

IMPACT DES ANCIENS SITES MINIERES ET MÉTALLURGIQUES SUR LES ÉCOSYSTÈMES ACTUELS

SYNTHÈSE DES PRINCIPAUX RÉSULTATS

IMPACT OF PAST MINING AND METALLURGICAL ACTIVITIES ON PRESENT ECOSYSTEMS OVERVIEW OF THE MAIN RESULTS

ESTELLE CAMIZULI¹, FABRICE MONNA¹, PAUL ALIBERT², PAULINE BEIS¹, ALAIN BERMOND³,
BENJAMIN BOHARD¹, GUILLAUME DELIVET¹, CLAUDE GOURAULT¹, JEAN-PAUL GUILLAUMET¹,
GILLES HAMM¹, JÉRÔME LABANOWSKI⁴, CAROLINE LACHICHE¹, RÉMI LOSNO⁵, ADELIN PEREIRA¹,
CHRISTOPHE PETIT⁶, PAUL REVELLI⁷, RENAUD SCHEIFLER⁸, FOLKERT VAN OORT⁹

¹UMR 6298-ArTeHiS, Université de Bourgogne-CNRS-Culture, 6 boulevard Gabriel, Bat. Gabriel, 21000 Dijon.

²UMR 6282-Biogéosciences, Université de Bourgogne-CNRS, 6 boulevard Gabriel, Bat. Gabriel, 21000 Dijon.

³AgroParisTech-Laboratoire de chimie analytique, 16 rue Claude Bernard, 75231 Paris Cedex 5.

⁴UMR 7285-IC2MP, Université de Poitiers-CNRS, Bât B27, 4 rue Michel Brunet, 86073 Poitiers Cedex 9.

⁵UMR 7583-LISA Paris, Universités Paris 7-Paris 12-CNRS, 61 avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

⁶UMR 7041-ArScAn, Universités Paris 1-Paris 10-CNRS, Maison René Ginouvès, 21 allée de l'université, 92023 Nanterre Cedex.

⁷Cabinet vétérinaire, rue de la Paix, 63353 St Germain l'Herm.

⁸UMR 6249-Chrono Environnement, Univ. de Franche-Comté-CNRS, La Bouloie, 16 route de Gray, 25030 Besançon Cedex.

⁹UR 251-Pessac, INRA, Centre de Versailles-Grignon, RD 10, 78026 Versailles Cedex.

Contact : e.camizuli@wanadoo.fr

RÉSUMÉ

Le Morvan et les Cévennes sont des massifs protégés pour leurs paysages et leur biodiversité exceptionnels. Cependant ces régions ont été le lieu d'activités minières et métallurgiques dès la Protohistoire. De telles activités peuvent affecter les écosystèmes de manière durable. Il est donc important de les localiser, puis de quantifier leur impact sur la faune et la flore. Le présent travail propose une démarche pluridisciplinaire alliant archéologie, géochimie, écologie et écotoxicologie. L'application de méthodes statistiques empruntées à la prospection minière a permis de dresser des cartes de potentiel minier, afin de guider l'archéologue dans ses recherches de terrain. Des cartes de distribution spatiale des éléments traces métalliques ont été construites sur six sites (trois dans chaque parc). La biodisponibilité des éléments traces métalliques a été estimée à partir de l'étude de mulots, de truites et de mousses aquatiques, utilisées comme bioindicateurs. Une relation négative entre les indices de condition et la concentration en plomb dans les animaux, et dans certains cas une plus grande instabilité de développement a été mise en évidence, suggérant la présence d'effets délétères sur les organismes. L'impact des anciens sites miniers et métallurgiques est donc toujours décelable dans les écosystèmes actuels. Ces sites doivent être surveillés, notamment au sein des zones protégées supposées à tort exemptes de toutes contaminations anthropiques.

MOTS-CLÉS : ÉLÉMENTS TRACES MÉTALLIQUES, MINES ANCIENNES, SOL, ASYMÉTRIE FLUCTUANTE, MULOT SYLVESTRE, TRUITE FARIO.

ABSTRACT

The Morvan and the Cevennes Massifs are now protected areas because of their outstanding landscapes and biodiversity. However, from Prehistory onwards, mining and smelting activities existed in these regions. Such activities may have a lasting effect on ecosystems. Locating these ancient sites is therefore capital and impacts on fauna and flora must be quantified. The present work is based in on a multidisciplinary approach, combining archaeology, geochemistry, ecology and ecotoxicology. Statistical methods from modern prospection techniques were used to delineate geochemical anomalies, potentially due to mining exploitation, thus facilitating archaeological prospection. Spatial distribution maps of trace metals were created for six sites (three in each park). Bioavailability was assessed through analyses of wood mice, trout and aquatic mosses. A negative relationship between Pb concentrations in animals and their body condition indices was observed and, in some cases, developmental instability was higher, suggesting deleterious effects on wildlife. The impact of past mining and smelting works still remains traceable in ecosystems today. Such sites should therefore be monitored, particularly in protected areas, erroneously thought to be free of any anthropogenic contamination.

KEYWORDS: TRACE METALS, ANCIENT MINING, SOIL, FLUCTUATING ASYMMETRY, WOOD MOUSE, WILD BROWN TROUT.

INTRODUCTION

Depuis plusieurs décennies, la prise de conscience de l'impact de l'homme sur son environnement est devenue un sujet central. De très nombreuses études ont été menées pour comprendre le comportement des éléments traces métalliques (ETMs) dans l'environnement. Quel est l'héritage des émissions en ETMs de nos prédécesseurs sur les écosystèmes actuels ? La réponse n'est pas triviale. Par définition, les éléments traces désignent les éléments présents à des concentrations inférieures à 0,1 %, dans un biotope (environnement de nature abiotique). Ils peuvent être classés en fonction de leur importance dans les processus biologiques : les éléments essentiels et les éléments non-indispensables, voire toxiques pour les êtres vivants. Les effets sur les organismes dépendent de leur concentration et de leur spéciation, mais la plupart des éléments se révèlent toxiques à fortes teneurs. Un écosystème est donc un objet complexe résultant d'étroites relations entre le biotope et une communauté vivante, la biocénose (Ramade, 2008). Deux approches permettent de caractériser ces interactions : (i) les modélisations en laboratoire, où le contrôle de différents paramètres (comme le temps d'exposition, la température ou la concentration en ETMs) renseigne sur l'influence de ces paramètres au niveau du comportement des éléments traces dans les sols ou les bioindicateurs (Jalali et Khanlari, 2008 ; Beernaert *et al.*, 2008 ; Martins *et al.*, 2012) et (ii) les études *in situ* qui intègrent l'ensemble de ces paramètres (Macklin *et al.*, 1997 ; Elbaz-Poulichet *et al.*, 2001 ; Escarré *et al.*, 2011).

Le travail exposé ci-après s'insère dans la deuxième approche. Il s'agit d'une synthèse des princi-

aux résultats obtenus lors d'une thèse de doctorