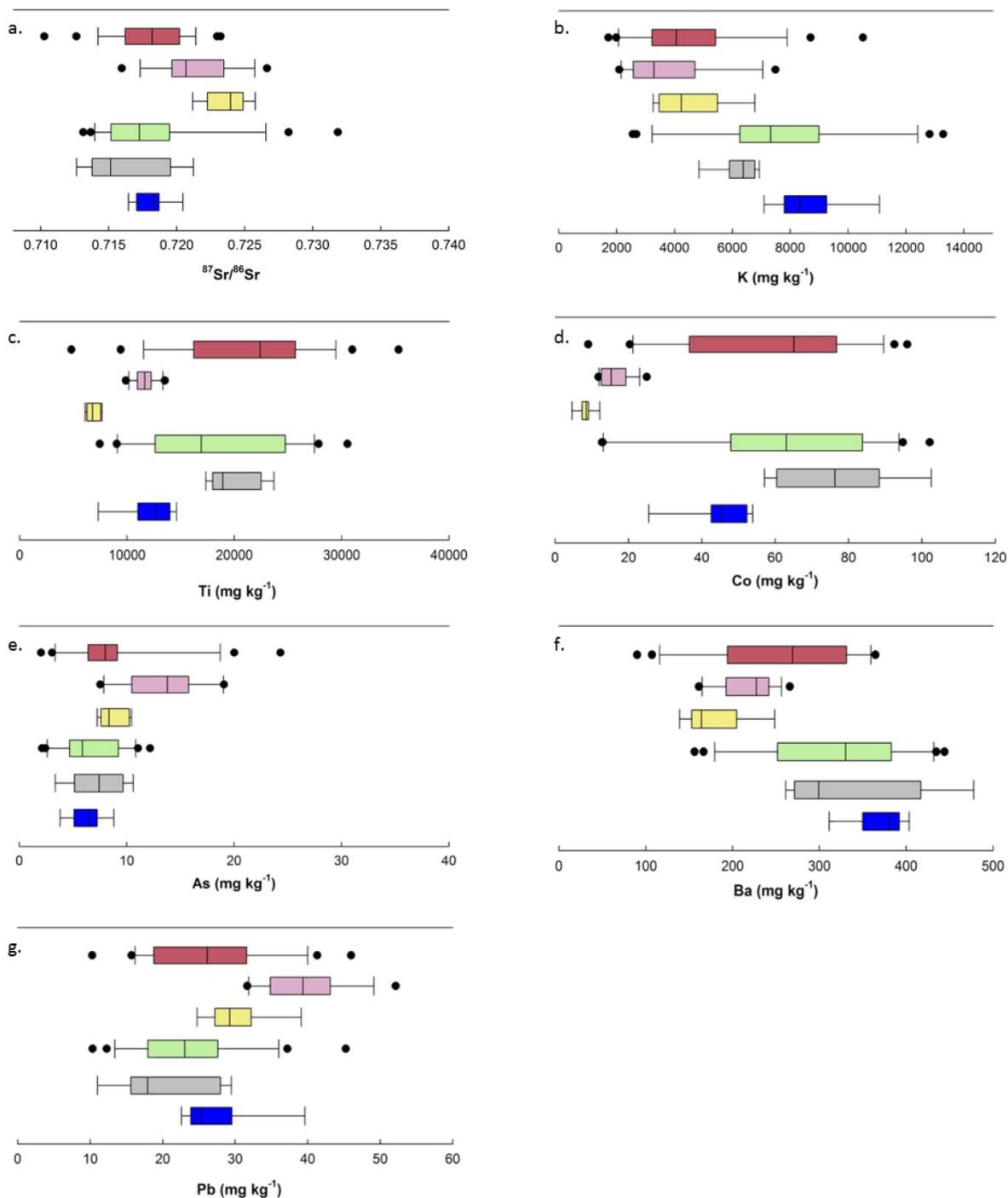


Figure 5.2. Box plots of the concentrations of the discriminant elements in the different soil types and in outlet sediment samples (bold horizontal line = median, box extent = 25th percentiles, error bars = non-outlier range, black dots = outliers).

1.3.2. Modelling results

1.3.2.a. Source contributions

Modelling results indicated that Acrisols (mean 41%, SD 4%) and Leptosols (mean 34%, SD 4%) supplied most of the sediment, with contributions ranging between $34 \pm 2\%$ and $65 \pm 2\%$ for Acrisols and between $16 \pm 1\%$ and $50 \pm 2\%$ for Leptosols. Luvisol (mean 17%; SD 4%) contributions were lower, with values ranging between $7 \pm 1\%$ and $24 \pm 5\%$. Ferralsol (mean 4%, SD 2%) and Nitisol (mean 4%, SD 6%) contributions were the lowest, ranging between $2 \pm 7\%$ and $5 \pm 2\%$ and $3 \pm 1\%$ and $7 \pm 4\%$, respectively (Table 5.1).

Table 5.1. Outlet sediment sample characteristics for each monitored period (sediment yield, mean daily sediment load, water discharge and rainfall) and distribution modelling results for each monitored period and soil type.

Sample	Monitored period	Sediment yield (Mg km ⁻² yr ⁻¹)	Mean daily sediment load (Mg d ⁻¹)	Mean daily discharge (m ³ s ⁻¹)	Mean daily rainfall (mm)	Ferralsol (%)	Nitisol (%)	Acrisol (%)	Leptosol(%)	Luvisol (%)
All samples	03/25/2012 02/12/2014	723	575	45	4.9	$3 \pm 4\%$	$3 \pm 1\%$	$40 \pm 2\%$	$30 \pm 3\%$	$24 \pm 3\%$
S01	03/25/2012 08/10/2012	22	124	17	3.0	$3 \pm 1\%$	$4 \pm 1\%$	$65 \pm 2\%$	$16 \pm 1\%$	$13 \pm 1\%$
S02	08/10/2012 02/07/2013	82	459	39	5.7	$4 \pm 1\%$	$3 \pm 1\%$	$38 \pm 3\%$	$33 \pm 4\%$	$21 \pm 5\%$
S03	02/07/2013 04/28/2013	95	527	44	5.3	$4 \pm 3\%$	$5 \pm 3\%$	$36 \pm 5\%$	$38 \pm 3\%$	$16 \pm 5\%$
S04	04/28/2013 07/08/2013	93	518	39	3.8	$4 \pm 1\%$	$7 \pm 4\%$	$40 \pm 9\%$	$26 \pm 8\%$	$24 \pm 5\%$
S05	07/08/2013 09/19/2013	231	1289	89	6.0	$5 \pm 2\%$	$6 \pm 14\%$	$34 \pm 2\%$	$38 \pm 6\%$	$17 \pm 1\%$
S06	09/19/2013 11/17/2013	168	933	63	6.1	$2 \pm 7\%$	$3 \pm 23\%$	$37 \pm 4\%$	$38 \pm 5\%$	$19 \pm 3\%$
S07	11/17/2013 02/12/2014	32	177	26	4.5	$4 \pm 1\%$	$4 \pm 1\%$	$35 \pm 3\%$	$50 \pm 2\%$	$7 \pm 8\%$

Acrisol contributions tended to decrease at the beginning of the study period (S01 to S02) and reached stable contributions (S03 to S06) over the remaining period (Figure 5.3). The maximum contribution ($65 \pm 2\%$) was estimated for the March to August 2012 period (S01) while stable contributions, ranging between $34 \pm 2\%$ and $40 \pm 9\%$ were observed between August 2012 and December 2014 (S02, S03, S04, S05, S06). Leptosol contributions were the lowest (S01) during the March to August 2012 period ($16 \pm 1\%$), were stable between August 2012 and November 2013 with contributions ranging between $26 \pm 8\%$ and $38 \pm 6\%$ (S02 to S06), and strongly increased to reach a maximum contribution of $50 \pm 2\%$ for the November 2013 to February 2014 period (S07). Luvisol contributions were stable between March 2012 and November 2013 (S01 to S06) and reached their lowest contribution ($7 \pm 8\%$) between November 2013 and February 2014 (S07). Soils found in lower

parts of the catchment (Acrisol, Luvisol and Leptosol) contributed the majority of the sediment supply with a mean contribution of $92 \pm 4\%$. Conversely, contributions from soils in the upper catchment area (*i.e.* Ferralsol and Nitisol) did not exceed $11 \pm 8\%$.

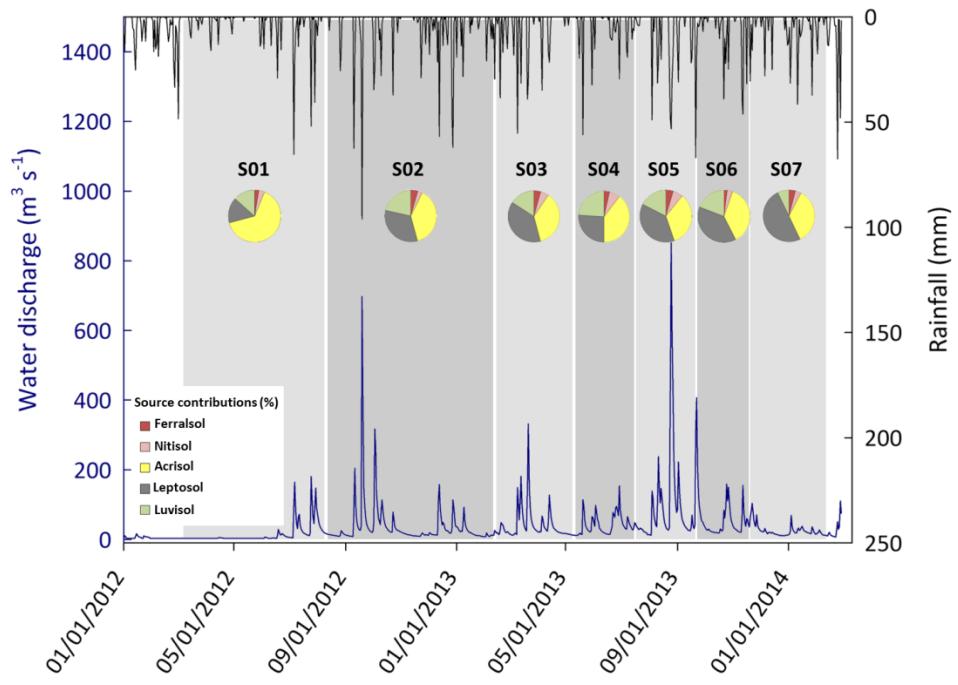


Figure 5.3. Soil type contributions to outlet sediment between 2012 and 2014 with river discharge (blue) and rainfall (black) lines.

1.3.2.b. Weighted source contributions

Mean daily sediment loads and sediment yields were estimated for each monitoring period (Figure 5.4a, Annexe D - Table D4). Mean daily sediment loads were estimated to 124 Mg d^{-1} (S01) between March and August 2012 before increasing to reach steady values of 459 Mg d^{-1} (S02), 527 Mg d^{-1} (S03) and 518 Mg d^{-1} (S04) between August 2012 and April 2013. From July to September 2013, the mean sediment load strongly increased to reach a maximal value of 1289 Mg d^{-1} (S05). From September 2013 to February 2014 (S06), the mean sediment load decreased (933 Mg d^{-1}) to reach the lowest value (177 Mg d^{-1}) between November 2013 and February 2014 (S07) (Figure 5.4a, Annexe D - Table S4). For each study period, mean sediment yields ranged between 22 (S01) and $231 \text{ Mg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ (S05) and followed the same variations as sediment loads (Figure 5.4a, Table 5.1). The mean sediment yield over the entire monitored period was estimated to $103 \text{ Mg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$.

Weighted contributions (Figure 5.4b) were compared to modelling results obtained incorporating all sediment samples (Figure 5.4c). Similar trends were observed with Acrisols predominantly contributing the sediment supply (38% for the weighted contributions and 40% when modelling all sediment samples), followed by Leptosols (35% and 30% respectively) and Luvisols (18% and 24%

respectively) while Ferralsols and Nitisols remained the lowest contributors with inputs ranging between 3 and 5%.

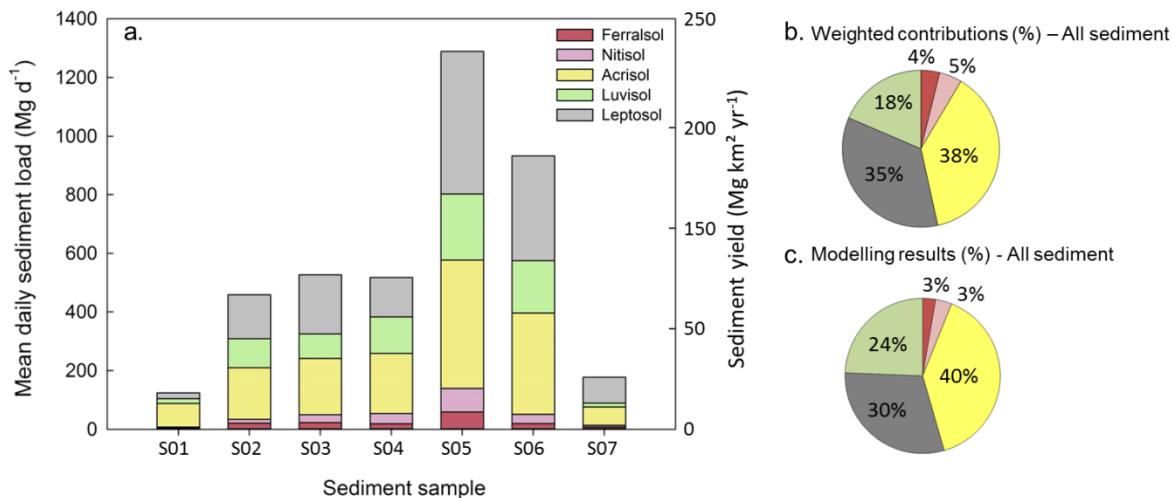


Figure 5.4. Evolution of the weighted soil contributions to the total sediment yields (a) and to mean daily fluxes (b) deduced from the analysis of each outlet sediment sample. The weighted contributions (c) and modelling results run for all sediment samples (d) obtained for the entire set of sediment samples are also presented in pie charts.

1.4 Discussion

In the Guaporé catchment, overbank sediment deposition may be observed in the vicinity of the river system in the upper catchment area. Previous findings indicated that cropland ($88 \pm 19\%$) was the main source of outlet sediment, compared to very low channel bank contributions ($10 \pm 18\%$) (Tiecher, 2015). As the sediment supply from channel banks is negligible in this catchment, the discussion will focus on the variations of cropland contributions to sediment transport in this catchment.

1.4.1. Spatial and temporal variations of sediment sources

Upstream soil contributions (Ferralsols, mean 4%, SD 2%; Nitisols, mean 4%, SD 6%) remained low during the entire monitoring period, suggesting their low sensitivity to soil erosion whatever the hydrological conditions. In contrast, soils from the lower catchment area (Acrisols, mean 41%, SD 4%; Leptosols, mean 34%, SD 4%; Luvisols, mean 17%, SD 4%) systematically dominated the outlet sediment supply throughout time. For the S01 sediment sample (March to August 2012), precipitation, water discharge and sediment loads were low and were associated with the maximal Acrisol contribution ($65 \pm 2\%$). The highest precipitation and water discharge were observed between August and September 2013, and recorded by two sediment samples, S02 (from August 2012 to

February 2013) and S05 (from July to September 2013) with Acrisols (mean 36%, SD 3%) and Leptosols (mean 35%, SD 5%) dominating the sediment supply. For the S07 sediment sample (November 2013 to February 2014), water discharge was low and associated to a maximal Leptosol contribution ($50 \pm 2\%$) and followed by a significant Acrisol contribution ($35 \pm 3\%$).

Erosive rainfall events mainly occur from September to November when soils are plowed for planting tobacco and maize in the downstream part of the catchment, increasing soil detachment and transport to the river network (Didoné, et al., 2014). This is consistent with the highest mean sediment loads estimated for the August to November 2013 period at the outlet of the catchment (1,289 and 933 Mg d⁻¹ of sediment for the S05 and S06 samples, respectively) (Figure 5.4a). Acrisol (mean 35%, SD 3%), Leptosol (mean 38%, SD 6%) and Luvisol (mean 18%, SD 2%) contributions remained quite homogeneous during this period. The lowest Luvisol contributions were observed for the S01 ($13 \pm 1\%$) and S07 ($7 \pm 8\%$) sediment samples, when precipitation and water discharge were the lowest and when Acrisols (S01) and Leptosols (S07) dominated the sediment supply. No significant variations were evident during the remainder of the monitoring period, suggesting that these two soil types are exposed to erosion processes during the entire year. No significant variations were observed between the weighted and modelled contributions incorporating all sediment samples (Figure 5.4b,c). These modelling results highlight the very low upstream soil contribution to outlet sediment with sediment mainly derived from downstream soil types, whatever the hydrological conditions.

Mean sediment yields were also estimated to facilitate the comparison between the current research results and those obtained in studies carried out in South America (Table 5.2). Sediment yields, varying between 22 and 231 Mg km² yr⁻¹, with a mean estimated to 103 Mg km² yr⁻¹ over the monitored period, remained in the same order of magnitude as those measured in the Conceição and Avorezinha catchments, both located in southern Brazil (Rio Grande do Sul). In contrast, when compared to those obtained in larger catchments (*i.e.* Negro, Urugai, Parana and Amazon catchments), sediment yields calculated in the Guaporé catchment are higher and demonstrate the severity of erosion occurring in this cultivated region.

Table 5.2. Sediment yields estimated in various catchments of South America.

Catchment	Localisation	Surface area (km ²)	Main land uses	Study period	Sediment yield (t km ² yr ⁻¹)	Authors
Arvorezinha	Brazil (Rio Grande do Sul)	1.2	Forest and agriculture	2002-2003	429	
				2004-2006	314	Merten et al. (2010)
				2007-2008	138	
Conceição	Brazil (Rio Grande do Sul)	800	Agriculture	2000-2010	140	
				2011	242	Didoné et al. (2014)
				2012	41	
Guaporé	Brazil (Rio Grande do Sul)	2032	Forest and agriculture	2000-2010	140	
				2011	390	Didoné et al. (2014)
				2012	159	
San Juan	Colombia	16 445	Forest and agriculture	-	1150	Restrepo & Kjerfve (2000)
Patía	Colombia	23 700	Forest and agriculture	-	972	Restrepo & Kjerfve (2000)
Negro	Argentina	100 000	Livestock and fruit growing	-	140	Millman & Syvitski (1992) from Holeman (1968)
Urugai	Brazil	163 547	Agriculture	-	22	Lima et al. (2005)
Parana	Brazil	802 150	Agriculture	-	10	Lima et al. (2005)
Madeira	Brazil	954 285	Mixed (including mining activities)	-	254	Lima et al. (2005)
Amazon	Brazil	4 680 000	Mixed (including mining activities)	-	121	Lima et al. (2005)

1.4.2. Management implications

This study indicates that most of the fine sediment (<63 µm) collected at the outlet of the catchment originated from local sources (*i.e.* Acrisols, Leptosols and Luvisols). Accordingly, differences in agricultural practices and soil type properties may also explain the high contributions of soils found in lower catchment areas.

In the Guaporé catchment, Ferralsols and Nitisosols are intensively cultivated on gentle slopes with soybean under direct sowing. Overall, these soils are better managed than Acrisols, Luvisols and Leptosols. Adequate management practices are applied to reduce or eliminate soil disturbance using no-till, to maintain a permanent soil cover (with both plant residues and/or living plants) as long as possible, to diversify crops (through the rotation or succession of crops) and to implement mechanical runoff control measures such as terraces to improve soil conservation. Fertilizers and lime are extensively supplied to the soil surface to increase crop yields. As these soils are sensitive to compaction, the potential of nutrients to be transferred to the river network by runoff is intensified. In this study, potassium was used as a tracer and incorporated in mixing models. Although potassic fertilizers are used in the Guaporé catchment, the quantities supplied to the soils are too low to significantly affect the potassium signature of the soils. Furthermore, total potassium concentrations were used in this current research and this parameter is much less impacted by fertilizers than the

exchangeable potassium fraction, which represents only a small fraction of the total potassium content (Martins et al., 2004; Melo et al., 2004).

The dense cover of Ferralsols and Nitisols with previous crop residues protects them against erosion, which is consistent with their low modelled contributions. Their good physical properties further decrease their sensitivity to soil erosion although all the recommended guidelines to implement effective no-till systems are not widely adopted in this area. Furthermore, the installation of ponds in upper reaches of the catchment likely reduce the connectivity between hillslopes and the river network and may also explain the low contribution of Ferralsols and Nitisols. In this region, downstream Acrisols, Leptosols and Luvisols are mainly cultivated with tobacco and subsistence agriculture under conventional tillage. Developed on highly degraded steep slopes, shallow Acrisols and Leptosols contribute the majority of outlet sediment. On these soils, subsistence agriculture prevails and the lack of financial and technical support available to the farmers for the promotion and the implementation of conservation measures may explain the elevated erosion and concomitant sediment supply from these landscapes.

Although agricultural practices may directly impact soil erodibility, various other factors, directly related to the landscape conditions, may also accelerate soil erosion and sediment transport. In the Guaporé catchment, a strong link is observed between cultivation practices and the relief (*e.g.* slope steepness, length and curvature). In the lower and middle parts of the catchment, the high drainage density has generated the formation of short, steep and concave slopes, where lateral flows dominate (runoff and subsurface flow), resulting in the formation of shallow and stony soils. Hillslopes are naturally well connected to the river network, because of the deep river incision. In addition to the impact of the slope gradient on soil erosion, soil compaction may also generate larger runoff volumes and a reduction of the soil surface roughness that may increase runoff velocity. In this context, farmers adapted their agricultural practices depending on the local context, the availability of technical solutions and their investment capacity. As a result, soil and landscape characteristics primarily guided the implementation of soil management strategies depending on the land use. Accordingly, no-till requiring heavy machinery that was initially designed for cereal cultivation is mainly implemented in upper catchment parts, characterized by gentle slopes. In contrast, conventional tillage is widely applied in lower catchment parts, where slopes are steeper which might cause the fall over of heavy machinery.

Modelling results related to agricultural practices suggest that to reduce the supply of sediment, management actions should focus on sediment originating from downstream sources (*i.e.* Acrisols and Leptosols). The implementation of conservation agriculture should be promoted to limit negative impacts of soil erosion in these areas. To this end, adapted no-till machinery should be developed for

cultivating steeper slopes. [Minella et al. \(2009\)](#) investigated variations in sediment sources in a subcatchment (1.19 km^2) of the Guaporé basin before and after the introduction of improved soil management practices including the sowing of cover crops in winter and the implementation of minimum tillage. A decrease of cropland contribution to sediment was observed, confirming the positive impact of an integrated set of soil conservation measures to reduce sediment supply from cultivated areas. Coordinating the implementation of these measures at the catchment scale was also shown to be very efficient in reducing off-site impacts of soil erosion, for example, in regions of Northwestern Europe where pilot strategies were tested to mitigate muddy floods originating from intensively cultivated cropland ([Evrard, et al., 2010a](#)).

1.5 Conclusions

This study highlighted the dominance of Acrisol, Leptosol and Luvisol contributions to the sediment sampled at the outlet of the Guaporé catchment. These three soil types are found in the lower area of the catchment, on steep slopes and they are cultivated using conventional tillage, likely explaining their higher supply of sediment to the Guaporé River compared to that of Ferralsols and Nitisols cultivated on gentler slopes with direct sowing and other conservation practices. Accordingly, attention should focus on improving downstream land management practices (e.g. the implementation of comprehensive no-till systems) to reduce the sediment supply. In the future, the analysis of sediment cores collected in alluvial plains or reservoirs could be used to reconstruct the impact of land use and farming practice changes on sediment source dynamics. Modelling the sediment connectivity between hillslopes and the river system would also provide additional information on sediment pathways within the catchment, which could significantly contribute the implementation of effective soil conservation measures.

Acknowledgements

This work received financial support from the ‘Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior – Comité Français de la Coopération Universitaire et Scientifique avec le Brésil’ (CAPES-COFECUB project No.Te 870-15). Marion Le Gall received a PhD fellowship from CEA (Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives, France) and DGA (Direction Générale de l'Armement, Ministry of Defense, France).

2. Discussion complémentaire sur les paramètres utilisés pour discriminer les différents types de sols

Les paramètres ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, K, Ti, o, As, Ba, Pb) incorporés dans les modèles de mélange pour estimer la contribution des différents types de sols aux sédiments du bassin de Guaporé ont été sélectionnés grâce à des tests statistiques. Cependant, leur pertinence en tant que traceurs des différents types de sols du bassin de Guaporé n'a pas été discutée dans l'article présenté ci-dessus. Aussi, dans cette partie sont apportées quelques pistes quant à leur géochimie qui pourraient contribuer à conforter leur utilisation en tant que paramètres les plus discriminants des Ferralsols, Nitisols, Acrisols, Luvisols et Leptosols.

- La littérature fournit des valeurs du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesuré dans des basaltes de la Serra Geral collectés à Ametista do Sul (État de Rio Grande do Sul) et dans la région de Ribeirão Prêto (État de São Paulo) comprises entre 0,70561 et 0,70680 (Gilg et al., 2002; Innocent et al., 1997). De même, des rhyodacites de la Serra Geral ont été caractérisées par des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ compris entre 0,72220 et 0,72491 (Gilg et al., 2002). Dans le bassin de Guaporé, les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesurés dans les différents types de sols, compris entre 0,710260 et 0,731836 (valeur moyenne de 0,719122), indiquent un mélange entre les sources ‘basalte’ et ‘rhyodacite’, avec une composante « rhyodacite » plus importante. Ces valeurs sont cohérentes avec la prédominance de rhyodacites sur le bassin. Certains échantillons de sols présentent des rapports plus élevés que ceux des rhyodacites (Figure 5.5). Pour expliquer ces signatures, la signature des basaltes et des rhyodacites du bassin de Guaporé pourrait être étudiée à partir d'échantillons collectés sur des affleurements au sein du bassin.

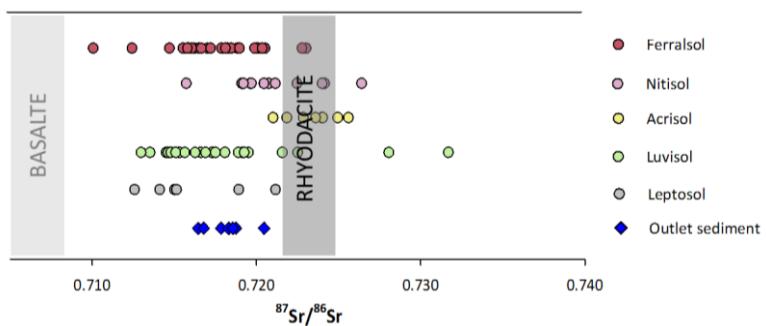


Figure 5.5. Variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ dans les différents types de sols et roches (d'après Gilg et al, 2002 et Innocent et al., 1997) du bassin de Guaporé.

- Les sols latéritiques du bassin sont lixivierés à divers degrés (Ferralsols, Nitisols et la couche supérieure des Acrisols). Formés à partir de rhyodacite, riche en silice et en quartz, ces sols latéritiques sont appauvris en silice ainsi qu'en éléments nutritifs (Ca, Mg, K, Na). Fortement lixivierés, ils présentent de faibles teneurs en minéraux tels que les feldspaths potassiques (KAlSi_3O_8),

contrairement aux sols moins lixiviés où ces minéraux sont davantage présents. Ces différents degrés de lixiviation peuvent donc expliquer les variations de concentration en **potassium** observées (De Medeiros et al., 2014).

Sur le bassin de Guaporé, les sols latéritiques présentent des concentrations en potassium largement inférieures (moyennes respectives de 3782 mg.kg⁻¹ pour les Nitisols, 4450 mg.kg⁻¹ pour les Ferralsols et 4517 mg.kg⁻¹ pour les Acrisols) à celles des Luvisols (moyenne de 7731 mg.kg⁻¹) et des Leptosols (moyenne de 6288 mg.kg⁻¹), en accord avec leur forte lixiviation. Le potassium discrimine donc essentiellement les sols latéritiques des Luvisols et des Leptosols.

- Lors des processus magmatiques (différenciation, cristallisation), le **titane**, considéré comme un élément immobile, est enrichi dans les roches basaltiques, ultrabasiques et relativement acides. Présent sous forme d'oxyde (TiO₂, rutile ou anastase), le titane est stable dans les sols et peu sensible à la lixiviation. Cet élément est donc un bon indicateur de l'intensité de la lixiviation. Les sols fortement lixiviés, appauvris en silice et en éléments nutritifs sont relativement enrichis en oxyde de titane.

Dans le bassin de Guaporé, le titane discrimine bien les cinq types de sols avec des concentrations moyennes bien différenciées. La surface (0-5cm) des Ferralsols (concentration moyenne en Ti de 20855 mg.kg⁻¹), Luvisols (17878 mg.kg⁻¹) et Lepsotols (19961 mg.kg⁻¹) est enrichie en titane en comparaison des Acrisols (6875 mg.kg⁻¹) et des Nitisols (11602 mg.kg⁻¹). Parmi les sols latéritiques, les Acrisols et les Nitisols présentent des gammes de concentrations plus restreintes et inférieures à celle des Ferralsols, dont les teneurs en titane sont très variables (comprises entre 4807 et 35300 mg.kg⁻¹). La partie supérieure des Acrisols (0-20cm), fortement lixiviée, est appauvrie en silice et en éléments tels que le titane. En revanche, les Acrisols sont caractérisés par une accumulation d'argile (kaolinite essentiellement) en subsurface. Le titane, potentiellement associé aux argiles, s'y accumulerait plutôt en subsurface. Ces phénomènes peuvent aussi être invoqués pour les Nitisols et ils expliqueraient les différences de concentrations en titane observées entre les différents sols latéritiques.

- Le **cobalt** est un élément relativement mobile dans des conditions oxydantes et acides. Du fait de sa forte affinité pour les minéraux argileux et les hydroxydes ou oxyhydroxydes de fer et de manganèse, il ne migre pas facilement vers la phase aqueuse. Lors des processus magmatiques, les ions Co²⁺ se substituent aux ions Fe²⁺ et Mg²⁺, qui ont des rayons ioniques proches. Le cobalt se retrouve donc concentré dans les basaltes et plus particulièrement au sein de minéraux de type ferromagnésien (amphiboles, pyroxènes...) (Carr and Turekian, 1961). De ce fait, le cobalt se trouve davantage enrichi dans les roches basiques comparé aux roches acides. Ceci est cohérent avec les

concentrations en cobalt les plus faibles mesurées dans les Acrisols, sols acides du bassin de Guaporé. La littérature indique que les roches acides présentent des concentrations en cobalt comprises entre 1 et 15 mg.kg⁻¹ (Kabata-Pendias, 2011). Les concentrations en cobalt mesurées dans les Acrisols sont comprises entre 5 et 12 mg.kg⁻¹ et cohérentes avec ces valeurs.

Sur le bassin de Guaporé, les Acrisols (concentration moyenne de 9 mg.kg⁻¹) sont appauvris en cobalt en comparaison des Nitisols (16 mg.kg⁻¹), des Ferralsols (58 mg.kg⁻¹), des Luvisols (61 mg.kg⁻¹) et des Leptosols (77 mg.kg⁻¹). Le cobalt permet une discrimination entre Acrisols et Nitisols, d'une part, et Ferralsols, Luvisols et Leptosols, d'autre part.

- L'**arsenic** est couramment utilisé dans la production agro-industrielle de pesticides et d'engrais (Hartley et al., 2013), il est par conséquent souvent très présent dans les sols agricoles.

En effet, jusqu'aux années 1970, 80% de l'arsenic produit était utilisé pour la production de pesticides. Même si depuis, son utilisation a fortement été réduite du fait de sa toxicité, il est toujours couramment utilisé dans l'agrochimie pour la production d'herbicides et de pesticides (Backman et al., 2006; Matschullat, 2000). Bien que dans la pédosphère, les concentrations en arsenic dans les sols soient variables, elles sont généralement comprises entre 0,1 et 55 mg.kg⁻¹ et présentent une moyenne estimée entre 5 et 7,5 mg.kg⁻¹ même si des anomalies peuvent être observées localement comme par exemple dans l'État de Minas Gerais au Brésil, où des gisements d'or sont exploités (Matschullat, 2000).

Sur le bassin de Guaporé, les Nitisols sont enrichis en arsenic (concentration moyenne de 13 mg.kg⁻¹) en comparaison des Luvisols (6 mg.kg⁻¹), Leptosols (7 mg.kg⁻¹), Acrisols (9 mg.kg⁻¹) et Ferralsols (9 mg.kg⁻¹), qui malgré des variations plus ou moins importantes des concentrations en arsenic présentent une concentration moyenne similaire. L'arsenic, incorporé dans les modèles de mélange, favorise essentiellement la discrimination des Nitisols des autres types de sols. Dans ce bassin agricole, les Nitisols sont caractérisés par une concentration moyenne en arsenic plus élevée que dans les autres sols. Les Ferralsols présentent cependant des teneurs locales en arsenic maximales (20 et 24 mg.kg⁻¹). Ceci suggère que les apports d'engrais et de pesticides seraient plus importants en amont du bassin, caractérisé par la monoculture intensive de soja transgénique et résistant au glyphosate.

- Lors des processus de différenciation magmatique, le **baryum** (ions Ba²⁺) se substitue facilement au potassium (K⁺) et se retrouve donc concentré dans des minéraux tels que les feldspaths potassiques et les micas. Sur le bassin de Guaporé, les sols latéritiques sont relativement moins concentrés en baryum avec des teneurs moyennes de 177 mg.kg⁻¹ pour les Acrisols, de 214 mg.kg⁻¹ pour le Nitisols et de 258 mg.kg⁻¹ pour les Ferralsols, en comparaison des Luvisols (316 mg.kg⁻¹) et

Leptosols (336 mg.kg^{-1}). Ces différences de concentrations traduisent les différents degrés de lixiviation des sols. Les sols latéritiques, fortement lixiviés, présentent des teneurs en baryum plus faibles que les sols non latéritiques, moins lixiviés. Aussi, incorporé dans les modèles de mélange, le baryum, comme le potassium, permet plutôt la discrimination entre les sols latéritiques et les Luvisols et Leptosols.

- Le **plomb** se substitue au potassium et au calcium dans les feldspaths potassiques, les micas et en moindre proportion au sein des plagioclases et des apatites. De ce fait, les roches magmatiques acides sont davantage enrichies en plomb que les roches basiques (Kabata-Pendias, 2011).

Or sur le bassin de Guaporé, les Nitisols sont enrichis en plomb (concentration moyenne de 40 mg.kg^{-1}) par rapport aux Acrisols (30 mg.kg^{-1}), aux Ferralsols (26 mg.kg^{-1}), aux Luvisols (24 mg.kg^{-1}) et aux Leptosols (20 mg.kg^{-1}). Les trois types de sols latéritiques présentent les concentrations moyennes les plus élevées et sont donc discriminés des Leptosols et Luvisols. Ces concentrations plus élevées dans les sols latéritiques peuvent s'expliquer par le potentiel du plomb à se fixer préférentiellement à la fraction fine des particules de sols, et notamment aux hydroxydes de fer et de magnésium, potentiellement davantage présents dans les sols latéritiques du bassin de Guaporé.

Les concentrations moyennes en plomb mesurées dans les Ferralsols, les Nitisols, les Acrisols et les Luvisols restent dans la même gamme de variations que celles mesurées dans ces mêmes types de sols dans l'État brésilien de Minas Gerais (de Souza et al., 2015).

► L'ensemble des éléments proposés ci-dessus ne constitue que des pistes quant à l'interprétation du potentiel de chaque paramètre à discriminer les différents types de sol du bassin du Guaporé. A partir du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des concentrations élémentaires mesurées pour chaque type de sol, il n'est en effet pas simple d'apporter des conclusions définitives. Des travaux complémentaires pourraient être menés pour approfondir le lien entre différenciation statistique et géochimique des différents types de sols, en travaillant notamment sur la géochimie des affleurements ou le long de profils de sols.

3. Références bibliographiques Chapitre 5

- Albarède, F. 1995. Introduction to Geochemical Modeling. Cambridge University Press.
- Asahara, Y, Ishiguro, H, Tanaka, T, Yamamoto, K, Mimura, K, Minami, M, Yoshida, H. 2006. Application of Sr isotopes to geochemical mapping and provenance analysis: The case of Aichi Prefecture, central Japan. *Applied Geochemistry* **21**: 419-436. DOI:10.1016/j.apgeochem.2005.12.003.
- Bakker, MM, Govers, G, van Doorn, A, Quétier, F, Chouvardas, D, Rounsevell, M. 2008. The response of soil erosion and sediment export to land-use change in four areas of Europe: The importance of landscape pattern. *Geomorphology* **98**: 213-226. DOI:10.1016/j.geomorph.2006.12.027.
- Ben Slimane, A, Raclot, D, Evrard, O, Sanaa, M, Lefèvre, I, Le Bissonnais, Y. 2016. Relative Contribution of Rill/Interrill and Gully/Channel Erosion to Small Reservoir Siltation in Mediterranean Environments. *Land Degradation & Development* **27**: 785-797. DOI:10.1002/ldr.2387.
- Bockheim, JG. 2015. Classification and development of shallow soils (<50cm) in the USA. *Geoderma Regional* **6**: 31-39. DOI:10.1016/j.geodrs.2015.11.001.
- Bullen, TD, Kendall, C. 1998. Tracing weathering reactions and water flowpaths: a multi-isotope approach. In Isotope Tracers in Catchment Hydrology, C. Kendall and J.J. McDonnell (Eds.) Elsevier Science B.V., Amsterdam, pp. 611-646.
- Casão Junior, R, Araujo, AG, Llanillo, RF. 2012. No-till agriculture in southern Brazil: Factors that facilitated the evolution of the system and the development of the mechanization of conservation farming. The Food and Agriculture Organization of the United Nations and Instituto Agronômico do Paraná, pp. 83.
- Collins, AL, Zhang, Y, McChesney, D, Walling, DE, Haley, SM, Smith, P. 2012. Sediment source tracing in a lowland agricultural catchment in southern England using a modified procedure combining statistical analysis and numerical modelling. *Science of the Total Environment* **414**: 301-17. DOI:10.1016/j.scitotenv.2011.10.062.
- Collins, AL, Zhang, Y, Walling, DE, Grenfell, SE, Smith, P. 2010. Tracing sediment loss from eroding farm tracks using a geochemical fingerprinting procedure combining local and genetic algorithm optimisation. *Science of the Total Environment* **408**: 5461-71. DOI:10.1016/j.scitotenv.2010.07.066.
- Didoné, EJ, Minella, JPG, Reichert, JM, Merten, GH, Dalbianco, L, de Barros, CAP, Ramon, R. 2014. Impact of no-tillage agricultural systems on sediment yield in two large catchments in Southern Brazil. *Journal of Soils and Sediments* **14**: 1287-1297. DOI:10.1007/s11368-013-0844-6.
- Douglas, G, Gray, CM, Hart, B, Beckett, R. 1995. A strontium isotopic investigation of the origin of suspended particulate matter (SPM) in the Murray-Darling River system, Australia. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **59**: 3799-3815. DOI:10.1016/0016-7037(95)00266-3.
- Evrard, O, Heitz, C, Liégeois, M, Boardman, J, Vandaele, K, Auzet, AV, van Wesemael, B. 2010a. A comparison of management approaches to control muddy floods in central Belgium, northern France and southern England. *Land Degradation & Development* **21**: 322-335. DOI:10.1002/ldr.1006.
- Evrard, O, Laceby, JP, Huon, S, Lefèvre, I, Sengtaheuanghong, O, Ribolzi, O. 2016. Combining multiple fallout radionuclides (¹³⁷Cs, ⁷Be, ²¹⁰Pb_{xs}) to investigate temporal sediment source dynamics in tropical, ephemeral riverine systems. *Journal of Soils and Sediments* **16**: 1130-1144. DOI:10.1007/s11368-015-1316-y.
- Evrard, O, Navratil, O, Ayrault, S, Ahmadi, M, Némery, J, Legout, C, Lefèvre, I, Poirel, A, Bonté, P, Esteves, M. 2011. Combining suspended sediment monitoring and fingerprinting to determine the spatial origin of fine sediment in a mountainous river catchment. *Earth Surface Processes and Landforms* **36**: 1072-1089. DOI:10.1002/esp.2133.
- Evrard, O, Némery, J, Gratiot, N, Duvert, C, Ayrault, S, Lefèvre, I, Poulenard, J, Prat, C, Bonté, P, Esteves, M. 2010b. Sediment dynamics during the rainy season in tropical highland catchments of central Mexico using fallout radionuclides. *Geomorphology* **124**: 42-54. DOI:10.1016/j.geomorph.2010.08.007.
- Fernández-Getino, AP, Duarte, AC. 2015. Soil management guidelines in Spain and Portugal related to EU Soil Protection Strategy based on analysis of soil databases. *Catena* **126**: 146-154. DOI:10.1016/j.catena.2014.11.003.
- Fink, JR, Pedro, FdA. 2015. Aptidão agrícola dos principais solos das áreas de agricultura familiar do Sul do Brasil. Manejo e conservação do solo e de água em pequenas propriedades rurais no Sul do Brasil: Contextualizando as atividades agropecuárias e os problemas erosivos. Tiecher, T. (Ed) URI – Frederico Westph, Frederico Westphalen, RS, pp. 34–52.
- Foucher, A, Laceby, PJ, Salvador-Blanes, S, Evrard, O, Le Gall, M, Lefèvre, I, Cerdan, O, Rajkumar, V, Desmet, M. 2015. Quantifying the dominant sources of sediment in a drained lowland agricultural catchment: The application of a thorium-based particle size correction in sediment fingerprinting. *Geomorphology* **250**: 271-281. DOI:10.1016/j.geomorph.2015.09.007.
- Gardi, C, Angelini, M, Barceló, S, Comerma, J, Cruz Gaistardo, C, Encina Rojas, A, Jones, A, Krasilnikov, P, Mendonça Santos Brefin, ML, Montanarella, L, Muñiz Ugarte, O, Schad, P, Vara Rodríguez, MI, Vargas, R, Ravina da Silva, M. 2015. Soil Atlas of Latin America and the Caribbean, European Commission - Publications Office of the European Union, L-2995 Luxembourg.
- Haddadchi, A, Olley, J, Laceby, JP. 2014. Accuracy of mixing models in predicting sediment source contributions. *The Science of the Total Environment* **497-498**: 139-152. DOI:10.1016/j.scitotenv.2014.07.105.
- Hughes, AO, Olley, JM, Croke, JC, McKergow, LA. 2009. Sediment source changes over the last 250 years in a dry-tropical catchment, central Queensland, Australia. *Geomorphology* **104**: 262-275. DOI:10.1016/j.geomorph.2008.09.003.

- Laceby, JP, McMahon, J, Evrard, O, Olley, J. 2015. A comparison of geological and statistical approaches to element selection for sediment fingerprinting. *Journal of Soils and Sediments* **15**: 2117-2131. DOI:10.1007/s11368-015-1111-9.
- Laceby, JP, Olley, J. 2014. An examination of geochemical modelling approaches to tracing sediment sources incorporating distribution mixing and elemental correlations. *Hydrological Processes* **29**: 1669-1685. DOI:10.1002/hyp.10287.
- Le Gall, M, Evrard, O, Foucher, A, Laceby, JP, Salvador-Blanes, S, Thil, F, Dapoigny, A, Lefevre, I, Cerdan, O, Ayrault, S. 2016. Quantifying sediment sources in a lowland agricultural catchment pond using ¹³⁷Cs activities and radiogenic ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr ratios. *Science of the Total Environment* **566-567**: 968-980. DOI:10.1016/j.scitotenv.2016.05.093.
- Lepage, H, Laceby, JP, Bonté, P, Joron, J-L, Onda, Y, Lefèvre, I, Ayrault, S, Evrard, O. 2016. Investigating the source of radiocesium contaminated sediment in two Fukushima coastal catchments with sediment tracing techniques. *Anthropocene* **13**: 57-68. DOI:10.1016/j.ancene.2016.01.004.
- Lima, JEFW, Lopes, WTA, Carvalho, NO, Vieira, MR, Silva, EM. 2005. Suspended sediment fluxes in the large river basins of Brazil. *Sediment budgets 1. IAHS publication* **291**: 355-363.
- Manzatto, CV, Junior, EDF, Perez, JRR. 2002. Uso Agrícola dos Solos Brasileiros. Embrapa Solos, 2002, pp. 174.
- Martínez-Carreras, N, Krein, A, Gallart, F, Iffly, JF, Pfister, L, Hoffmann, L, Owens, PN. 2010. Assessment of different colour parameters for discriminating potential suspended sediment sources and provenance: A multi-scale study in Luxembourg. *Geomorphology* **118**: 118-129. DOI:10.1016/j.geomorph.2009.12.013.
- Masselink, RJH, Keesstra, SD, Temme, AJAM, Seeger, M, Giménez, R, Casalí, J. 2016. Modelling discharge and sediment yield at catchment scale using connectivity components. *Land Degradation & Development* **27**: 933-945. DOI:10.1002/ldr.2512.
- Merten, GH, Araújo, AG, Biscaya, RCM, Barbosa, GMC, Conte, O. 2015. No-till surface runoff and soil losses in southern Brazil. *Soil and Tillage Research* **152**: 85-93. DOI:10.1016/j.still.2015.03.014.
- Merten, GH, Minella, JPG. 2013. The expansion of Brazilian agriculture: Soil erosion scenarios. *International Soil and Water Conservation Research* **1**: 37-48. DOI:10.1016/s2095-6339(15)30029-0.
- Merten, GH, Minella, JPG, Moro, M, Maier, C, Cassol, EA, Walling, DE, Clarke, RT, Reichert, JM. 2010. The effects of soil conservation on sediment yield and sediment source dynamics in a catchment in southern Brazil. *Sediment dynamics for a Changing Future (Proceedings of the ICCE symposium). IAHS publication* **337**: 59-67.
- Milliman, JD, Syvitski, JPM. 1992. Geomorphic/Tectonic Control of Sediment Discharge to the Ocean: The Importance of Small Mountainous Rivers1. *The Journal of Geology* **100**: 525-544.
- Minella, JP, Merten, GH, Clarke, RT. 2004. Identification of sediment sources in a small rural drainage basin. *Sediment transfer through the fluvial system (Proceedings of a symposium held in Moscow). IAHS publication* **288**: 44-51.
- Minella, JPG, Merten, GH, Walling, DE, Reichert, JM. 2009. Changing sediment yield as an indicator of improved soil management practices in southern Brazil. *Catena* **79**: 228-236. DOI:10.1016/j.catena.2009.02.020.
- Minella, JPG, Walling, DE, Merten, GH. 2014. Establishing a sediment budget for a small agricultural catchment in southern Brazil, to support the development of effective sediment management strategies. *Journal of Hydrology* **519**: 2189-2201. DOI:10.1016/j.jhydrol.2014.10.013.
- Owens, PN, Batalla, RJ, Collins, AJ, Gomez, B, Hicks, DM, Horowitz, AJ, Kondolf, GM, Marden, M, Page, MJ, Peacock, DH, Petticrew, EL, Salomons, W, Trustrum, NA. 2005. Fine-grained sediment in river systems: environmental significance and management issues. *River Research and Applications* **21**: 693-717. DOI:10.1002/rra.878.
- Phillips, JM, Russell, MA, Walling, DE. 2000. Time-integrated sampling of fluvial suspended sediment: a simple methodology for small catchments. *Hydrological Processes* **14**: 2589-2602. DOI:10.1002/1099-1085(20001015)14:14<2589::AID-HYP94>3.0.CO;2-D.
- Quesada, CA, Lloyd, J, Anderson, LO, Fyllas, NM, Schwarz, M, Czimczik, CI. 2011. Soils of Amazonia with particular reference to the RAINFOR sites. *Biogeosciences* **8**: 1415-1440. DOI:10.5194/bg-8-1415-2011.
- Restrepo, JD, Kjerfve, B. 2000. Water Discharge and Sediment Load from the Western Slopes of the Colombian Andes with Focus on Rio San Juan. *The Journal of Geology* **108**: 17-33.
- Riccomini, C, Sant'Anna, LG, Fambrini, GL. 2016. The Early Cretaceous Jacuí Group, a newly discovered volcanoclastic-epiclastic accumulation at the top of the Paraná Basin, southern Brazil. *Cretaceous Research* **59**: 111-128. DOI:10.1016/j.cretres.2015.10.020.
- Schmidt, AV. 1989. Terraceamento na região Sul. Simpósio sobre terraceamento agrícola. *Proceedings, Fundação Cargill*: 23-25.
- Sharma, A, Tiwari, KN, Bhaduria, PB. 2011. Effect of land use land cover change on soil erosion potential in an agricultural watershed. *Environmental Monitoring and Assessment* **173**: 789-801. DOI:10.1007/s10661-010-1423-6.
- Sherriff, SC, Franks, SW, Rowan, JS, Fenton, O, Ó'hUallacháin, D. 2015. Uncertainty-based assessment of tracer selection, tracer non-conservativeness and multiple solutions in sediment fingerprinting using synthetic and field data. *Journal of Soils and Sediments* **15**: 2101-2116. DOI:10.1007/s11368-015-1123-5.
- Tiecher, T. 2015. Fingerprinting sediment sources in agricultural catchments in southern Brazil. Universidade Federal de Santa Maria, Graduate programm in soil science, Thesis, pp. 275.
- Tiecher, T, Caner, L, Minella, JP, Santos, DR. 2015a. Combining visible-based-color parameters and geochemical tracers to improve sediment source discrimination and apportionment. *Science of the Total Environment* **527-528**: 135-49. DOI:10.1016/j.scitotenv.2015.04.103.

- Tiecher, T, Caner, L, Minella, JPG, Bender, MA, dos Santos, DR. 2015b. Tracing sediment sources in a subtropical rural catchment of southern Brazil by using geochemical tracers and near-infrared spectroscopy. *Soil and Tillage Research*: DOI:10.1016/j.still.2015.03.001.
- Towett, EK, Shepherd, KD, Tondoh, JE, Winowiecki, LA, Lulseged, T, Nyambura, M, Sila, A, Vågen, T-G, Cadisch, G. 2015. Total elemental composition of soils in Sub-Saharan Africa and relationship with soil forming factors. *Geoderma Regional* **5**: 157-168. DOI:10.1016/j.geodrs.2015.06.002.
- Vaezi, AR, Abbasi, M, Bussi, G, Keesstra, SD. 2016. Modeling sediment yield in semi-arid pasture micro-catchments, NW Iran. *Land Degradation & Development*: DOI:10.1002/ldr.2526.
- Walling, DE, Russell, R, Hodgkinson, RA, Zhang, C. 2002. Establishing sediment budgets for two small lowland agricultural catchments in the UK. *Catena* **47**: 323-353. DOI:10.1016/S0341-8162(01)00187-4.
- Wasson, RJ, Caitcheon, G, Murray, AS, McCulloch, M, Quade, JAY. 2002. Sourcing Sediment Using Multiple Tracers in the Catchment of Lake Argyle, Northwestern Australia. *Environmental Management* **29**: 634-646. DOI:10.1007/s00267-001-0049-4.
- Wilkinson, SN, Hancock, G, Bartley, R, Hawdon, A, Keen, RJ. 2013. Using sediment tracing to assess processes and spatial patterns of erosion in grazed rangelands, Burdekin River basin, Australia. *Agriculture, Ecosystems and Environment* **180**: 90-102. DOI:10.1016/j.agee.2012.02.002.
- World Reference Base for Soil Resources. 2006. A framework for international classification, correlation and communication. Food and Agriculture Organization of the United Nations - FAO. IUSS Working Group WRB. World Soil Resources Reports No. 103, Rome, Italy.
- Yuan, Y, Jiang, Y, Taguas, EV, Mbonimpa, EG, Hu, W. 2015. Sediment loss and its cause in Puerto Rico watersheds. *Soil* **1**: 595-602. DOI:10.5194/soil-1-595-2015.
- Zhang, Q, Lei, T, Huang, X. 2016. Quantifying the sediment transport capacity in eroding rills using a REE tracing method. *Land Degradation & Development*. DOI:10.1002/ldr.2535.
- Zhao, G, Mu, X, Jiao, J, An, Z, Klik, A, Wang, F, Jiao, F, Yue, X, Gao, P, Sun, W. 2016. Evidence and causes of spatiotemporal changes in runoff and sediment yield on the Chinese Loess Plateau. *Land Degradation & Development*. DOI:10.1002/ldr.2534.

CHAPITRE 6

**Discussion, conclusions générales et
perspectives**

Chapitre 6. Discussion, conclusions générales et perspectives

Ces travaux de thèse se sont attachés à développer une méthode de traçage des particules dans deux bassins versants agricoles présentant des caractéristiques contrastées mais tous deux soumis à l'érosion des sols. Dans un premier temps, l'attention s'est portée sur le bassin du Louroux (Indre-et-Loire, France), caractéristique des plaines agricoles européennes et où d'importants transferts de matière sont observés. Ensuite, la méthode de traçage développée a été appliquée au bassin de Guaporé (Brésil) où les sols sont fortement dégradés et où modes de culture intensive et traditionnelle coexistent. Des mesures d'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), de géochimie élémentaire (éléments majeurs et traces) et de radionucléides (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) ont été réalisées pour caractériser les sources de particules. Ensuite, des modèles de mélange ont été utilisés pour estimer la contribution des différentes sources discriminées. In fine, les résultats obtenus ont été discutés à la lumière de l'évolution spatiale et/ou temporelle des pratiques agricoles (intensification, drainage, mise en place de mesures de conservation, ...).

1. Bassin du Louroux

Les **chapitres 3 et 4** ont présenté les travaux menés sur le bassin du Louroux. Le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et les radionucléides (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) ont été utilisés pour caractériser les sources de particules et répondre à plusieurs interrogations : quelles sont les sources lithologiques des particules, de quel compartiment des sols proviennent-elles et quelle est leur dynamique temporelle ? Une approche « amont-aval » a été envisagée pour intégrer le continuum versants-berges-rivières-étang et étudier la dynamique spatio-temporelle des particules qui transitent dans le bassin. L'attention s'est d'abord portée sur leurs sources (sols et berges), puis sur la dynamique des matières en suspension (MES) transportées par les rivières et, enfin, sur les sédiments accumulés dans l'étang, à l'exutoire du bassin.

Le **chapitre 3** a porté sur l'étude des sources et sur la dynamique spatio-temporelle des MES transportées par les cours d'eau dans le bassin du Louroux. Le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ a été utilisé pour caractériser les sources lithologiques des particules lors de trois crues (2013-2014). En plus de discriminer la contribution de sols carbonatés et silicatés, les résultats obtenus ont montré l'importance du transport des particules très fines ($<2 \mu\text{m}$) lors de crues d'intensité modérée, soulignant le rôle du réseau de drainage, qui augmente la connectivité entre versants et cours d'eau et facilite dès lors leur transfert de la surface des sols vers l'hydrosystème.

Cette étude présente l'originalité d'utiliser les sols comme source de particules plutôt que la roche mère sous-jacente comme c'est généralement le cas dans la plupart des études géochimiques (Laceby et al., 2015; Owens and Walling, 2002; Wilkinson et al., 2013). Les MES proviennent directement de l'érosion de la couche superficielle des sols, qui constitue donc un compartiment de choix pour étudier leur dynamique à l'échelle temporelle de la crue.

La quantification de la contribution respective des sols carbonatés et silicatés aux MES transportées lors des trois crues constitue une étude préliminaire. En effet, les fractions <2 µm et « brute » (sols tamisés à 2 mm) des sols ont été utilisées comme sources des MES. Or, le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ a été mesuré dans la fraction <2 µm d'un nombre restreint d'échantillons de sols (cinq échantillons pour les sols silicatés et trois pour les sols carbonatés). Par conséquent, des mesures complémentaires sur la fraction <2 µm de l'ensemble des échantillons de sols permettraient de caractériser les deux sources lithologiques de manière plus robuste. Pour améliorer la caractérisation des MES et des sources de particules, des analyses minéralogiques (DRX) pourraient également être réalisées sur l'ensemble des échantillons. De plus, des mesures du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ dans les différents minéraux identifiés et isolés (kaolinite, muscovite...) faciliteraient l'explication des variations de ce rapport entre les fractions brute, <63 µm et <2 µm des échantillons de sols et les différents échantillons de MES d'une crue à l'autre.

Les trois crues étudiées ont été échantillonnées à l'aide de préleveurs automatiques mais, pour des raisons logistiques, seul un échantillon par crue et par station a pu être dédié aux analyses géochimiques. Aussi, dans le futur, la variabilité intra-crue des sources de particules pourrait être étudiée en analysant davantage d'échantillons prélevés au cours d'une même crue.

Le rapport $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ a permis de caractériser la dynamique temporelle des particules lors de ces mêmes crues. Les résultats ont montré la très forte réactivité du bassin du Louroux, avec un export progressif des sédiments préalablement déposés dans le chenal ou en sortie de drain lors des deux premières crues. Ensuite, lors de la troisième crue, ce sont les particules directement érodées de la surface des sols qui ont été majoritairement transportées dans les cours d'eau. Les mêmes tendances ont été observées lors des deux crues de janvier 2016. Ces résultats, caractérisés par des fractions de particules récemment érodées élevées, mettent également en évidence la forte connectivité entre versants et hydrosystème et soulignent le rôle potentiel du réseau de drainage dans le transfert des particules directement érodées de la surface des sols.

Le **chapitre 4** s'est intéressé au traçage des sources de particules dans l'étang du Louroux. Les résultats ont montré une contribution majoritaire de la surface des sols (μ 82%, σ 1%) et des contributions lithologiques (carbonatée vs silicatée) bien équilibrées au sein des sédiments de

l'étang. Cependant, de fortes variations des contributions ont pu être reconstruites à partir de l'analyse de la carotte sédimentaire prélevée dans l'étang et qui constitue une archive des dépôts qui s'y sont produits entre 1953 et 2010. Ces variations ont été attribuées aux modifications des pratiques agricoles (remembrements successifs, créations de fossés, installation d'un réseau de drainage) opérées au cours du temps. Cependant, l'absence d'archives départementales n'a pas permis de localiser dans le temps et dans l'espace ces aménagements successifs au sein du bassin pour les corrélérer aux reconstructions effectuées à partir de la carotte sédimentaire. Des analyses complémentaires (DRX...) ont également montré, en accord avec les travaux de Foucher et al. (2014), l'eutrophisation croissante de l'étang depuis le milieu des années 1980.

→ En plus de démontrer le potentiel du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ combiné aux radionucléides (^{137}Cs , ^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) pour le traçage des particules, les résultats obtenus sur le bassin du Louroux, fournissent des informations essentielles pour la mise en place de mesures pour lutter contre l'érosion de sols dans cette zone de Loire-Moyenne. En effet, même si ces régions agricoles sont caractérisées par une topographie très plane, les problèmes de colmatage et d'envasement des cours d'eau sont récurrents, car le faible débit des rivières ne leur permet pas d'évacuer ce surplus de particules provenant des versants cultivés. Discriminer les sources de particules est nécessaire pour guider l'implémentation de mesures visant à limiter l'érosion des sols. Aussi, les résultats obtenus sur le bassin du Louroux devraient aider les décideurs à mettre en place des mesures de protection des sols efficaces pour limiter le transport sédimentaire via les rivières. Le traçage des sources de particules indique qu'il est indispensable d'agir contre l'érosion de la surface des sols, largement majoritaire par rapport à celle des berges. De plus, les particules transférées par les cours d'eau sont particulièrement fines ($<2 \mu\text{m}$) et celles-ci migreraient de la surface des sols vers les drains pour ensuite atteindre les rivières. Davantage d'attention devrait donc être portée sur le rôle joué par le réseau de drainage du bassin du Louroux, très dense, avec plus de 220 sorties de drains répertoriées, dans le transfert des particules vers l'hydrosystème. L'instrumentation de deux sorties de drains par le laboratoire GéHCO (Université François Rabelais de Tours) devrait permettre de quantifier les flux de particules exportés vers la rivière et de démontrer l'impact du réseau de drainage sur le transfert des particules.

Un suivi hydrosédimentaire, qui est actuellement en cours, permettra de quantifier les flux de particules fournis par les principaux affluents à l'étang du Louroux. Ces données, représentatives de plusieurs années hydrologiques, permettront de caractériser les vitesses de transfert des particules, qui pourront être confrontées aux résultats obtenus à l'aide des radionucléides (^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) pour quelques crues (chapitre 3). De plus, les résultats obtenus dans le chapitre 3 (contributions de la

surface et de la subsurface des sols et contributions lithologiques) pourraient être utilisés pour calculer les flux de matière provenant des différentes sources, et fournir des données pour affiner les bilans d'érosion des sols en Europe du Nord-Ouest, et plus particulièrement en contexte agricole. En effet, ces bilans restent encore peu documentés, malgré leur impact non négligeable sur les flux de carbone (*e.g.* Van Oost et al., 200 ; Yue et al., 2016) et leur intérêt pour la compréhension de la mobilisation des contaminants particulaires des sols agricoles vers les rivières (Gateuille et al., 2014; Lepage et al., 2016).

2. Bassin de Guaporé

La seconde partie de ces travaux de doctorat s'est intéressée au traçage des particules au sein du bassin de Guaporé, au sud du Brésil. Il s'agissait de transposer les méthodes développées sur le bassin du Louroux, en particulier l'utilisation du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ couplé à la géochimie élémentaire, pour le traçage lithologique des particules. Dans ce bassin au climat plus érosif et aux pratiques agricoles contrastées, une approche de traçage sédimentaire basée sur la discrimination des sources de particules en fonction des types de sols a été menée (chapitre 5).

La combinaison des paramètres les plus discriminants ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, K, Ti, Co, As, Ba, Pb) des différents types de sols a été incorporée dans des modèles de mélange pour estimer leurs contributions respectives aux sédiments collectés à l'exutoire du bassin. La pertinence de ces paramètres pour discriminer les différents types de sols a été discutée par la suite. Les résultats ont montré une contribution majoritaire des sols de l'aval du bassin (Acrisols, Leptosols, Luvisols) et une contribution minoritaire des sols de l'amont (Ferralsols, Nitisols), ce qui reflète leur sensibilité à l'érosion croissante de l'amont vers l'aval du bassin. Les contributions estimées suggèrent que les sols aval cultivés selon la technique du labour traditionnel sur des versants pentus et dégradés sont plus sensibles à l'érosion que les sols amont, plus profonds, cultivés sans labour et moins sensibles à l'érosion.

L'originalité de ce travail repose sur la discrimination des différents types de sols et l'interprétation qui a pu en être faite en termes de pratiques agricoles. En effet, le bassin de Guaporé présente la particularité d'être cultivé selon différentes pratiques (conventionnelle et de conservation) qui varient notamment en fonction du type de sol. De plus, les échantillons utilisés pour caractériser chaque type de sols du bassin couvrent les différents usages des sols rencontrés sur celui-ci (cultures, prairies, berges). L'étude de traçage géochimique réalisée par Tiecher (2015) sur ce même bassin a par ailleurs montré que les sols cultivés contribuent à hauteur de $87 \pm 19\%$ aux sédiments collectés sur l'ensemble du bassin. Il serait donc intéressant de vérifier que les paramètres géochimiques

retenus comme discriminants des différents types de sols du bassin ne le sont pas également des différents usages.

D'autres approches auraient également pu être envisagées pour identifier les sources de particules transportées par les rivières et estimer leurs contributions. En effet, le matériau qui sous-tend le bassin est d'origine volcanique, et les sols se développent sur deux types de laves : des laves de la formation basique de Gramado (basalte) localisées dans la vallée de la rivière Guaporé et des laves de la formation acide de Caxias (rhyodacite) localisées sur les plateaux. Un traçage à partir de ces deux types de géologie aurait pu être envisagé pour discriminer les apports de particules des plateaux et ceux des versants directement connectés à l'hydro-système. Un travail complémentaire aurait aussi pu être mené en se focalisant d'une part sur l'importance des routes en tant que source de particules et d'autre part sur les sédiments collectés en divers points du réseau hydrographique. En effet, des sédiments ont été échantillonnés en dix points de la rivière Guaporé et de certains de ses affluents lors des travaux de thèse de Tiecher (2015). Ces différents points sont détaillés ci-dessous.

Traçage lithologique, perspectives

Pour tracer les particules selon les différents types de sols d'un bassin, il est nécessaire d'améliorer la compréhension de la géochimie des sols pour justifier la discrimination des différentes sources de particules à partir d'éléments sélectionnés par des tests statistiques. En effet, jusqu'à présent, les études de *fingerprinting* qui reposent sur une discrimination géochimique (mesures d'éléments majeurs et traces) des sources de particules se sont surtout attachées à développer des approches statistiques performantes et fiables pour sélectionner les éléments les plus discriminants, ou à améliorer les modèles employés pour estimer les contributions des différentes sources. Par contre, très peu de recherches s'attachent à investiguer et vérifier la cohérence entre les sources (sols du bassin) et les paramètres physico-chimiques retenus pour estimer leurs contributions aux particules.

Même si le traçage géochimique des particules repose sur le fait que chaque type de roche est à l'origine de la formation de sols présentant des propriétés/signatures géochimiques distinctes, peu d'attention a été portée à la cohérence entre les éléments sélectionnés par les tests statistiques et la géochimie des sols et/ou du substrat géologique de la zone étudiée. Sur le bassin de Guaporé, les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ainsi que six éléments (K, Ti, Co, As, Ba et Pb) ont permis la discrimination des cinq types de sols du bassin (Ferralsols, Nitisosols, Acrisols, Leptosols, Luvisols) et ont été incorporés dans les modèles de mélange. Quelques pistes ont été présentées à l'issue du chapitre 5 pour expliquer la pertinence de ces paramètres pour discriminer les cinq types de sols du bassin de Guaporé.

Il est certain que la limite majeure à la méthode de traçage lithologique/géochimique des sources de particules repose sur cette interrogation quant au potentiel de discrimination des paramètres retenus par les tests statistiques en lien avec la lithologie de la zone d'étude. Même si cette problématique est évoquée dans la littérature (Collins et al., 1997; Laceby et al., 2015; Owens et al., 2006), jusqu'à présent, très peu d'études discutent de la pertinence des éléments incorporés dans les modèles de mélange en lien avec la lithologie du bassin . Il est donc nécessaire d'approfondir les recherches dans ce domaine. Sur le bassin de Guaporé, des analyses granulométriques et minéralogiques pourraient apporter des informations complémentaires aux mesures du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et de géochimie élémentaire qui ne suffisent pas à expliquer totalement le potentiel de ces six éléments et du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ à discriminer les différents types de sols du bassin.

Usages des sols, quel impact sur le traçage lithologique ?

Le traçage lithologique des sources de particules présenté dans le chapitre 5 repose sur une discrimination des différents types de sol grâce à la géochimie élémentaire et au rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. Cependant, les échantillons utilisés pour discriminer chaque type de sol peuvent également être considérés comme étant représentatifs des différents usages (cultures, prairies et berges). Les éléments discriminants des types de sols pourraient donc aussi être discriminants des usages rencontrés sur le bassin.

L'impact potentiel de l'utilisation de paramètres discriminants des usages et des types de sols sur les résultats des modèles de mélange a donc été vérifié. Ces travaux n'ont pas été intégrés dans l'article présenté dans le chapitre 5. Les éléments discriminants des usages des sols ont été identifiés selon la même procédure que celle qui a été utilisée dans les travaux sur la discrimination des sources de particules en fonction des types de sols (chapitre 5). Le sodium (Na) s'est montré non conservatif avec des concentrations dans les sédiments supérieures à celles des sources potentielles (sols cultivés, berges, prairies). Le test de Kruskal-Wallis indique que cinq éléments (K, Zn, Rb, Mo, Ba) sont discriminants des trois usages des sols (Tableau 6.1). Parmi ces cinq éléments, le potassium (K) et le baryum (Ba) permettent également de discriminer les différents types de sols. Ils auraient pu être exclus des modèles de mélanges utilisés pour estimer la contribution des cinq types de sols aux sédiments.

Tableau 6.1. Résultats du test de Kruskal-Wallis pour la discrimination des sources de particules selon l'usage des sols dans le bassin de Guaporé.

Test de Kruskal-Wallis	
Variables	p-value
⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	0,552
Mg	0,107
Al	0,486
K ***	0,006
Ca	0,311
Ti	0,274
V	0,153
Cr	0,849
Mn	0,065
Fe	0,222
Co	0,196
Ni	0,143
Cu	0,143
Zn ***	0,004
As	0,075
Rb **	0,023
Sr	0,055
Mo **	0,011
Ag	0,055
Cd	0,211
Sb	0,327
Ba **	0,027
Tl	0,292
Pb	0,055

(* p<0,1, ** p<0,05, *** p<0,01, **** p<0,001, ***** p<0,0001, les éléments en gras permettent une discrimination des sources de sédiments)

Aussi, pour vérifier l'impact de la présence de ces éléments doublement discriminants sur les contributions estimées et présentées dans le chapitre 5, ces deux éléments (K et Ba) ont été supprimés des tests statistiques utilisés pour sélectionner les éléments discriminants des cinq types de sols. Trois éléments (Al, Rb, Cd) ne permettent pas de discriminer de manière significative les différents types de sols. L'Analyse Factorielle Discriminante sélectionne ensuite le vanadium (V), le cobalt (Co), l'arsenic (As), le strontium (Sr) et le plomb (Pb) comme les éléments les plus discriminants. Ces cinq éléments étant incorporés dans les modèles de mélange, les contributions des cinq types de sols ont été estimées pour l'ensemble des sédiments et pour chaque échantillon. Les résultats obtenus (Tableau 6.2, sans impact des éléments doublement discriminants de l'usage et des types de sols) restent comparables à ceux présentés dans le chapitre 5 (avec un potentiel impact des éléments doublement discriminants des usages et des types de sols). En effet, les variations des contributions estimées à partir des deux jeux d'éléments discriminants varient dans une limite inférieure à 10% (à l'exception de la contribution des Nitisols pour l'échantillon S06 pour lequel une variation de 13% est estimée entre les deux approches).

Ainsi, dans le cas du bassin de Guaporé, la variabilité des usages des sols, inclue dans l'échantillonnage des sources lithologiques de particules, n'impacte pas significativement les résultats des modèles de mélange utilisés pour estimer la contribution des différents types de sols aux sédiments.

Tableau 6.2. Comparaison des résultats : avec les éléments discriminants des usages et types de sols incorporés dans les modèles de mélange /avec les éléments uniquement discriminants des types de sols incorporés dans les modèles de mélange.

Echantillon	Contribution des Ferralsols (%)	Contribution des Nitisols (%)	Contribution des Acrisols (%)	Contribution des Leptosols (%)	Contribution des Luvisols (%)
Tous les sédiments	5 ± 1% / 7 ± 7%	4 ± 1% / 6 ± 1%	38 ± 3% / 39 ± 8%	28 ± 7% / 29 ± 5%	25 ± 3% / 19 ± 2%
S01	3 ± 1% / 6 ± 2%	5 ± 1% / 5 ± 1%	63 ± 2% / 52 ± 2%	15 ± 2% / 19 ± 2%	14 ± 3% / 18 ± 3%
S02	4 ± 1% / 4 ± 1%	4 ± 1% / 4 ± 1%	37 ± 3% / 36 ± 7%	32 ± 4% / 36 ± 11%	24 ± 5% / 20 ± 9%
S03	3 ± 1% / 9 ± 4%	6 ± 9% / 9 ± 3%	35 ± 4% / 35 ± 6%	38 ± 5% / 31 ± 4%	18 ± 17% / 16 ± 4%
S04	3 ± 1% / 3 ± 1%	3 ± 1% / 11 ± 1%	43 ± 1% / 40 ± 5%	30 ± 1% / 34 ± 6%	22 ± 3% / 12 ± 4%
S05	5 ± 1% / 8 ± 3%	6 ± 5% / 6 ± 2%	34 ± 5% / 34 ± 11%	39 ± 8% / 32 ± 9%	17 ± 5% / 20 ± 5%
S06	3 ± 2% / 4 ± 4%	27 ± 4% / 40 ± 9%	11 ± 5% / 6 ± 24%	36 ± 4% / 40 ± 8%	23 ± 5% / 11 ± 6%
S07	3 ± 1% / 6 ± 5%	7 ± 1% / 7 ± 2%	26 ± 3% / 26 ± 3%	42 ± 4% / 41 ± 8%	22 ± 3% / 20 ± 4%

Usages des sols, quelle importance des routes en tant que source de particules ?

Au Brésil, du fait de leur tassement qui induit de faibles taux d'infiltration, les routes non-asphaltées constituent une source non négligeable de particules et favorisent le ruissellement vers l'aval (Miguel et al., 2014; Minella et al., 2007) (Figure 6.1). En augmentant la connectivité entre les versants cultivés et le réseau hydrographique, les routes constituent une voie de transfert préférentielle pour les particules érodées de la surface des sols. Pourtant, la plupart des études de traçage sédimentaire basées sur une discrimination des sources selon l'usage des sols ne considèrent pas les routes comme une source de particules.



Figure 6.1. Importance des routes dans comme source de particules. (a) Route endommagée par le passage de machines agricoles, (b) tassement d'une route et (c) mise en évidence du ruissellement le long d'une route (Photographies, T. Tiecher).

En plus du recours à la géochimie élémentaire et à la mesure du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ pour tracer les sources lithologiques, le ^{137}Cs pourrait être utilisé pour discriminer les routes, non marquées en ^{137}Cs , des autres sources de particules (sols cultivés, berges, prairies). Cette approche est envisageable dans cette région du monde, car des mesures préliminaires montrent que les berges de la zone

étudiée ont été remaniées, et qu’elles présentent donc un marquage en ^{137}Cs , du fait d’apports de sources exposées aux retombées radioactives faisant suite aux essais atmosphériques des années 1960 (Figure 6.2). Ces analyses préliminaires ont été réalisées dans le bassin d’Arvorezinha ($1,19 \text{ km}^2$), un sous-bassin de Guaporé. Elles confirment le potentiel du ^{137}Cs pour l’étude de ce compartiment peu connu que sont les routes, avec des échantillons de routes largement déficitaires en ^{137}Cs en comparaison des autres échantillons de sources potentielles de particules.

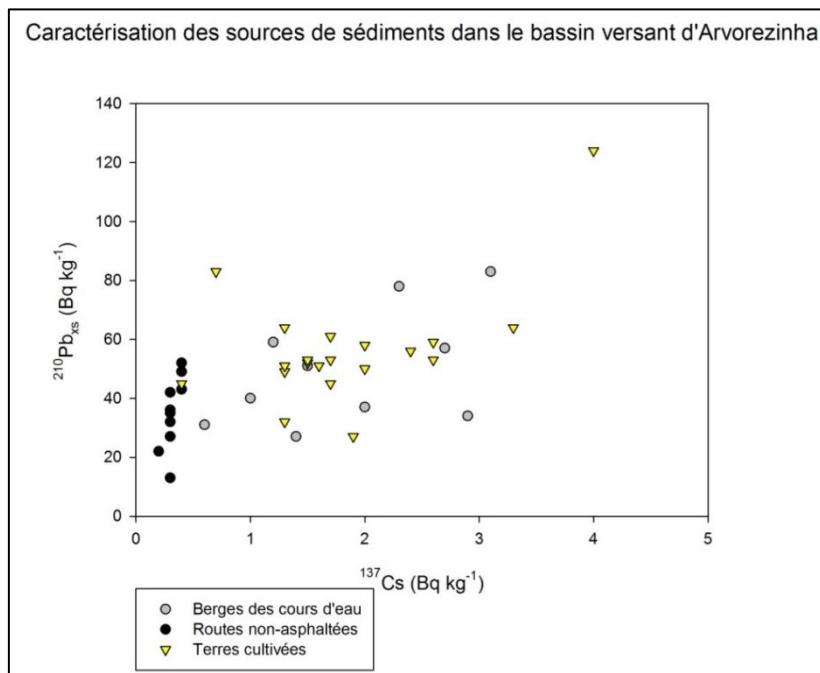


Figure 6.2. Activités en ^{137}Cs et en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ au sein d’échantillons de berges (gris), de terres cultivées (jaune) et de routes non-asphaltées (noir) dans le bassin d’Arvorezinha.

Traçage géologique des sources de particules

Dans le bassin de Guaporé, la géologie est caractérisée par la présence de différentes couches de laves formées à la suite d'intenses évènements volcaniques (pic de volcanisme estimé entre 133 et 135 Ma (Riccomini et al., 2016)). Le matériau qui sous-tend le bassin est basaltique, avec la formation basique de Gramado localisée dans la vallée de la rivière Guaporé. Les parties supérieures du bassin sont caractérisées par une formation acide (Caxias) et la présence de rhyodacite. Un traçage selon la géologie du bassin permettrait de discriminer les apports de particules érodées des plateaux (rhyodacite, formation Caxias) de celles érodées dans la vallée (basalte, formation Gramado) et potentiellement bien connectées à la rivière (Tableau 6.3).

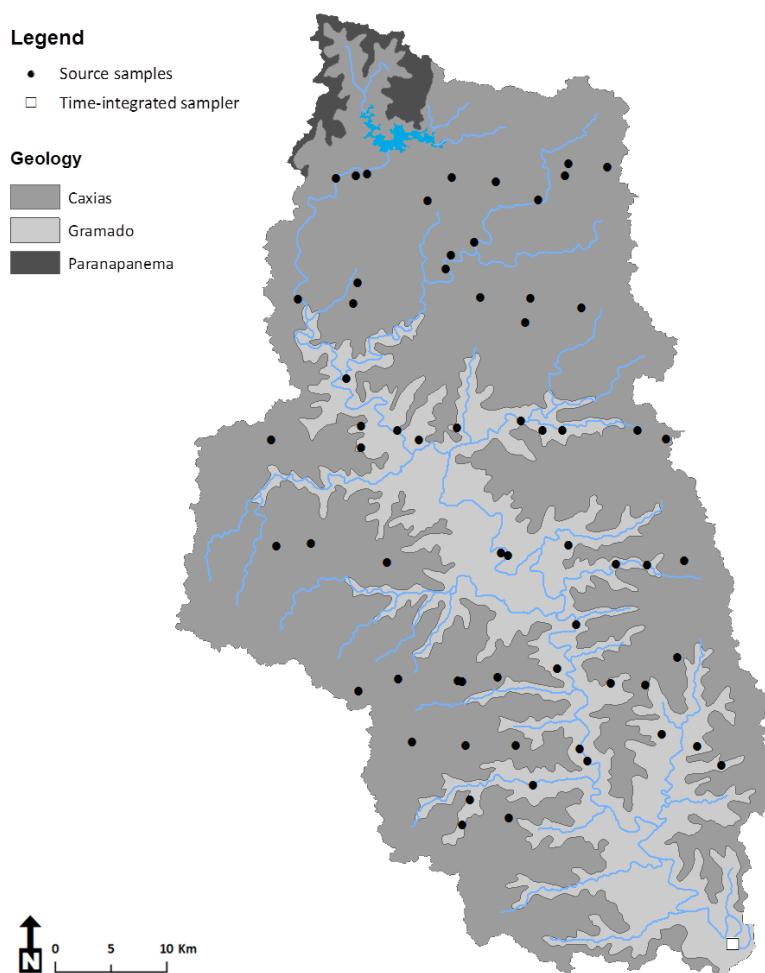


Figure 6.3. Carte géologique du bassin de Guaporé, localisation de la trappe à sédiments et des sources potentielles de particules collectées (Tiecher, 2015).

Cette approche de traçage a été testée et réalisée selon le même schéma que celui proposé dans le chapitre 5. Les sources collectées et situées, d'après la carte géologique, à la limite entre les formations de rhyodacites (Caxias) et de basaltes (Gramado) n'ont pas été prises en considération, étant donné le caractère imprécis de la carte. Le calcium (Ca) et le sodium (Na) se sont montrés non

conservatifs avec des concentrations dans les sédiments supérieures à celles obtenues dans les sols collectés sur les formations de rhyodacite ($n=38$) et de basalte ($n=25$). Le test de Mann-Whitney indique que dix-huit paramètres ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, Mg, K, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Mo, Ag, Sb, Ba et Pb) permettent de discriminer les sols collectés sur les formations de Caxias et de Gramado. Cependant, l'Analyse Factorielle Discriminante ne sélectionne que le cobalt (Co), l'arsenic (As) et le molybdène (Mo) comme les éléments qui discriminent le mieux les sols développés sur les deux formations géologiques.

Ces trois éléments ont été incorporés dans les modèles de mélange et ont permis d'estimer la contribution relative des sols des formations de Caxias et de Gramado aux sédiments prélevés à l'exutoire du bassin. Les résultats indiquent que les sols correspondant à la formation de Gramado (basalte) constituent la source majoritaire (moyenne 79%, SD 25%) avec des contributions comprises entre $8 \pm 1\%$ et $91 \pm 5\%$. Ces contributions sont cohérentes avec la localisation géographique de la formation de Gramado qui affleure exclusivement dans la vallée de la rivière Guaporé. Ces sols sont donc potentiellement bien connectés à l'hydrosystème en comparaison des sols de la formation de Caxias, localisés sur les plateaux. Ces résultats restent cependant exploratoires et pourraient faire l'objet de travaux complémentaires. Ils montrent néanmoins l'intérêt de coupler plusieurs approches pour améliorer l'identification des sources de particules. Il conviendrait de porter une attention particulière à la sélection des échantillons (du fait des fortes imprécisions de la carte géologique) ainsi qu'à la capacité des éléments sélectionnés à discriminer les différentes sources. L'analyse géochimique de ryhodacites et de basaltes affleurant sur le bassin pourrait apporter des éléments de réponse.

Traçage lithologique des sources de particules, en amont du bassin de Guaporé

Sur le bassin de Guaporé, en plus des sédiments de l'exutoire, des échantillonnages ont été réalisés en différents points de la rivière, plus en amont (n=15). Trois de ces sites de prélèvement, situés en amont et en aval de la confluence entre les rivières Guaporé et Marau (affluent rive gauche, ont été sélectionnés. Ces sites ne drainent que des Ferralsols et des Nitisols, faibles contributeurs aux sédiments de l'exutoire, d'après nos résultats (chapitre 5).

Ils permettent d'étudier les variations temporelles des sources de particules à l'amont du bassin. Les sources potentielles de particules ont été restreintes aux échantillons de sols collectés en amont des sites d'échantillonnage de sédiments et les contributions respectives des Ferralsols (n=11) et Nitisols (n=11) peuvent être estimées.

En suivant la même approche de sélection des éléments que dans le chapitre 5, le sodium (Na) s'est montré non conservatif. Le test de Kruskal-Wallis indique que quatorze éléments permettent de discriminer les deux sources ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Mo, Sb, Ba et Pb) et l'Analyse Factorielle Discriminante désigne le cobalt (Co) comme l'élément le plus à même de discriminer Ferralsols et Nitisols. Celui-ci a donc été incorporé dans des modèles de mélange pour estimer la contribution relative des sources de particules aux sédiments de l'amont.

Les résultats indiquent des contributions bien équilibrées entre Ferralsols (moyenne 43%, SD 9%) et Nitisols (moyenne 57%, SD 2%) (Tableau 6.3). Les échantillons de sédiments ont également été modélisés individuellement pour rendre compte des variations temporelles de ces sources entre décembre 2012 et décembre 2014. Sur la rivière Guaporé, en amont de la confluence, les Ferralsols sont la source majoritaire (moyenne 71%, SD 2%) de sédiments (G59, G93, G124, G182, G212) (Figure 6.4). Sur la rivière Marau, les contributions sont bien équilibrées (G58, G92) entre décembre 2012 et février 2013 (moyenne 49%, SD 1%), puis une augmentation de la contribution des Nitisols est observée (G123, G181) entre avril et septembre 2013 (moyenne 62%, SD 4%). Enfin, entre novembre 2013 et décembre 2014, les Ferralsols (G210, G211, G213) constituent la source majoritaire de particules (moyenne 66%, SD 1%) en amont et en aval de la confluence (Figure 6.4). A l'exception de cette dernière période (G210) où les Ferralsols dominent, seules de faibles variations de la contribution des Ferralsols et des Nitisols, bien équilibrée, sont observées en aval de la confluence.

De même, les variations des sources de sédiments restent faibles au cours du temps, et laissent supposer que ces deux types de sols latéritiques, aux propriétés pédologiques similaires et cultivés selon les mêmes pratiques agricoles, présentent globalement la même sensibilité à l'érosion.

Tableau 6.3. Résultats des modèles de mélange.

Echantillon	Période étudiée	Contribution des Ferralsols (%)	Contribution des Nitisols (%)
Tous les sédiments	12/06/2012 – 02/10/2014	58 ± 2%	42 ± 9%
G57	12/06/2012 - 02/06/2013	45 ± 2%	55 ± 1%
G58	12/06/2012 - 02/06/2013	54 ± 2%	46 ± 3%
G59	12/06/2012 - 02/06/2013	65 ± 2%	35 ± 2%
G91	02/06/2013 - 04/28/2013	51 ± 1%	49 ± 1%
G92	02/06/2013 - 04/28/2013	47 ± 2%	53 ± 3%
G93	02/06/2013 - 04/28/2013	63 ± 3%	37 ± 27%
G122	04/28/2013 - 07/06/2013	57 ± 2%	43 ± 1%
G123	04/28/2013 - 07/06/2013	40 ± 1%	60 ± 6%
G124	04/28/2013 - 07/06/2013	74 ± 1%	26 ± 25%
G180	09/18/2013 - 11/16/2013	41 ± 1%	59 ± 1%
G181	09/18/2013 - 11/16/2013	37 ± 1%	63 ± 3%
G182	09/18/2013 - 11/16/2013	82 ± 4%	18 ± 25%
G210	11/16/2013 - 02/10/2014	68 ± 1%	32 ± 1%
G211	11/16/2013 - 02/10/2014	73 ± 1%	26 ± 25%
G212	11/16/2013 - 02/10/2014	90 ± 15%	10 ± 30%

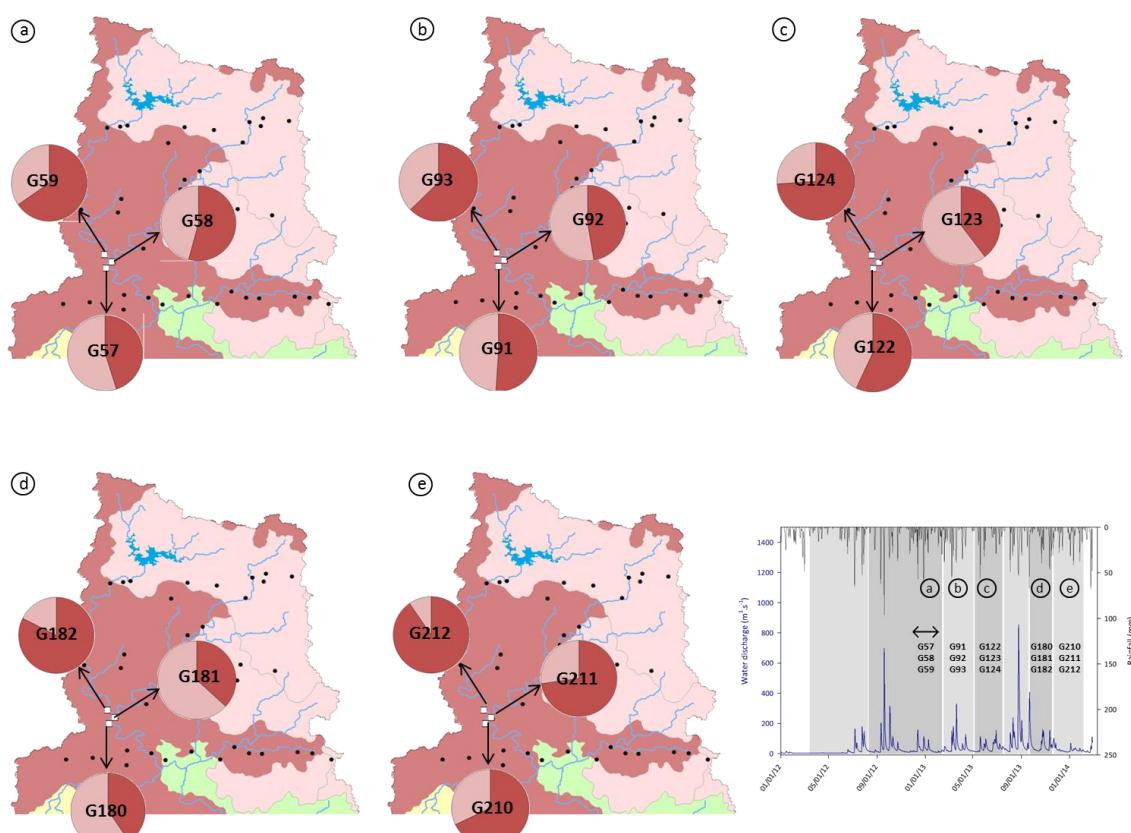


Figure 6.4. Contributions des Ferralsols et des Nitisols aux sédiments collectés en amont du bassin de Guaporé.

3. Perspectives générales

Les mesures du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des radionucléides (^{137}Cs , ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$) sur le bassin du Louroux ont démontré l'intérêt de les combiner pour le traçage des particules à l'échelle du bassin versant. En effet, elles permettent de quantifier les sources de particules mobilisées et leur dynamique spatio-temporelle. Elles pourront également être utilisées pour guider l'implémentation de mesures de lutte contre l'érosion des sols, mais aussi pour contraindre et valider les sorties des modèles d'érosion et de transfert sédimentaire. Cependant, sur le bassin de Guaporé, pour des raisons principalement logistiques, les travaux présentés dans ce manuscrit se sont limités à des mesures de géochimie élémentaire et isotopique. En complément, la caractérisation minéralogique (DRX, MEB) des sources et des sédiments pourrait fournir des informations complémentaires quant à la pertinence des paramètres incorporés dans les modèles de mélange pour l'estimation de la contribution des différentes sources de particules aux sédiments. Comme pour le bassin du Louroux, des analyses de ^{137}Cs pourraient également permettre de discriminer les apports des sources de surface et de subsurface, et donc de distinguer la contribution des différents compartiments du bassin versant. Les résultats pourraient être comparés à ceux qui ont été obtenus à partir de mesures de géochimie élémentaire (Tiecher, 2015). De plus, ^7Be et $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ pourraient être mesurés afin de caractériser la dynamique temporelle des particules lors des crues, particulièrement intenses et érosives en contexte subtropical, et à une échelle plus vaste que celle du bassin du Louroux.

L'objectif principal de cette thèse consistait à tester le potentiel du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ pour discriminer les sources lithologiques des particules à l'échelle du bassin versant. Sur le bassin du Louroux, les travaux menés ont permis de discriminer les différentes sources lithologiques des particules, de souligner l'importance du transport de matériel très fin via les drains et les rivières, et de reconstruire l'évolution de la contribution des deux lithologies du bassin au cours du temps. L'ensemble de ces résultats n'auraient pu être acquis uniquement à partir de données de géochimie élémentaire. Sur le bassin de Guaporé, où la géologie n'est pas très contrastée, un traçage géologique des sources de particules n'est pas apparu comme l'approche la plus pertinente. Un traçage pédologique a donc été envisagé. Comme cinq types de sols se sont développés sur ce bassin, le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ne pouvait être utilisé comme unique traceur des sources de particules, contrairement au bassin du Louroux où il n'y avait que deux lithologies à discriminer. En effet, pour discriminer n sources, au moins $n-1$ paramètres sont requis. La géochimie élémentaire a donc été utilisée en complément du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$. Ce rapport s'est monté discriminant des cinq types de sols du bassin de Guaporé. Cependant, il n'a pu être utilisé pour discriminer les deux géologies (basaltes, rhyodacites) du bassin et les deux types de sols latéritiques de l'amont (Ferralsols et Nitisosols), développés sur la même lithologie et qui présentent des signatures isotopiques similaires,

lors du traçage des sédiments collectés dans cette partie du bassin. De plus, la mesure du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ des sols et sédiments requiert une préparation chimique longue et relativement coûteuse. Leur utilisation pour le traçage des particules est plutôt à privilégier pour des études sur des bassins versants où les lithologies et/ou types de sols sont bien différenciés.

A l'avenir, le choix des traceurs et l'interprétation des résultats obtenus lors du traçage des sources de particules devraient avant tout reposer sur les caractéristiques du bassin versant sélectionné. Il n'existe *a priori* pas de traceur universel, applicable à tout contexte. Les présents travaux donnent déjà des pistes pour orienter les études ultérieures. Aussi, il serait par exemple intéressant de réaliser un traçage des particules de surface/subsurface en utilisant, d'une part, le ^{137}Cs et, d'autre part, la géochimie élémentaire dans les deux bassins versants du Louroux et d'Arvorezinha ($1,19 \text{ km}^2$, sous bassin de Guaporé) et de confronter les résultats obtenus avec les deux types de traceurs, de manière à bien identifier le potentiel et les limites de ces deux approches dans des contextes variés. Dans le cas du Louroux, la distinction entre substrats carbonaté et silicaté pourrait aussi être intégrée en discriminant quatre sources : surface carbonatée, subsurface carbonatée, surface silicatée et subsurface silicatée.

Enfin, à des échelles plus vastes, des recherches pourraient par exemple être menées au sein des bassins hydrographiques de la Loire et du fleuve Uruguay. A l'échelle du bassin versant de la Loire ($117\,500 \text{ km}^2$, plus grand du territoire français), le ^{137}Cs pourrait être utilisé comme traceur préférentiel des particules provenant en particulier des zones cultivées. Après avoir évalué son stock dans les sols du bassin, des modèles d'érosion permettraient de quantifier les transferts de particules, et donc des contaminants qui y sont associés, des versants vers les rivières et d'estimer leur temps de résidence au sein d'un compartiment de l'environnement donné, la chronologie des retombées en ^{137}Cs dans le bassin étant bien connue. A l'échelle de l'Amérique du Sud, le bassin versant du fleuve Uruguay ($370\,000 \text{ km}^2$), qui s'étend aux confins des territoires brésilien, argentin et uruguayen, constitue un site particulièrement intéressant pour le traçage des sources de particules et l'étude de leur dynamique. En effet, le fleuve Uruguay draine des zones agricoles intensivement cultivées (culture du riz, du soja) où les pesticides sont massivement utilisés. Il est également caractérisé par la présence de barrages sur son cours principal qui impactent les bilans hydrologiques et sédimentaires du bassin. De plus, en se jetant dans le Rio de la Plata, il participe à l'exportation de près de 80 000 tonnes de sédiments par an (Framiñan et al., 1999) dans l'océan Atlantique. Les risques de pollution agricole et la dégradation de la qualité des milieux aquatiques et marins étant au cœur des préoccupations environnementales actuelles, les particularités du bassin du fleuve Uruguay rendent compte de ces problématiques et soulignent l'importance d'y mener des études de traçage des sédiments.

4. Références bibliographiques Chapitre 6

- Collins, A.L., Walling, D.E., Leeks, G.J.L., 1997. Use of the geochemical record preserved in floodplain deposits to reconstruct recent changes in river basin sediment sources. *Geomorphology*, 19: 151-167.
- Framiñan, M.B., Etala, M.P., Acha, E.M., Guerrero, R.A., Lasta, C.A., Brown, O.B., Physical characteristics and processes of the Río de la Plata Estuary, in: G.M.E. Perillo, M. Piccolo, M. Pino-Quivira (Eds.), *Estuaries of South America*, Environmental Science, Springer, Berlin Heidelberg (1999), pp. 161–194.
- Gateuille, D., Evrard, O., Lefevre, I., Moreau-Guigon, E., Alliot, F., Chevreuil, M., Mouchel, J.M., 2014. Combining measurements and modelling to quantify the contribution of atmospheric fallout, local industry and road traffic to PAH stocks in contrasting catchments. *Environmental Pollution*, 189: 152-60.
- Laceby, J.P., McMahon, J., Evrard, O., Olley, J., 2015. A comparison of geological and statistical approaches to element selection for sediment fingerprinting. *Journal of Soils and Sediments*, 15(10): 2117-2131.
- Lepage, H., Laceby, J.P., Bonté, P., Joron, J.-L., Onda, Y., Lefèvre, I., Ayrault, S., Evrard, O., 2016. Investigating the source of radiocesium contaminated sediment in two Fukushima coastal catchments with sediment tracing techniques. *Anthropocene*.
- Miguel, P., Dalmolin, R.S.D., Pedron, F.d.A., Moura-Bueno, J.M., Tiecher, T., 2014. Identificação de fontes de produção de sedimentos em uma bacia hidrográfica de encosta. *Revista Brasileira de Ciencia do Solo*, 38(2): 585-598.
- Minalla, J.P.G., Merten, G.H., Reichert, M., 2007. Identificação E Implicações Para a Conservação do solo das fontes de sedimentos em bacias hidrográficas. *Revista Brasileira de Ciências do Solo*, 31(1): 1637-1646.
- Owens, P.N., Blake, W.H., Petticrew, E.L., 2006. Changes in Sediment Sources following Wildfire in Mountainous Terrain: A Paired-Catchment Approach, British Columbia, Canada. *Water, Air, & Soil Pollution: Focus*, 6(5-6): 637-645.
- Owens, P.N., Walling, D.E., 2002. Changes in sediment sources and floodplain deposition rates in the catchment of the River Tweed, Scotland, over the last 100 years: the impact of climate and land use change. *Earth Surface Processes and Landforms*, 27(4): 403-423.
- Riccomini, C., Sant'Anna, L.G., Fambrini, G.L., 2016. The Early Cretaceous Jacuí Group, a newly discovered volcanoclastic-epiclastic accumulation at the top of the Paraná Basin, southern Brazil. *Cretaceous Research*, 59: 111-128.
- Tiecher, T., 2015. Fingerprinting sediment sources in agricultural catchments in southern Brazil, Universidade Federal de Santa Maria, Graduate programm in soil science - Université de Poitiers, Ecole doctorale Gay Lussac, Thèse, 275 pp.
- Van Oost, K., Quine, T.A., Govers, G., De Gryze, S., Six, J., Harden, J.W., Ritchie, J.C., McCarty, G.W., Heckrath, G., Kosmas, C., Giraldez, J.V., da Silva, J.R., Merckx, R., 2007. The impact of agricultural soil erosion on the global carbon cycle. *Science*, 318(5850): 626-9.
- Wilkinson, S.N., Hancock, G., Bartley, R., Hawdon, A., Keen, R.J., 2013. Using sediment tracing to assess processes and spatial patterns of erosion in grazed rangelands, Burdekin River basin, Australia. *Agriculture, Ecosystems and Environment*, 180: 90-102.
- Yue, Y., Ni, J., Ciais, P., Piao, S., Wang, T., Huang, M., Borthwick, A.G., Li, T., Wang, Y., Chappell, A., Van Oost, K., 2016. Lateral transport of soil carbon and land-atmosphere CO₂ flux induced by water erosion in China. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 113(24): 6617-22.



ANNEXES

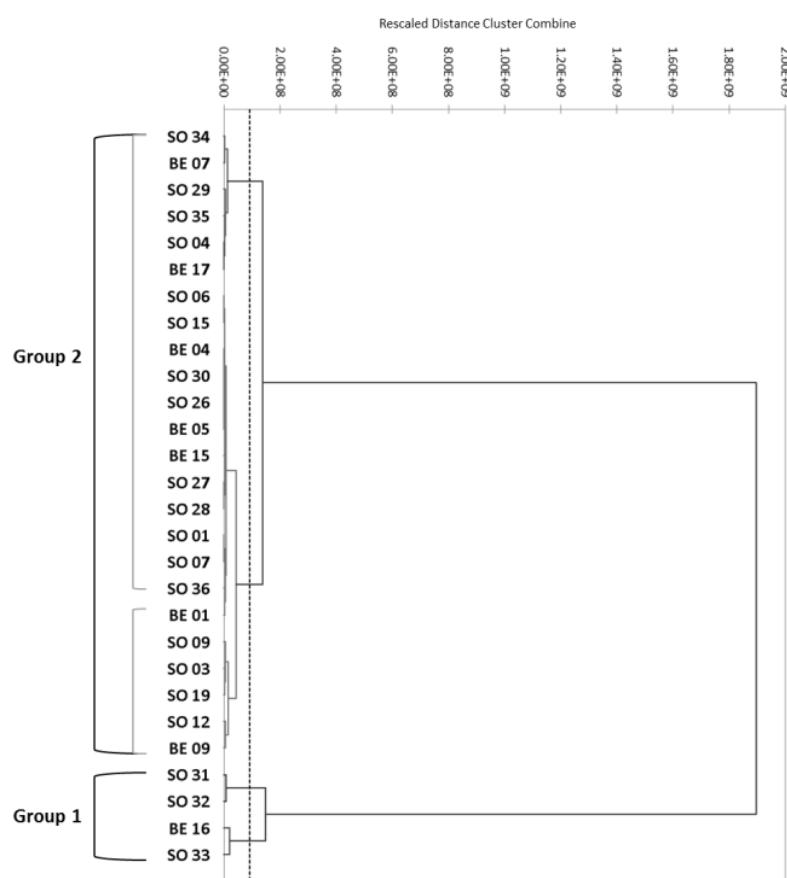
ANNEXE A – Chapitre 3 – Supplementary Material *Chemical Geology*

Figure A1. Dendrogram of the hierarchical cluster analysis based on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, Na, Mg, K, Ca, Rb and Sr concentration measured in source samples.

Table A1. Summary of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, element concentrations (mg kg^{-1}) and $1/\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios in soil samples.

Sample ID	Latitude ($^{\circ}\text{N}$)	Longitude ($^{\circ}\text{E}$)	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$	Na (mg kg^{-1})	Mg (mg kg^{-1})	K (mg kg^{-1})	Ca (mg kg^{-1})	Rb (mg kg^{-1})	Sr (mg kg^{-1})	$1/\text{Sr}$	Rb/Sr
SO 01	47.151	0.76	0.722426	0.000013	3883	1184	9845	2289	52	50	0.020	1.04
SO 03	47.145	0.747	0.721704	0.000012	3259	3041	12879	5577	98	71	0.014	1.38
SO 04	47.144	0.743	0.723706	0.000005	1772	795	6047	1782	37	29	0.034	1.26
SO 06	47.138	0.729	0.723199	0.000012	4226	1839	12473	2725	80	62	0.016	1.29
SO 07	47.122	0.738	0.724631	0.000008	4419	1155	10681	2108	62	47	0.021	1.32
SO 09	47.13	0.757	0.719287	0.000048	2703	4004	13028	7021	99	74	0.013	1.33
SO 12	47.141	0.771	0.714943	0.000006	3403	4631	9972	4002	98	98	0.010	1.00
SO 15	47.149	0.723	0.724506	0.000006	4289	1442	12125	3363	43	50	0.020	0.85
SO 19	47.158	0.739	0.721115	0.000006	2952	3059	13910	4110	114	73	0.014	1.56
SO 26	47.127	0.771	0.723899	0.000006	3075	1889	11595	2012	78	54	0.019	1.44
SO 27	47.156	0.770	0.723910	0.000006	3064	1883	11555	2885	68	58	0.017	1.17
SO 28	47.138	0.723	0.721561	0.000007	3002	1845	11321	3413	104	66	0.015	1.58
SO 29	47.129	0.723	0.72388	0.000019	1352	538	4103	642	24	19	0.054	1.28
SO 30	47.119	0.731	0.724116	0.000008	3360	1381	11093	2267	75	53	0.019	1.42
SO 31	47.139	0.772	0.716986	0.000006	4537	4594	10253	20192	94	72	0.014	1.30
SO 32	47.138	0.758	0.712763	0.000008	1965	1997	8929	20897	56	152	0.007	0.37
SO 33	47.14	0.764	0.715012	0.000008	3056	3103	8701	35698	67	93	0.011	0.72
SO 34	47.137	0.757	0.722388	0.000008	1083	1086	8092	2469	50	39	0.026	1.27
SO 35	47.135	0.753	0.717815	0.000008	1230	1242	6701	2754	39	51	0.020	0.76
SO 36	47.136	0.754	0.721163	0.000008	1860	1885	10847	3404	71	62	0.016	1.15
BE 01	47.151	0.760	0.720446	0.000049	3245	2018	10077	3246	66	59	0.017	1.12
BE 04	47.138	0.729	0.722606	0.000049	3924	1935	12158	1934	84	63	0.016	1.33
BE 05	47.124	0.744	0.722340	0.000049	3393	1841	11834	2473	85	61	0.016	1.39
BE 07	47.131	0.759	0.719653	0.000008	2377	1516	8809	2873	58	54	0.019	1.09
BE 09	47.141	0.771	0.720070	0.000049	3090	3937	9672	6857	82	53	0.019	1.56
BE 15	47.130	0.733	0.722685	0.000005	2820	2856	12165	2692	93	61	0.016	1.52
BE 16	47.138	0.761	0.712625	0.000006	2867	2808	10527	29632	74	177	0.006	0.42
BE 17	47.154	0.740	0.721651	0.000005	1626	1352	5981	1956	65	48	0.021	1.34

Table A2. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, elemental concentrations (mg kg^{-1}), $1/\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios in suspended sediment collected in the rivers (Conteraye, Picarderie, Beaulieu, Masniers, Grand Bray) and at tile drain outlets (Mazère, Brépinière) during three flood events.

Flood event Localisation	Suspended sediment concentration (mg L^{-1})	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$	Na (mg kg^{-1})	Mg (mg kg^{-1})	Al (mg kg^{-1})	K (mg kg^{-1})	Ca (mg kg^{-1})	Rb (mg kg^{-1})	Sr (mg kg^{-1})	$1/\text{Sr}$	Rb/Sr
Suspended sediment - 1st flood event (12/30/2013)												
Conteraye	270	0.717964	0.000012	2338	5378	90028	14480	6081	157	78	0.013	2.01
Picarderie	335	0.718114	0.000013	1040	6760	102146	14320	7055	173	77	0.013	2.25
Beaulieu	414	0.718384	0.000009	900	6894	102495	13085	7311	178	68	0.015	2.64
Masniers	337	0.715484	0.000014	1896	6379	86433	14957	22546	163	122	0.008	1.34
Grand Bray	386	0.716377	0.000013	1477	7293	108179	17009	14457	191	114	0.009	1.67
Mazère	324	0.717296	0.000014	972	7582	111628	15390	7445	196	78	0.013	2.51
Brépinière	300	0.714202	0.000013	1095	6860	101125	14511	8341	166	126	0.008	1.33
Suspended sediment - 2nd flood event (01/29/2014)												
Conteraye	40	0.715734	0.000014	257	5738	94320	12207	12353	159	97	0.010	1.64
Picarderie	167	0.718637	0.000014	624	7325	117421	15557	12190	193	83	0.012	2.33
Beaulieu	219	0.718188	0.000013	340	7441	113307	15890	11292	197	86	0.012	2.29
Masniers	107	0.715671	0.000016	780	6850	95783	14873	7629	177	113	0.009	1.56
Grand Bray	133	0.716165	0.000014	917	6723	98741	15345	11385	178	107	0.009	1.67
Mazère	68	0.717946	0.000013	n.d.	5911	91574	11741	17278	69	68	0.015	1.03
Brépinière	124	0.713660	0.000012	496	6103	97440	13298	12232	233	121	0.008	1.93
Suspended sediment - 3rd flood event (02/13/2014)												
Picarderie	774	0.720571	0.000011	1636	3969	56006	14137	7095	71	62	0.016	1.15
Beaulieu	813	0.720495	0.000012	n.d.	3529	54384	13871	5425	65	61	0.016	1.06
Masniers	470	0.717814	0.000012	2018	6291	88825	16062	11935	167	90	0.011	1.86
Grand Bray	541	0.718467	0.000012	1958	5852	77427	16726	9810	109	80.4	0.012	1.36

Table A3. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, Sr and Rb concentrations (mg kg^{-1}) in various particle size fractions of the soil samples.

Sample ID		$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	Sr (mg kg^{-1})	Rb (mg kg^{-1})
SO 03		0.721704	71	98
SO 03 <63 μm	Silicate soils	0.722356	76	99
SO 03 <2 μm		0.719877	72	151
SO 15		0.724506	50	43
SO 15 <63 μm	Silicate soils	0.724667	65	73
SO 15 <2 μm		0.722535	58	155
SO 19		0.721115	73	114
SO 19 <63 μm	Silicate soils	0.721521	77	106
SO 19 <2 μm		0.720018	77	149
SO 28		0.721561	60	104
SO 28 <63 μm	Silicate soils	0.722288	72	95
SO 28 <2 μm		0.720653	75	159
SO 31		0.716986	72	94
SO 31 <63 μm	Carbonate soils	0.718687	73	110
SO 31 <2 μm		0.716922	56	177
SO 33		0.715012	93	67
SO 33 <63 μm	Carbonate soils	0.716178	101	70
SO 33 <2 μm		0.715645	81	138
SO 35		0.717815	51	39
SO 35 <63 μm	Carbonate soils	0.718855	82	69
SO 35 <2 μm		0.713099	120	114
SO 36		0.721163	62	71
SO 36 <63 μm	Silicate soils	0.721510	72	94
SO 36 <2 μm		0.717482	84	155

Table A4. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, element concentrations (mg kg^{-1}), 1/Sr and Rb/Sr ratios in the fraction <63 μm of eight soil samples.

Sample ID	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$	Na	Mg	K	Ca	Rb	Sr	1/Sr	Rb/Sr
			(mg kg^{-1})							
SO 03 <63 μm	0.722356	0.00001	3966	2951	14850	5998	99	76	0.013	1.30
SO 15 <63 μm	0.724667	0.00001	5233	1395	14373	2791	73	65	0.016	1.13
SO 19 <63 μm	0.721521	0.00001	2300	2839	14741	4232	108	77	0.013	1.40
SO 28 <63 μm	0.722288	0.00001	3825	2403	14426	3776	95	72	0.014	1.32
SO 31 <63 μm	0.718687	0.00001	3804	4901	13282	25472	110	73	0.014	1.51
SO 33 <63 μm	0.716178	0.00000	4160	3892	12255	63573	70	101	0.010	0.69
SO 35 <63 μm	0.718855	0.00001	5096	1893	13136	4992	69	82	0.012	0.85
SO 36 <63 μm	0.721510	0.00001	5056	2141	14641	4266	94	72	0.014	1.31

Table A5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, elemental concentrations (mg kg^{-1}), 1/Sr and Rb/Sr ratios in the clay fraction (<2 μm) of eight soil samples.

Sample ID	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$	Na (mg kg^{-1})	Mg (mg kg^{-1})	K (mg kg^{-1})	Ca (mg kg^{-1})	Rb (mg kg^{-1})	Sr (mg kg^{-1})	1/Sr	Rb/Sr
SO 03<2 μm	0.719877	0.000043	49570	5460	14649	7945	151	72	0.014	2.10
SO 15<2 μm	0.722535	0.000043	67941	5099	14183	6859	155	58	0.017	2.67
SO 19<2 μm	0.720018	0.000043	45653	4577	15164	5570	148	77	0.013	1.94
SO 28<2 μm	0.720653	0.000039	39246	5044	15826	5502	159	75	0.013	2.12
SO 31<2 μm	0.716922	0.000039	46947	9679	13364	14842	177	56	0.018	3.15
SO 33<2 μm	0.715645	0.000039	64399	6156	14752	11969	138	81	0.012	1.71
SO 35<2 μm	0.713099	0.000039	56543	5423	12900	10569	114	120	0.008	0.94
SO 36<2 μm	0.717482	0.000039	55603	5550	14229	6487	155	84	0.012	1.84

ANNEXE A

Table A6. Relative contributions of the silicate and carbonate end-members to the suspended sediment during three flood events using different modelling approaches. The model difference was estimated compared to the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios approach.

Samples	Carbonate contribution (%)	Silicate contribution (%)
<i>1st flood event (<2 μm fraction)</i>		
Grand Bray (GB1)	73	27
Masniers (MS1)	94	6
Brépinière (BR1)	100	0
Conteraye (CO1)	40	60
Beaulieu (BE1)	32	68
Picarderie (PI1)	37	63
Mazère (MZ1)	54	46
<i>2nd flood event (<2 μm fraction)</i>		
Grand Bray (GB2)	78	22
Masniers (MS2)	89	11
Brépinière (BR2)	100	0
Conteraye (CO2)	88	12
Beaulieu (BE2)	36	64
Picarderie (PI2)	27	73
Mazère (MZ2)	40	60
<i>3rd flood event (<2 mm fraction)</i>		
Grand Bray (GB3)	36	64
Masniers (MS3)	45	55
Beaulieu (BE3)	15	85
Picarderie (PI3)	14	86

ANNEXE B – Chapitre 3 – Supplementary Material *Scientific Reports***Table B1.** Fallout radionuclide activities (Bq kg^{-1}), $^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratios in suspended sediment and overland flow samples, residence time of particles (days), and fraction of recently eroded sediment for 2013-2014 flood events.

Monitoring station	$^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq kg^{-1})	^{7}Be (Bq kg^{-1})	$^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	Residence time (days)	% of recently eroded sediment
Suspended sediment - 1st flood event (12/30/2013)					
Conteraye (CO)	10 ± 5	60 ± 10	6.3 ± 1.6	20 ± 15	80 ± 20
Picarderie (PI)	<LD* ± 10	40 ± 10	4.4 ± 2.6	50 ± 40	50 ± 35
Beaulieu (BE)	20 ± 5	<LD* ± 20	0.5 ± 0.4	220 ± 60	5 ± 5
Masniers (MS)	10 ± 5	50 ± 5	5.8 ± 1.4	25 ± 15	70 ± 20
Grand Bray (GB)	<LD* ± 10	65 ± 10	6.8 ± 3.8	10 ± 40	85 ± 50
Mazère (MZ)	<LD* ± 10	<LD* ± 20	0.9 ± 1.1	165 ± 90	10 ± 15
Brépinière (BR)	15 ± 5	20 ± 6	1.4 ± 0.3	135 ± 10	20 ± 5
Suspended sediment - 2nd flood event (01/29/2014)					
Conteraye	10 ± 5	95 ± 10	8.0 ± 0.9	40 ± 2	60 ± 15
Picarderie	10 ± 5	85 ± 10	8.0 ± 1.2	40 ± 2	60 ± 15
Beaulieu	10 ± 5	130 ± 5	11.0 ± 1.2	20 ± 1	80 ± 20
Masniers	10 ± 5	70 ± 5	6.2 ± 0.9	60 ± 2	45 ± 10
Grand Bray	10 ± 5	75 ± 5	6.0 ± 0.7	65 ± 1	40 ± 10
Mazère	20 ± 5	<LD* ± 70	2.0 ± 2.0	100 ± 55	10 ± 15
Brépinière	<LD* ± 5	120 ± 10	10.0 ± 7.6	25 ± 50	70 ± 65
Suspended sediment - 3rd flood event (02/13/2014)					
Conteraye	30 ± 5	130 ± 10	4.2 ± 0.4	40 ± 3	60 ± 10
Picarderie	20 ± 5	100 ± 5	5.9 ± 0.6	10 ± 5	90 ± 15
Beaulieu	20 ± 5	130 ± 10	9.1 ± 0.9	1 ± 3	100 ± 15
Masniers	20 ± 5	120 ± 5	6.4 ± 0.6	4 ± 3	95 ± 15
Grand Bray	25 ± 5	140 ± 10	6.4 ± 0.6	4 ± 3	90 ± 15
Overland flow in an ephemeral rill					
1 st flood event (12/30/2013)	50 ± 10	420 ± 10	8 ± 1	0	100
2 nd flood event (01/29/2014)	10 ± 5	120 ± 10	14 ± 2	0	100
3 rd flood event (02/13/2014)	25 ± 5	165 ± 5	7 ± 1	0	100

When activities were lower than the limit detection (LD), activities corresponding to the half of the detection limits was used for ^{7}Be and to the detection limits was used for $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$.

ANNEXE B

Table B2. Fallout radionuclide activities (Bq kg^{-1}), ${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratios in suspended sediment, residence time of particles (days), and fraction of recently eroded sediment for 2016 flood events.

Monitoring station	${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ (Bq kg^{-1})	${}^7\text{Be}$ (Bq kg^{-1})	${}^7\text{Be}/{}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$	Residence time (days)	% of recently eroded sediment
Suspended sediment - 4th flood event (01/07/2016)					
Masniers - rising limb	25 ± 5	135 ± 10	5.2 ± 0.9	3 ± 10	95 ± 20
Masniers - falling limb	20 ± 5	95 ± 10	5.4 ± 0.9	0 ± 10	100 ± 25
Grand Bray - rising limb	<LD* ± 20	130 ± 15	5.3 ± 1.9	1 ± 30	100 ± 45
Grand Bray - falling limb	20 ± 10	75 ± 10	3.6 ± 0.8	31 ± 10	70 ± 20
Brépinière - rising limb	40 ± 10	70 ± 5	1.7 ± 0.2	90 ± 5	30 ± 5
Brépinière - flood peak	40 ± 10	60 ± 10	1.6 ± 0.2	95 ± 5	30 ± 10
Overland flow in an ephemeral rill					
4 th flood event (01/07/2016)	30 ± 5	175 ± 5	5.4 ± 0.4	-	-
Suspended sediment - 5th flood event (01/11/2016)					
Conteraye - 1 st flood peak	50 ± 5	375 ± 10	7.3 ± 0.4	12 ± 5	85 ± 20
Conteraye - 2 nd flood peak	70 ± 10	410 ± 20	5.9 ± 0.5	28 ± 3	70 ± 15
Picarderie - 1 st and 2 nd flood peaks	50 ± 5	310 ± 15	6.2 ± 0.5	25 ± 3	70 ± 20
Beaulieu - 1 st flood peak	50 ± 10	415 ± 25	8.5 ± 1.0	0	0
Beaulieu - 2 nd flood peak	40 ± 10	320 ± 10	8.8 ± 1.0	6 ± 1	90 ± 25
Masniers - 1 st flood peak	50 ± 10	195 ± 15	4.0 ± 0.4	60 ± 1	50 ± 10
Masniers - 2 nd flood peak	30 ± 5	215 ± 10	7.7 ± 0.5	8 ± 1	90 ± 25
Grand Bray - 1 st flood peak	45 ± 10	335 ± 10	7.4 ± 0.8	10 ± 1	90 ± 20
Grand Bray - 2 nd flood peak	25 ± 5	200 ± 5	7.9 ± 0.6	5 ± 3	90 ± 20
Brépinière - rising limb 1	40 ± 10	170 ± 20	4.2 ± 0.6	55 ± 2	50 ± 15
Brépinière - rising limb 2	25 ± 10	120 ± 15	4.9 ± 0.9	40 ± 5	60 ± 20
Brépinière - rising limb 3	20 ± 5	180 ± 10	8.4 ± 1.1	0 ± 1	100 ± 30
Brépinière - falling limb	30 ± 10	210 ± 20	6.8 ± 1.2	20 ± 5	80 ± 25

When activities were lower than the limit detection (LD), activities corresponding to half of the detection limit was used for ${}^7\text{Be}$ and to the detection limit was used for ${}^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$.

Table B3. Mean residence time of particles and fraction of recently eroded particles for 2016 flood events.

Monitoring station	Age of sediment (days)	% of "new" sediment
Suspended sediment - 4th flood event (01/07/2016)		
Masniers	10 ± 5	90 ± 20
Grand Bray	20 ± 20	80 ± 30
Brépinière	100 ± 5	30 ± 10
Suspended sediment - 5th flood event (01/11/2016)		
Conteraye	20 ± 5	80 ± 15
Picarderie	20 ± 5	75 ± 15
Beaulieu	5 ± 5	100 ± 25
Masniers	35 ± 5	70 ± 15
Grand Bray	5 ± 5	90 ± 20
Brépinière	30 ± 5	70 ± 20

Table B4. Median fraction of recently eroded sediment and residence time of particles during the five flood events.

	2013-2014		2016	
	1 st flood (a)	2 nd flood (b)	3 rd flood (c)	4 th flood (d)
% of recently eroded sediment	40 ± 20%	70 ± 40%	80 ± 20%	65 ± 20%
Mean residence time of particles	95 ± 40 days	40 ± 10 days	15 ± 5 days	45 ± 10 days
				20 ± 5 days

ANNEXE C – Chapitre 4 – Supplementary Material *Science of the Total Environment*

Material and methods: additional information

Mineralization and selective extraction of the “exchangeable and carbonate” fraction

Approximately 100 mg of source and sediment material were dissolved by the successive addition of 3 mL HF (47-51%) and 3 mL HClO₄ (65-71%) at 150°C and 3.75 mL HCl (34-37%) and 1.25 mL HNO₃ (67%) at 110°C in closed Teflon vessels on hot-plates. Next, the samples were re-suspended three times in 2 mL of HNO₃ (67%) and then diluted in 50 mL of ultrapure water (Milli-Q). Between each step, solutions were evaporated to dryness and ultrapure reagents were used (Normatom grade, VWR, France for HNO₃, and “Trace Metal Grade”, Fisher Chemical, France for HF, HClO₄ and HCl). A reference material (IAEA lake sediment SL1) and a chemical blank were analyzed to check the chemical mineralization efficiency for each set of digestions.

A two-step procedure was applied to carbonate rocks. To clean the surface, approximately 125 mg of powdered material was leached in 10 mL of HNO₃ 0.5N. The solution was then centrifuged; the supernatant solution taken away and the residue dissolved twice again, following the same procedure. The solid residue was dissolved by the successive addition of 0.25 mL HNO₃ (67%) and 1.35 mL HCl (34-37%) at 110°C and 0.5 mL HF (47-51%) and 0.5 mL HClO₄ (65-71%) at 150°C in Teflon vessels on hot plates. Samples were evaporated to dryness between 110°C and 150°C. Samples were finally resuspended in 0.5 mL of HNO₃ and diluted with the supernatant solution in 50 mL of ultrapure water (Milli-Q).

For fertilizers, 100 mg of material (N, N.P.K and P.K) were dissolved in 5 mL of HNO₃ 5N to extract the maximum amount of phosphorous and to minimize subsequent precipitation of insoluble compounds. The solution was then centrifuged, the supernatant solution taken away and the residue dissolved again twice, following the same procedure. Residues were then digested in Teflon vessels on hot plates with a 1.5 mL HF (47-51%) and 1.5 mL HClO₄ (65-71%) mixture at 180°C for 2 days and evaporated to dryness at 150°C. The supernatant was then added to the residue and evaporated to dryness at 150°C. Samples were finally resuspended three times in 1 mL of HNO₃ and diluted to 50 mL with ultrapure water (Milli-Q).

Strontium purification

A strontium specific resin was used (SR Resin, 100-150 µm, TrisKem International) and packed on lab-made polyethylene microcolumns. The resin was previously conditioned using HCl 1N and HCl 3N and rinsed with HNO₃ 3N and ultrapure water (Milli-Q). A pure Sr fraction was separated from the digestion solution using HNO₃ 3N and ultrapure water (Milli-Q). Strontium recovery and efficiency of purification were determined by comparing the strontium, and calcium concentrations in the original solution (after bulk mineralization) and in the eluted strontium fraction. More than 90% of the calcium was eliminated after the chemical extraction.

Detailed geological map of the Louroux catchment (Froger et al., 1994; Rasplus et al., 1982)

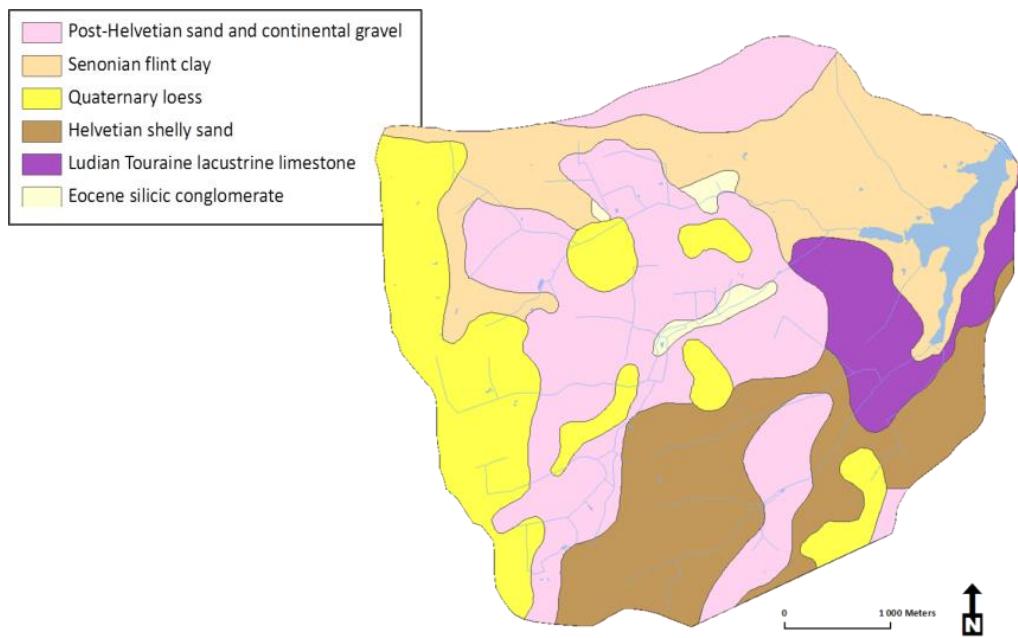


Figure C1. Detailed lithological map of the Louroux catchment.

Geochemical discrimination of pond and core sediment

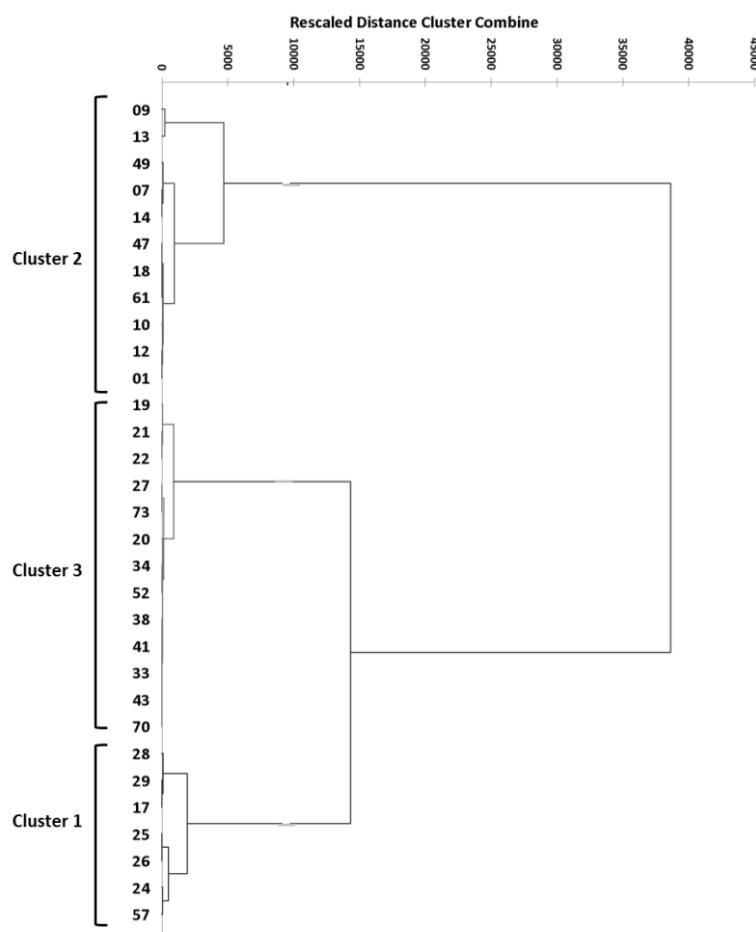


Figure C2. Dendrogram of the hierarchical cluster analysis based on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and strontium concentrations.

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ and elemental ratios (Rb/Sr, Ca/Sr, Mg/Sr, K/Sr, Na/Sr) were used to confirm the statistical discrimination between pond sediment sources (Fig. S2). Pond sediment samples with low $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, Rb/Sr, Mg/Sr, K/Sr, Na/Sr values and high Ca/Sr ratios correspond to the sediment discriminated as southern/carbonate pond sediment samples. They are enriched in Ca and Sr, suggesting a carbonate origin. On the contrary, pond sediment samples with high $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$, Rb/Sr, Mg/Sr, K/Sr, Na/Sr values and low Ca/Sr ratios correspond to sediment discriminated as northern/non-carbonate pond sediment samples. They are depleted in Ca and Sr, but enriched in Rb, which suggests a more siliceous origin. The remaining pond sediment samples are well scattered between these southern/carbonate and northern/non-carbonate pond sediment samples. Accordingly, these observations are consistent with the statistical analysis performed in the main text of the manuscript and indicate that pond sediment originate from a mix between two different lithological sources. The Mann-Whitney U-test confirmed the ability of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and Sr concentrations to discriminate between the southern/carbonate and northern/non-carbonate sediment sources (MW p=0.001). Furthermore, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ signatures from core sediment samples were comprised in the range of values

measured in pond sediment samples. Therefore, southern/carbonate and northern/non-carbonate pond sediment samples will be used as sediment sources for the core in mixing models.

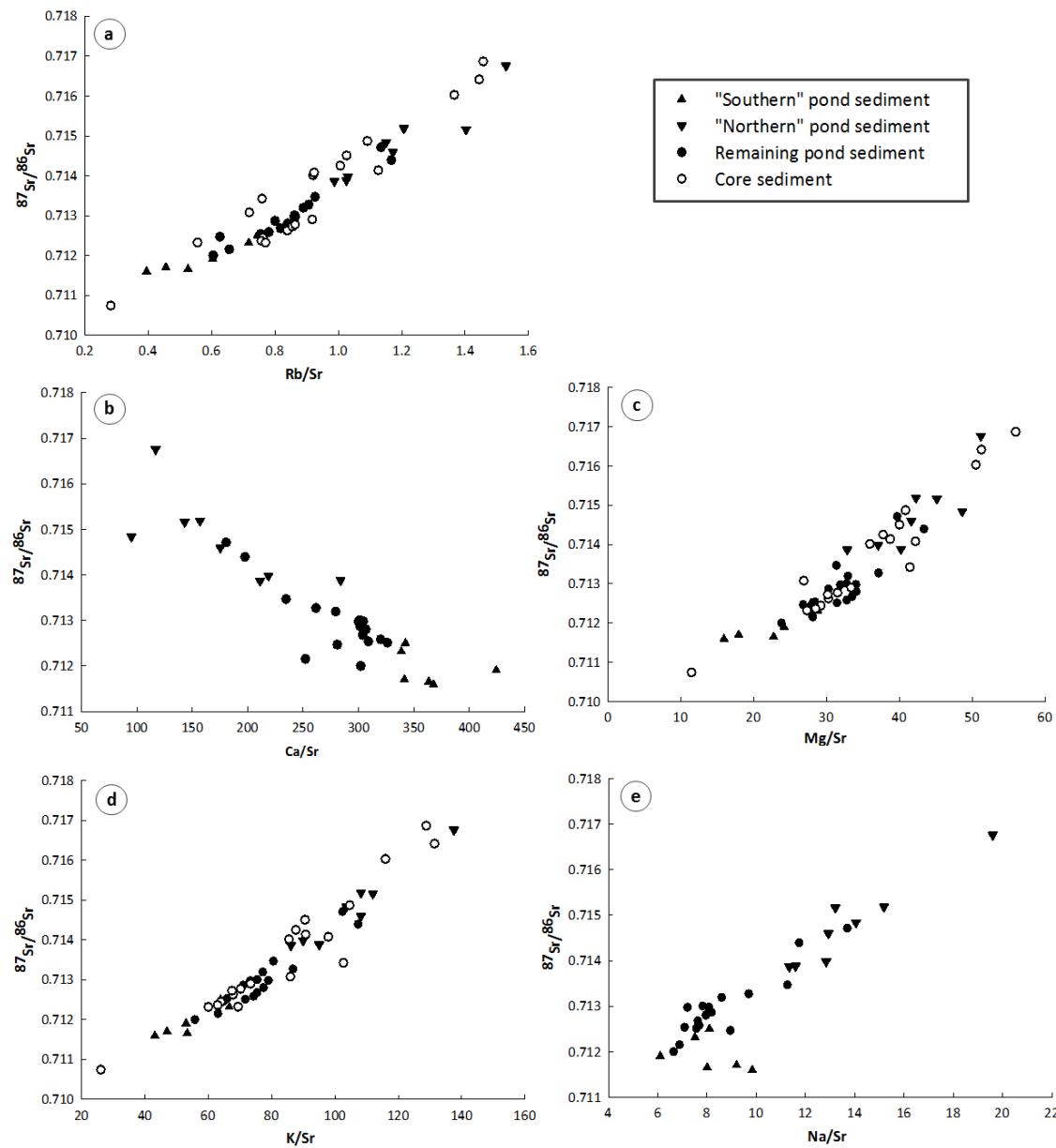


Figure C3. Scatter plot of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs Rb/Sr (a), Ca/Sr (b), Mg/Sr (c), K/Sr (d) and Na/Sr (e).

Table C1. Semi-quantitative XRD analyses in core sediment (n=4).

Sample	Calcite (%)	Quartz (%)	Other minerals (%)
CO 09-11cm	32	27	41
CO 59-61cm	11	45	44
CO 83-85cm	10	34	56
CO 95-97cm	19	60	21

SEM analysis

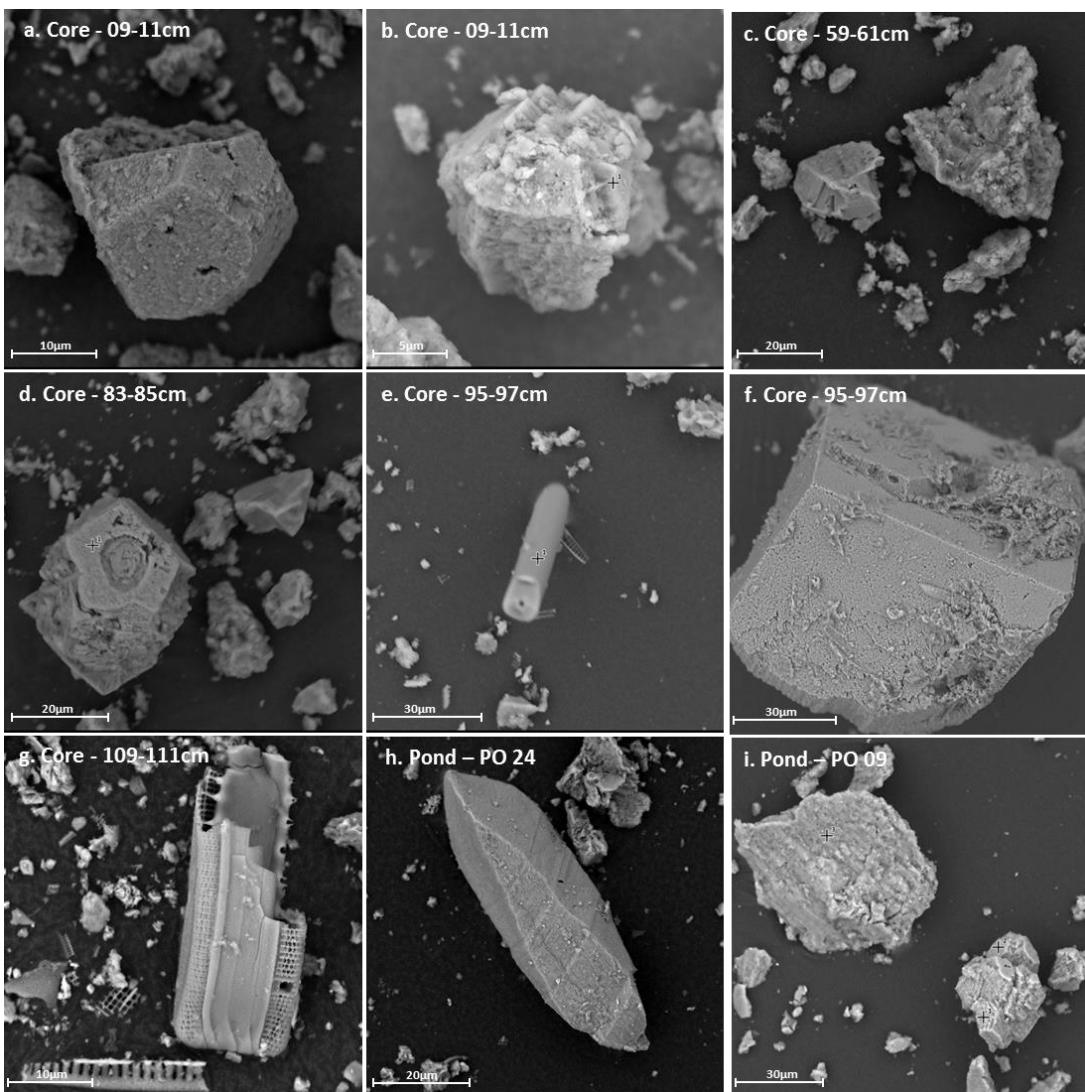


Figure C4. SEM images of core (a-g) and pond sediment (h-i) in the Louroux pond.

Supplementary data (radionuclides activities, elemental concentrations and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios)**Table C2.** ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}) and thorium concentrations (mg kg^{-1}) in channel bank (CB) and soil (SO) samples.

Sample	^{137}Cs	2σ	Th	2σ
CB 01	2.1	0.1	10.9	0.1
CB 02	2.5	0.2	10.5	0.1
CB 03	1.0	0.2	11.7	0.1
CB 04	0.5	0.1	12.8	0.1
CB 05	0.0	0.3	11.4	0.1
CB 06	1.5	0.1	2.5	0.1
CB 07	0.2	0.1	9.1	0.1
CB 08	1.4	0.2	10.8	0.1
CB 09	0.0	0.3	11.6	0.1
CB 10	0.4	0.1	11.9	0.1
CB 11	0.6	0.1	10.3	0.1
CB 12	2.8	0.2	10.9	0.1
CB 13	3.0	0.2	12.6	0.1
CB 14	2.7	0.2	11.6	0.1
CB 15	2.2	0.2	11.8	0.1
CB 16	1.0	0.2	7.5	0.1
CB 17	1.1	0.2	9.9	0.1
SO 01	3.1	0.2	9.9	0.1
SO 02	3.3	0.2	8.6	0.1
SO 03	5.7	0.2	12.9	0.1
SO 04	2.4	0.1	7.3	0.1
SO 05	2.7	0.1	10.8	0.1
SO 06	1.4	0.1	12.7	0.1
SO 07	2.7	0.1	10.0	0.1
SO 08	2.3	0.2	9.5	0.1
SO 09	6.1	0.1	12.4	0.1
SO 10	2.4	0.1	8.9	0.1
SO 11	2.0	0.2	13.5	0.1
SO 12	5.2	0.2	9.6	0.1
SO 13	4.7	0.2	11.5	0.1
SO 14	2.5	0.2	8.6	0.1
SO 15	3.3	0.2	11.9	0.1
SO 16	3.7	0.2	8.7	0.1
SO 17	2.9	0.2	9.4	0.1
SO 18	3.9	0.2	9.0	0.1
SO 19	8.0	0.3	12.6	0.1
SO 20	1.3	0.2	9.7	0.1
SO 21	3.5	0.2	9.3	0.1
SO 22	3.0	0.2	11.4	0.1
SO 23	3.0	0.2	10.5	0.1
SO 24	1.0	0.1	11.4	0.1
SO 25	2.7	0.2	10.6	0.1
SO 26	3.0	0.2	10.9	0.1
SO 27	3.7	0.2	10.0	0.1
SO 28	3.6	0.2	12.9	0.1
SO 29	2.3	0.2	10.4	0.1
SO 30	2.8	0.2	10.8	0.1
SO 31	4.7	0.3	10.5	0.1
SO 32	3.2	0.3	9.9	0.2
SO 33	4.1	0.4	10.0	0.1
SO 34	3.8	0.3	8.4	0.1
SO 35	2.7	0.3	7.8	0.1
SO 36	2.9	0.3	8.9	0.1

ANNEXE C

Table C3. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}), metal concentrations (mg kg^{-1}) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in pond sediment samples.

Sample	^{137}Cs	$\pm 2\sigma$	Th	2σ	Sr	Rb	Ca	Mg	K	Na	Zn	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$
PO 01	14.1	0.20	15.3	0.1	130	134	37040	5249	12396	1513	102	0.715162	0.000013
PO 07	10.7	0.30	14.4	0.1	103	144	14695	4636	11500	1358	95	0.715162	0.000013
PO 09	2.1	0.30	12.3	0.2	78	119	9099	3985	10712	1526	83	0.716761	0.000018
PO 10	11.1	0.20	11.3	0.1	136	134	28724	4470	11718	1544	99	0.713867	0.000013
PO 12	7.5	0.3	15.8	0.1	129	151	22606	5371	13949	1668	112	0.714598	0.000013
PO 13	6.4	0.20	7.9	0.1	56	65	5361	2744	5848	793	67	0.714839	0.000010
PO 14	4.7	0.20	11.8	0.1	104	125	16297	4393	11241	1578	97	0.715187	0.000010
PO 16	14.9	0.30	10.9	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
PO 17	19.9	0.20	14.4	0.1	205	124	62036	4892	11458	1366	106	0.711999	0.000013
PO 18	11.9	0.30	13.9	0.1	123	127	26900	4563	11066	1580	98	0.713984	0.000013
PO 19	5.3	0.3	11.1	0.1	145	134	34003	4545	11676	1634	102	0.713467	0.000013
PO 20	14.4	0.30	12	0.1	161	143	45078	5315	12452	1388	117	0.713192	0.000013
PO 21	13.9	0.40	12	0.1	154	139	40215	5711	13335	1491	120	0.713271	0.000013
PO 22	14.8	0.30	11.1	0.1	151	121	45650	4585	10759	1241	103	0.712866	0.000050
PO 24	6.9	0.30	11.1	0.1	242	95	88855	3851	10418	2379	89	0.711595	0.000021
PO 25	11.6	0.40	10.3	0.1	225	103	76936	4044	10586	2075	93	0.711703	0.000012
PO 26	7.8	0.30	10.7	0.1	224	118	81468	5098	11962	1795	103	0.711656	0.000013
PO 27	16.9	0.30	11.1	0.1	178	132	60768	4943	11341	1439	111	0.712502	0.000013
PO 28	13.1	0.40	11.6	0.1	194	139	65685	5587	12925	1458	118	0.712316	0.000035
PO 29	11.0	0.40	10.8	0.1	207	125	87738	4998	10953	1263	108	0.711904	0.000021
PO 33	19.1	0.4	16.0	0.1	167	144	50201	5466	12582	1304	124	0.713002	0.000021
PO 34	18.9	0.30	15.5	0.1	171	144	52453	5829	13248	1362	116	0.712802	0.000035
PO 36	14.8	0.20	12	0.1	171	147	49430	5827	13375	1312	115	n.d	n.d
PO 38	20.9	0.40	15.6	0.1	170	146	50897	5407	12421	1223	120	0.712973	0.000013
PO 41	16.4	0.3	11.6	0.1	169	145	51324	5744	13328	1363	117	0.712980	0.000021
PO 42	1.2	0.10	2.8	0.1	44	21	11515	731	2605	366	22	0.712325	0.000013
PO 43	14.1	0.40	11.7	0.1	167	126	51695	4759	11052	1187	114	0.712534	0.000014
PO 44	11.5	0.20	10.6	0.1	171	138	54392	5212	12007	1195	119	n.d	n.d
PO 46	18.6	0.20	15.3	0.1	166	142	51519	5808	13174	1334	117	n.d	n.d
PO 47	2.3	0.20	12.2	0.1	126	147	24933	5474	13543	1482	111	0.714391	0.000021
PO 48	13.8	0.40	11.6	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
PO 49	22.1	0.50	11.7	0.1	113	128	20402	4486	11567	1548	111	0.714711	0.000021
PO 50	23.1	0.50	11.5	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
PO 52	13.5	0.4	12.0	0.1	172	140	52189	5757	12957	1311	117	0.712678	0.000035
PO 56	15.9	0.40	15	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
PO 57	12.1	0.30	14.8	0.1	251	165	63363	7067	15853	1732	108	0.712151	0.000020
PO 61	8.0	0.20	13.1	0.1	123	77	34491	3290	7966	1099	71	0.712466	0.000021
PO 62	12.6	0.20	15.4	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
PO 67	3.6	0.20	7.5	0.1	105	64	48754	3090	6729	845	59	n.d	n.d
PO 70	13.9	0.30	15.6	0.1	168	131	53626	5492	12446	1288	115	0.712584	0.000021
PO 71	17.0	0.30	15.3	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
PO 73	16.8	0.30	14.8	0.1	175	133	57136	5513	12565	1328	113	0.712509	0.000021

Table C4. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}), metal concentrations (mg kg^{-1}) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in core sediment samples.

Sample	^{137}Cs	2σ	Th	2σ	Sr	Rb	Ca	Mg	K	Na	Zn	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$
CO 2-3cm	11.3	0.6	12.1	0.2	184	140	61263	5390	11806	1477	96	0.712444	0.000022
CO 5-6cm	10.9	0.7	12.0	0.3	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 9-10cm	11.9	0.7	13.1	0.3	187	142	60711	5339	11797	1492	100	0.712364	0.000022
CO 12-13cm	14.8	0.6	12.9	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 15-16cm	16.3	0.6	12.7	0.2	168	154	52624	5606	12324	1498	102	0.712900	0.000015
CO 18-19cm	18.0	0.7	12.5	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 21-23cm	18.0	0.7	13.2	0.2	180	151	60354	5456	12225	1540	102	0.712624	0.000015
CO 23-24cm	21.2	0.7	12.5	0.2	180	153	59930	5419	12116	1503	101	0.712723	0.000011
CO 26-27cm	24.8	0.7	11.7	0.2	173	149	57242	5446	12133	1527	95	0.712771	0.000011
CO 28-29cm	33.7	0.8	11.0	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 29-31cm	44.2	0.9	11.9	0.2	190	146	67605	5216	11385	1463	96	0.712318	0.000010
CO 31-33cm	9.7	0.5	13.0	0.2	140	158	49675	5443	12746	1931	86	0.714132	0.000010
CO 33-34cm	0.0	0.8	14.4	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 35-37cm	0.0	0.6	14.2	0.2	109	149	36897	5515	12660	2120	73	0.716028	0.000009
CO 39-41cm	0.0	0.8	14.1	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 41-43cm	0.9	0.3	14.9	0.	98	143	27734	5473	12594	2210	72	0.716864	0.000012
CO 45-47cm	0.0	0.5	14.1	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 47-49cm	0.0	0.6	13.9	0.2	98	141	32275	5002	12824	2665	70	0.716415	0.000013
CO 50-52cm	1.6	0.3	12.4	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 53-55cm	8.1	0.5	12.4	0.2	117	120	40927	4698	10633	1886	64	0.714503	0.000009
CO 56-58cm	14.4	0.7	12.5	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 59-61cm	7.2	0.5	13.5	0.2	132	132	51015	4973	11544	1896	65	0.714249	0.000014
CO 62-64cm	7.0	0.4	12.1	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 65-67cm	4.8	0.4	13.1	0.2	137	126	61095	4938	11741	2120	61	0.714011	0.000012
CO 68-70cm	5.5	0.4	12.0	0.2	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 71-73cm	7.2	0.3	13.0	0.1	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d	n.d
CO 77-79cm	0.0	0.5	13.8	0.2	114	125	52624	4661	11951	2483	65	0.714868	0.000014
CO 83-85cm	0.0	0.7	13.3	0.2	170	129	60557	7049	17460	2852	66	0.713423	0.000013
CO 89-91cm	0.0	0.8	10.9	0.2	163	117	63053	4390	14036	2909	61	0.713076	0.000012
CO 95-97cm	0.0	0.9	11.3	0.3	206	114	105272	5617	14287	2876	56	0.712320	0.000013
CO 101-103cm	0.0	0.6	11.6	0.2	114	105	42044	4815	11168	1879	72	0.714075	0.000013
CO 109-111cm	2.9	0.5	9.6	0.2	322	90	144826	3693	8377	1445	47	0.710739	0.000012

ANNEXE C

Table C5. Selective extraction - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, calcium and strontium concentrations (mg kg^{-1}) in the F1 fraction of triplicate core sediment samples.

Sample	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$	Ca	Sr
CO 9-10cm (1)	0.709391	1.47E-05	50404	125
CO 9-10cm (2)	0.709389	1.47E-05	50099	125
CO 9-10cm (3)	0.709395	1.47E-05	53663	131
CO 23-24cm (1)	0.709393	1.47E-05	53878	125
CO 23-24cm (2)	0.709401	1.47E-05	50499	119
CO 23-24cm (3)	0.709347	1.47E-05	51741	123
CO 29-31cm (1)	0.709395	1.41E-05	62834	143
CO 29-31cm (2)	0.709395	1.41E-05	57591	130
CO 29-31cm (3)	0.709393	1.15E-05	62520	140
CO 41-43cm (1)	0.709388	1.47E-05	25859	43
CO 41-43cm (2)	0.709378	1.47E-05	24754	41
CO 41-43cm (3)	0.709368	1.47E-05	25620	43
CO 59-61cm (1)	0.709393	1.47E-05	44063	79
CO 59-61cm (2)	0.709379	1.43E-05	42247	75
CO 59-61cm (3)	0.709359	1.43E-05	43010	78
CO 83-85cm (1)	0.709343	1.43E-05	51102	112
CO 83-85cm (2)	0.709348	1.43E-05	47719	103
CO 83-85cm (3)	0.709334	1.43E-05	47192	103
CO 95-97cm (1)	0.709222	1.41E-05	66972	146
CO 95-97cm (2)	0.709210	1.41E-05	69049	150
CO 95-97cm (3)	0.709216	1.41E-05	70905	156
CO 109-111cm (1)	0.709228	1.20E-05	89614	182
CO 109-111cm (2)	0.709237	1.25E-05	89057	180
CO 109-111cm (3)	0.709244	1.02E-05	88587	180

Table C6. Metal concentrations (mg kg^{-1}) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in shelly sand. carbonate rocks and fertilizers samples.

Sample	Th	Sr	Rb	Ca	Mg	K	Na	Zn	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$
Shelly sand	n.d	344	20.0	65358	669	3784	646	3.6	0.709538	0.00001
CA 01	n.d	195	0.7	411776	4903	886	143	4.7	0.708706	0.00002
CA 02	n.d	176	0.5	380580	4411	1854	185	4.0	0.708716	0.00002
CA 03	n.d	195	n.d	403733	n.d	n.d	120	n.d	0.708789	0.00001
CA 04	n.d	404	1.3	380590	5168	1064	718	1.4	0.708708	0.00001
CA 05	n.d	485	1.1	528816	6378	1113	291	1.9	0.708698	0.00002
CA 06	n.d	353	n.d	379283	n.d	n.d	121	n.d	0.708743	0.00003

Sample	Th	Sr	Rb	Ca	Mg	K	Na	Zn	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	$\pm 2\sigma$
Fertilizer - N (33.5)	0.3	0.4	0.9	<	<	<	2388	1.1	0.716224	0.000241
Fertilizer - N.P.K (15.15.15)	0.5	65	27	16887	4631	110575	3358	136	0.707877	0.002812
Fertilizer - P.K (25.25)	5.6	504	19	92102	5650	138238	13912	184	0.709178	0.000014

ANNEXE D – Chapitre 5 – Supplementary Material *Land Degradation and Development*

Table D1. Spearman's rank correlation coefficients for source samples representative of each soil type (**Ferralsol**, **Nisitol**, **Acrisol**, **Luvisol** and **Leptosol**).

Ferralsols	K	Ti	Co	As	Ba	Pb	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
K	1						
Ti	0.46046446	1					
Co	0.23042223	0.60970983	1				
As	-0.37248298	-0.21682674	-0.65485135	1			
Ba	0.55357372	0.25403696	0.436166	-0.66516043	1		
Pb	-0.13693313	-0.38464786	-0.64104351	0.42433932	-0.05816551	1	
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	0.17700046	-0.15916229	-0.46781606	0.36167792	-0.10157528	0.39969887	1

Nitisols	K	Ti	Co	As	Ba	Pb	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
K	1						
Ti	-0.58760107	1					
Co	0.53568819	-0.19604886	1				
As	-0.25275436	0.18601591	-0.28683889	1			
Ba	0.56861881	-0.2833845	0.55040828	-0.61790399	1		
Pb	-0.47779066	0.54449696	0.24652468	0.21819838	-0.02406728	1	
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	0.704205	-0.38984032	0.45330063	0.01397481	0.52826072	-0.07310257	1

Acrisols	K	Ti	Co	As	Ba	Pb	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
K	1						
Ti	0.3238053	1					
Co	0.60983116	0.47663107	1				
As	-0.49005884	-0.02601012	-0.17169268	1			
Ba	0.80532833	0.56072967	0.46238026	-0.28865044	1		
Pb	0.12509132	0.39523958	-0.30922943	-0.07810637	0.51689563	1	
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	-0.27919387	0.39511432	-0.12596891	-0.09164349	0.09686727	0.54410054	1

Luvisols	K	Ti	Co	As	Ba	Pb	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
K	1						
Ti	-0.00191618	1					
Co	-0.1954705	0.77660815	1				
As	-0.19067955	-0.13020778	-0.40674062	1			
Ba	0.69303396	0.0224189	0.07090429	-0.43558378	1		
Pb	0.02679764	-0.48469832	-0.73955997	0.70330701	-0.3109974	1	
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	0.46428589	-0.47159446	-0.65386307	0.386816	-0.00101891	0.56247673	1

Leptosols	K	Ti	Co	As	Ba	Pb	$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$
K	1						
Ti	-0.74620315	1					
Co	-0.64767053	0.84579711	1				
As	-0.12606362	0.56771096	0.66533466	1			
Ba	0.21835277	-0.53509411	-0.4557343	-0.77994581	1		
Pb	-0.4883156	0.6768875	0.86572527	0.760661	-0.56602306	1	
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	-0.59431474	0.69793015	0.89968199	0.68786929	-0.53685936	0.94220152	1

Table D2. Kruskal-Wallis *H*-test outputs for outlet sediment samples.

Outlet sediment - Kruskal-Wallis <i>H</i> -test	
Variables	p-value
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ****	<0.0001
Mg *****	<0.0001
Al	0.353 (not discriminant)
K *****	<0.0001
Ca *****	0.000
Ti *****	<0.0001
V *****	<0.0001
Cr ***	0.001
Mn *****	<0.0001
Fe *****	0.000
Co *****	<0.0001
Ni *****	<0.0001
Cu *****	<0.0001
Zn *****	<0.0001
As *****	0.000
Rb	0.116 (not discriminant)
Sr *****	0.000
Mo	0.000
Ag **	0.025
Cd	0.430 (not discriminant)
Sb *****	0.000
Ba *****	<0.0001
Tl ***	0.010
Pb *****	<0.0001

(* p<0.1, ** p<0.05, *** p<0.01, **** p<0.001, ***** p<0.0001, elements in bold provided significant discrimination between sources)

Table D3. Discriminant Functional Analysis outputs for outlet sediment samples.

Outlet sediment - DFA		
Variables	Wilks' Lambda	p-value
Co	0.463	< 0.0001
K	0.312	< 0.0001
Ti	0.242	< 0.0001
Pb	0.205	< 0.0001
$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$	0.176	< 0.0001
As	0.150	< 0.0001
Ba	0.129	< 0.0001

ANNEXE D

Table D4. Sediment yields (Mg) and mean daily fluxes (Mg d⁻¹) exported during each monitored period.

Sample	Monitored period	Sediment contribution (Mg)				
		Ferralsols	Nitisols	Acrisols	Leptosols	Luvisols
S01	25/03/2012 - 10/08/2012	451 ± 17	792 ± 13	10838 ± 299	2634 ± 389	2400 ± 555
S02	10/08/2012 - 07/02/2012	3197 ± 125	2870 ± 123	30862 ± 2276	26394 ± 3644	19696 ± 4488
S03	07/02/2013 - 28/04/2013	1455 ± 577	2490 ± 3927	14649 ± 1727	15902 ± 2070	7669 ± 7167
S04	28/04/2013 - 08/07/2013	955 ± 18	1232 ± 18	15603 ± 524	10897 ± 443	8068 ± 946
S05	08/07/2013 - 19/09/2013	4402 ± 141	5513 ± 4609	31723 ± 4458	36106 ± 7860	16334 ± 4362
S06	19/09/2013 - 17/11/2013	1615 ± 1103	15012 ± 2296	6051 ± 2726	19513 ± 2425	12835 ± 2627
S07	17/11/2013 - 12/02/2014	468 ± 16	1021 ± 149	4007 ± 483	6492 ± 525	3451 ± 401

Sample	Monitored period	Sediment contribution (Mg d ⁻¹)				
		Ferralsols	Nitisols	Acrisols	Leptosols	Luvisols
S01	25/03/2012 - 10/08/2012	3 ± 1	6 ± 1	79 ± 2	19 ± 3	17 ± 4
S02	10/08/2012 - 07/02/2012	18 ± 1	16 ± 1	171 ± 13	146 ± 20	109 ± 25
S03	07/02/2013 - 28/04/2013	18 ± 7	31 ± 49	183 ± 22	199 ± 26	96 ± 90
S04	28/04/2013 - 08/07/2013	14 ± 1	17 ± 1	220 ± 7	154 ± 6	114 ± 22
S05	08/07/2013 - 19/09/2013	60 ± 2	76 ± 63	435 ± 61	495 ± 108	224 ± 60
S06	19/09/2013 - 17/11/2013	27 ± 19	254 ± 39	103 ± 46	331 ± 41	218 ± 45
S07	17/11/2013 - 12/02/2014	5 ± 1	12 ± 2	46 ± 6	75 ±	40 ± 5

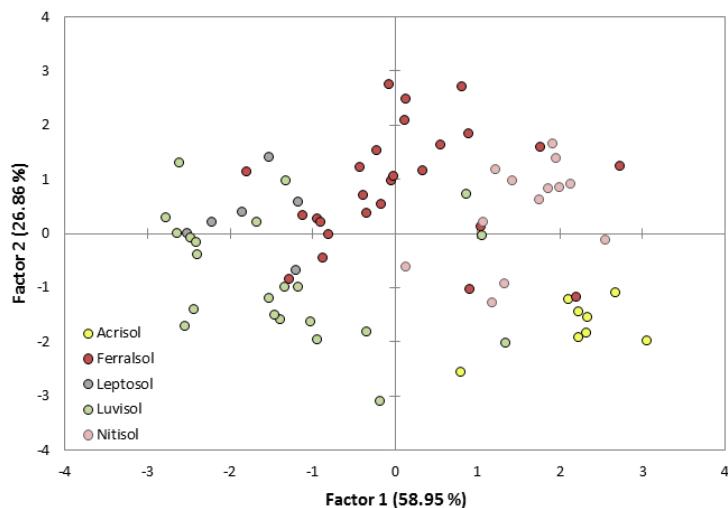


Figure D1. Scatter plot of the first and second discriminant factors from the stepwise discriminant function analysis (DFA) that selected the elements providing an optimal source discrimination.

LISTE DES FIGURES

Introduction générale

Figure 1. Fonctions essentielles des sols et principales menaces qui pèsent sur cette ressource (FAO).	10
.....
Figure 2. Organisation du manuscrit.	17

Chapitre 1

Figure 1.1. Etat fragmentaire des sols après travail (a), effet « <i>splash</i> » avec mise en mouvement des particules sous l'action des gouttes de pluie (b), formation d'une croûte sédimentaire (c), ruissellement en nappe et érosion diffuse (d) (a, b, c, d'après le mémoire d'HDR d'O. Evrard (2014) ; d, photographie A. Foucher).....	22
Figure 1.2. Transport des particules par suspension, saltation et charriage (MOOC « Des rivières et des Hommes »).....	25
Figure 1.3. Diagramme de Hjulström (d'après theses.univ-lyon2.fr).....	26
Figure 1.4. Carte de l'aléa d'érosion des sols en France estimé à l'aide du modèle MESALES (Modèle d'évaluation spatiale de l'aléa d'érosion des sols) développé par l'INRA (GIS SOL, 2000).	27
Figure 1.5. Carte mondiale contemporaine de la dégradation des sols induite par l'homme (d'après GLASOD) et localisation des deux sites d'étude sélectionnés (France, Brésil).....	29
Figure 1.6. Erosion de la surface des sols (a), des berges (b) et transport de particules par le réseau de drainage (c) en contexte de plaine agricoles (Photographies, A. Foucher).....	33
Figure 1.7. Diagramme illustrant le schéma de détérioration des sols brésiliens (d'après FAO, les cultures de couverture au Brésil, 2001).	35
Figure 1.8. Sources potentielles de particules : sols cultivés - monoculture intensive du soja (a) et culture traditionnelle du tabac (b), berges (c) et routes non-asphaltées (d) (Photographies a et b, M. Le Gall ; c et d, T. Tiecher).....	38
Figure 1.9. Augmentation du nombre de publications utilisant la technique du <i>fingerprinting</i> pour le traçage des particules depuis le début des années 1970 d'après Walling et al. (2013).	40
Figure 1.10. Schéma global des étapes requises pour le traçage des sédiments (Haddadchi et al., 2013).	41
Figure 1.11. Propriétés fondamentales des matériaux terrestres utilisées pour la datation et le traçage des sources de sédiments (Koiter et al. (2013), d'après Foster and Lees (2000)).	43

Liste des figures

Figure 1.12. Série de Goldich (1938), établissement de l'ordre de résistance des minéraux à l'altération.....	48
Figure 1.13. Répartition mondiale des retombées radioactives selon la latitude (Source : IRSN).	52
Figure 1.14. Schéma présentant l'origine du ^{137}Cs , du ^7Be et du ^{210}Pb	54
Figure 1.15. Redistribution verticale des activités en ^{137}Cs , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ et ^7Be dans un sol non perturbé (A) et dans un sol labouré (B) au Maroc (incertitudes, 2σ) (d'après Mabit et al., 2008).....	55

Chapitre 2

Figure 2.1. Localisation des deux sites d'étude en France et au Brésil.....	69
Figure 2.2. Localisation du bassin versant du Louroux en France et dans le bassin de Loire Bretagne.	71
Figure 2.3. Topographie du bassin versant du Louroux issue de données Lidar (résolution – 2 m) (A. Foucher).	72
Figure 2.4. Diagramme ombrothermique de la ville de Tours couvrant la période 1982-2012 (d'après http://fr.climate-data.org/).....	72
Figure 2.5. Carte du réseau hydrographique et localisation des sorties de drain sur le bassin versant du Louroux.....	73
Figure 2.6. Vue de l'étang du Louroux lors de sa vidange en 2013 (Photographie, A. Foucher).	74
Figure 2.7. Carte géologique synthétique du bassin du Louroux (BRGM).	75
Figure 2.8. Paysage caractéristique du bassin versant du Louroux, avec au premier plan un fossé érodé dans lequel se jette un collecteur de drain et, au second plan, une parcelle cultivée traversée par une dérayure connectée au fossé (Photographie, A. Foucher).	76
Figure 2.9. Frise chronologique de l'histoire récente et des aménagements du bassin versant et de l'étang du Louroux (d'après la thèse d'A. Foucher).	77
Figure 2.10. Photographies d'un champ directement connecté à l'hydrosystème par la présence d'une dérayure (a) et de berges impactées par l'érosion (b) (Photographies, A. Foucher).....	78
Figure 2.11. Photographies de trois stations d'échantillonnage : station avec canal Venturi (Les Masniers) (a), station installée sur un pont (Grand Braye) (b) et station installée sur un collecteur de drain (Brépinière) (c) (Photographies, A. Foucher).	79
Figure 2.12. Exemple de hyéogramme et d'hydrogramme obtenus à la station des Masniers (MS) et occurrence des cinq crues échantillonées.	79

Liste des figures

Figure 2.13. Vue de l'étang lors de la dernière vidange opérée entre décembre 2012 et novembre 2013 et au cours de laquelle la carotte sédimentaire et les sédiments déposés dans l'étang ont été collectés (Photographies, A. Foucher (a) ; Studio Pierre © (b)).	79
Figure 2.14. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin versant du Louroux.	80
Figure 2.15. Localisation du bassin versant de Guaporé au Brésil et dans l'État de Rio Grande do Sul.	82
Figure 2.16. Topographie (a) et usage des sols (b) au sein du bassin versant de Guaporé.	83
Figure 2.17. Diagramme ombrothermique de la ville de Muçum couvrant la période 1982-2012 (d'après http://fr.climate-data.org/).....	84
Figure 2.18. Cartes géologique (a) et pédologique (b) du bassin de Guaporé (UFSM).	85
Figure 2.19. Profils des cinq types de sols rencontrés sur le bassin de Guaporé : Ferralsol, Nitisol, Acrisol, Luvisol et Leptosol (Gardi et al., 2015).	86
Figure 2.20. Paysage caractéristique du bassin de Guaporé (a), forêt primaire (b), culture intensive du soja en amont du bassin sur pente douce (c) et culture du tabac dans les parties plus pentues du bassin (d).	87
Figure 2.21. Hyéogramme et hydrogramme sur la période étudiée (25 mars 2012 au 12 février 2014). Les différentes périodes et durées de collecte de sédiments correspondantes sont indiquées par des doubles flèches.	88
Figure 2.22. Vue en coupe d'un préleur de particules en suspension (Phillips et al., 2000)....	88
Figure 2.23. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin versant de Guaporé.....	90
Figure 2.24. Schéma de principe de l'ICP-MS (d'après http://iramis.cea.fr)	94
Figure 2.25. Schéma de principe du MC-ICP-MS (d'après http://lmv.univ-bpclermont.fr/wp-content/uploads/2015/02/mc-icpmss-neptune1.png)	99
Figure 2.26. Valeurs et incertitude (2σ) des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesurés au cours de douze séries d'analyses pour le standard de référence (NBS 987). La valeur de référence du standard NBS 987 ainsi que son incertitude (2σ) sont représentées par un trait noir horizontal et des zones grisées.....	100
Figure 2.27. Valeurs et incertitude (2σ) des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ mesurés au cours de neuf séries d'analyses pour deux standards des systèmes carbonatés : Durango apatite (a) et JCt-1 (b). La valeur de référence de chaque standard est représentée par un trait noir horizontal.....	100
Figure 2.28. Schéma de la chaîne de comptage par spectrométrie gamma (Tessier, 2003).	103

Chapitre 3

Figure 3.1. Map of the Louroux catchment in the Loire River basin (France) (A) along with the lithological map of the area (B) and the locations of soil/limestone sampling, river monitoring stations equipped with automatic samplers (in white) and tile drain outlet monitoring stations (in grey) (CO: Conteraye, BE: Beaulieu, PI: Picarderie, GB: Grand Bray, MS: Masniers, MZ: Mazère, BR: Brépinière) (C). For the soil samples, SO refers to surface samples and BE refers to channel bank samples.....	116
Figure 3.2. Box-plots of Sr isotopic ratio variations in channel bank and soil samples.	121
Figure 3.3. Location and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios of soil and channel bank samples. For the soil samples, SO refers to surface samples and BE refers to channel bank samples.....	122
Figure 3.4. Discharge and suspended sediment concentrations for the three flood events at two monitoring stations, BE and GB located in the silicate and carbonate areas and flowing to the Louroux pond. Samples collected for strontium isotopic measurements are note by the red triangle.....	123
Figure 3.5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs K/Sr (a), Ca/Sr (b), 1/Sr (c), Rb/Sr (d), Sr/Na (e) and Mg/Sr (f) for suspended sediment,<2 mm, <63 μm and <2 μm fraction of soil samples. Red arrows indicate the two soil additional soil samples used to define the carbonate end-member using scatter plots.....	126
Figure 3.6. Carbonate and silicate soil contributions (%) to suspended sediment using $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the <2 μm fraction for the two first flood events (a and b) and in the <2 mm fraction for the third flood event (c).	128
Figure 3.7. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs Rb/Sr in carbonate rocks, suspended sediment, carbonate and silicate soil samples (bulk, <63 μm and <2 μm fractions). 1,2,3: suspended sediment sampling campaign number.	130
Figure 3.8. Evolution of water discharge ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$) (measured at Masniers (MS) station) and precipitation (mm) during the December 2013 to February 2014 (a) and the January 2016 (b) periods. The five monitored flood events (1, 2, 3, 4 and 5) are shown in grey.	140
Figure 3.9. Water discharge and suspended sediment concentrations for the five monitored flood events at the Masniers (MS) station.	140
Figure 3.10. Evolution of the fraction of recently eroded sediment (%) during the five monitored floods.....	143

Liste des figures

Figure 3.11. Variations of the fraction of recently eroded particles (%) during the two successive flood events of January, 2016 presented with the hydrographs (not available for the PI and BR stations). 144

Chapitre 4

Figure 4.1. Map of the Louroux catchment in the Loire River basin (France) along with simplified lithological map of the area (Le Gall et al., 2016) (a) and the locations of surface and subsurface source (b), pond and core sediment (c) sample locations. N and S correspond to the northern and southern inlets of the main tributaries. 161

Figure 4.2. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}) in channel bank, soil, pond and core sediment samples before (a) and after (b) the Th particle size correction (bold horizontal line = median, box extent = 25th percentiles, error bars = non-outlier range, black dots = outliers). 167

Figure 4.3. Spatial (a) and temporal (b) variations of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in pond and core sediment samples. N and S correspond to the northern and southern inlets of the main tributaries, respectively (a). 169

Figure 4.4. Strontium (a) and calcium (b) partitioning in core sediment between two defined fractions F1 (exchangeable and carbonate fraction) and F2 (residual fraction) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios measured in the fraction F1. 171

Figure 4.5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios variations in carbonate rocks, shelly sand, fertilizers and the exchangeable/carbonate fraction of core sediment samples. 171

Figure 4.6. Contributions of the surface and subsurface sources (a) and of the carbonate (southern) and non-carbonate (northern) sources (b) to the surface sediment collected in the Louroux pond. N and S correspond to the northern and southern inlets of the main tributaries. 173

Figure 4.7. Evolution of the lithological (a), surface and subsurface (b) sediment sources contributions and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios along the sediment core (error bars reflect the modeling standard deviation for each sediment sample). 175

Liste des figures

Chapitre 5

Figure 5.1 Maps of the Guaporé catchment in the Rio Grande do Sul State (dark grey) in Brazil (light grey) (a), land use (b), and soil type along with the location of the time-integrated river samplers and source samples (c).....	192
Figure 5.2. Box plots of the concentrations of the discriminant elements in the different soil types and in outlet sediment samples (bold horizontal line = median, box extent = 25 th percentiles, error bars = non-outlier range, black dots = outliers).	196
Figure 5.3. Soil type contributions to outlet sediment between 2012 and 2014 with river discharge (blue) and rainfall (black) lines.....	198
Figure 5.4. Evolution of the weighted soil contributions to the total sediment yields (a) and to mean daily fluxes (b) deduced from the analysis of each outlet sediment sample. The weighted contributions (c) and modelling results run for all sediment samples (d) obtained for the entire set of sediment samples are also presented in pie charts.....	199
Figure 5.5. Variations du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ dans les différents types de sols et roches (d'après Gilg et al, 2002 et Innocent et al., 1997) du bassin de Guaporé.	204

Chapitre 6

Figure 6.1. Importance des routes dans comme source de particules. (a) Route endommagée par le passage de machines agricoles, (b) tassemement d'une route et (c) mise en évidence du ruissellement le long d'une route (Photographies, T. Tiecher).....	220
Figure 6.2. Activités en ^{137}Cs et en $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ au sein d'échantillons de berges (gris), de terres cultivées (jaune) et de routes non-asphaltées (noir) dans le bassin d'Arvorezinha.	221
Figure 6.3. Carte géologique du bassin de Guaporé, localisation de la trappe à sédiments et des sources potentielles de particules collectées (Tiecher, 2015).	222
Figure 6.4. Contributions des Ferralsols et des Nitisols aux sédiments collectés en amont du bassin de Guaporé.....	225

Liste des figures

ANNEXES

Figure C1. Detailed lithological map of the Louroux catchment.....	240
Figure C2. Dendrogram of the hierarchical cluster analysis based on $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and strontium concentrations.....	241
Figure C3. Scatter plot of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ vs Rb/Sr (a), Ca/Sr (b), Mg/Sr (c), K/Sr (d) and Na/Sr (e).....	242
Figure C4. SEM images of core (a-g) and pond sediment (h-i) in the Louroux pond.	243
Figure D1. Scatter plot of the first and second discriminant factors from the stepwise discriminant function analysis (DFA) that selected the elements providing an optimal source discrimination.	250

Liste des tableaux

LISTE DES TABLEAUX

Chapitre 1

Table 1.1. Exemples de variations des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des concentrations en strontium dans l'environnement (dissous, particulaire, précipitations, eau de mer, engrais).	50
Table 1.2. Exemples de variations des rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des concentrations en strontium dans différents types de roches.....	51

Chapitre 2

Table 2.1. Principales caractéristiques des bassins du Louroux (France) et de Guaporé (Brésil).	70
Table 2.2. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin du Louroux et des analyses réalisées.	81
Table 2.3. Récapitulatif des échantillons collectés sur le bassin de Guaporé et des analyses réalisées.	90

Chapitre 3

Table 3.1. Mean and Standard Deviation for Sr isotopic signatures, Sr concentrations (mg kg^{-1}) for the different end-members.....	127
---	-----

Chapitre 5

Table 5.1. Outlet sediment sample characteristics for each monitored period (sediment yield, mean daily sediment load, water discharge and rainfall) and distribution modelling results for each monitored period and soil type.....	197
Table 5.2. Sediment yields estimated in various catchments of South America.	201

Chapitre 6

Tableau 6.1. Résultats du test de Kruskal-Wallis pour la discrimination des sources de particules selon l'usage des sols dans le bassin de Guaporé.....	219
---	-----

Liste des tableaux

Tableau 6.2. Comparaison des résultats : avec les éléments discriminants des usages et types de sols incorporés dans les modèles de mélange /avec les éléments uniquement discriminants des types de sols incorporés dans les modèles de mélange..... 220

Tableau 6.3. Résultats des modèles de mélange..... 225

ANNEXES

Table A1. Summary of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, element concentrations (mg kg^{-1}) and $1/\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios in soil samples..... 232

Table A2. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, elemental concentrations (mg kg^{-1}), $1/\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios in suspended sediment collected in the rivers (Conteraye, Picarderie, Beaulieu, Masniers, Grand Bray) and at tile drain outlets (Mazère, Brépinnière) during three flood events..... 233

Table A3. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, Sr and Rb concentrations (mg kg^{-1}) in various particle size fractions of the soil samples..... 234

Table A4. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, element concentrations (mg kg^{-1}), $1/\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios in the fraction $<63 \mu\text{m}$ of eight soil samples..... 234

Table A5. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, elemental concentrations (mg kg^{-1}), $1/\text{Sr}$ and Rb/Sr ratios in the clay fraction ($<2 \mu\text{m}$) of eight soil samples..... 234

Table A6. Relative contributions of the silicate and carbonate end-members to the suspended sediment during three flood events using different modelling approaches. The model difference was estimated compared to the $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios approach..... 235

Table B1. Fallout radionuclide activities (Bq kg^{-1}), $^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratios in suspended sediment and overland flow samples, residence time of particles (days), and fraction of recently eroded sediment for 2013-2014 flood events..... 236

Table B2. Fallout radionuclide activities (Bq kg^{-1}), $^{7}\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$ ratios in suspended sediment, residence time of particles (days), and fraction of recently eroded sediment for 2016 flood events..... 237

Table B3. Mean residence time of particles and fraction of recently eroded particles for 2016 flood events..... 237

Table B4. Median fraction of recently eroded sediment and residence time of particles during the five flood events..... 238

Liste des tableaux

Table C1. Semi-quantitative XRD analyses in core sediment (n=4).....	242
Table C2. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}) and thorium concentrations (mg kg^{-1}) in channel bank (CB) and soil (SO) samples.....	244
Table C3. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}), metal concentrations (mg kg^{-1}) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in pond sediment samples.....	245
Table C4. ^{137}Cs activities (Bq kg^{-1}), metal concentrations (mg kg^{-1}) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in core sediment samples.....	246
Table C5. Selective extraction - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, calcium and strontium concentrations (mg kg^{-1}) in the F1 fraction of triplicate core sediment samples.....	247
Table C6. Metal concentrations (mg kg^{-1}) and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios in shelly sand, carbonate rocks and fertilizers samples.....	247
Table D1. Spearman's rank correlation coefficients for source samples representative of each soil type (Ferralsol, Nisitol, Acrisol, Luvisol and Leptosol).....	248
Table D2. Kruskal-Wallis H -test outputs for outlet sediment samples.....	249
Table D3. Discriminant Functional Analysis outputs for outlet sediment samples.....	249
Table D4. Sediment yields (Mg) and mean daily fluxes (Mg d^{-1}) exported during each monitored period.....	250

Titre : Traçage des sources de sédiments à l'amont des hydrosystèmes agricoles : apport de la géochimie élémentaire, du rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et des radionucléides

Mots clés : érosion des sols, traçage des sédiments, modèles de mélange

Résumé : L'érosion des sols constitue une menace majeure pour la durabilité de la production agricole. Cette étude vise à développer une méthode originale de traçage des sédiments au sein de deux bassins versants agricoles aux caractéristiques contrastées.

Différents marqueurs ont été utilisés pour tracer l'origine lithologique des particules (concentrations élémentaires, rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$), déterminer de quel compartiment des sols (surface ou profondeur) elles proviennent (^{137}Cs) et étudier leur dynamique temporelle (^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$).

Sur le bassin du Louroux (24 km², France), caractéristique des plaines agricoles du Nord-Ouest de l'Europe, les résultats ont montré un transfert accru de particules très fines (<2µm) via le réseau de drainage. Lors de l'étude de trois crues successives, les sédiments accumulés dans le chenal ont d'abord été transportés, avant l'exportation de particules directement érodées de la surface des sols. L'utilisation de modèles de mélange a montré que les particules érodées à la surface des sols contribuent majoritairement aux sédiments de l'étang situé à l'exutoire. D'autre part, les deux zones lithologiques discriminées par le rapport $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ contribuent équitablement aux particules qui se

déposent dans l'étang. Les fortes variations observées depuis les années 1950 peuvent être interprétées comme le résultat de l'aménagement du bassin. Ces résultats ont montré le potentiel de l'isotopie du strontium ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$) pour le traçage lithologique des sources de particules. La méthode a dès lors été transposée au site de Guaporé (2000 km², Brésil), un bassin agricole au climat plus érosif, à la topographie plus accentuée et aux lithologies plus contrastées. En combinant les rapports $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ et les éléments les plus discriminants des cinq types de sols dans les modèles de mélange, les résultats montrent une contribution très majoritaire des types de sol localisés en aval du bassin. Celle-ci reflète une sensibilité croissante des sols à l'érosion selon un transect amont-aval, avec un système d'agriculture intensive appliquant des techniques de conservation des sols à l'amont et de plus petites exploitations familiales qui pratiquent un labour traditionnel en aval.

Le couplage de ces traceurs améliore la compréhension de la dynamique des particules à l'échelle du bassin versant et fournit des données spatio-temporelles essentielles pour mettre en place des mesures de lutte contre l'érosion des sols. À terme, ces données pourraient être utilisées pour valider des modèles d'érosion et de transfert particulaire.

Title : Tracing sediment sources in upstream agricultural catchments: contribution of elemental geochemistry, $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratio and radionuclides measurements

Keywords : soil erosion, sediment fingerprinting, mixing models

Abstract : Soil erosion is recognized as one of the main processes of land degradation in agricultural environments. This study develops an original fingerprinting method to examine sediment source contributions in two contrasted agricultural catchments. Several properties were used to trace sediment lithological sources ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, elemental concentrations), soil surface and subsurface sources (^{137}Cs) and to quantify their temporal dynamics (^7Be , $^{210}\text{Pb}_{\text{xs}}$).

In the Louroux catchment (24 km², France), representative of drained areas of Northwestern Europe, results showed the dominant contribution of very fine particles (<2 µm) transiting through the tile drainage system to suspended sediment. Sediment accumulated in the river channel was mainly exported during the two first floods investigated in 2013 whereas the next event was characterized by the transport of sediment eroded from the cultivated soil surface. Mixing models were used, and results indicated that surface sources contributed the majority of sediment deposited in the pond, at the outlet of the catchment. The two lithological sources, discriminated using $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, contributed in similar proportions to downstream pond sediment. In contrast, significant variations were

observed since the 1950s. These changes may be related to the progressive implementation of land consolidation schemes within the catchment. Results obtained in the Louroux catchment revealed the potential of $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios to trace sediment lithological sources. The methodology was then applied to the larger and steeper Guaporé catchment (2000 km², Brazil), exposed to a more erosive climate and characterized by contrasted laterite soils. $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios and elements that discriminated the five soil types found in the catchment were incorporated in mixing models. Results showed that the major part of sediment was supplied by soils located in lower catchment parts. This result suggests the higher sensitivity of land cultivated with conventional farming practices (downstream contribution), compared to areas cultivated under conservation agriculture (upstream contribution).

Coupling several tracers ($^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ratios, elemental concentrations and radionuclides) was shown to improve the understanding of sediment sources and dynamics at the catchment scale and to provide crucial information to guide the implementation of management measures to limit soil erosion. This fingerprinting approach produced an original dataset that may be used to calibrate and validate models simulating erosion and sediment transfers.

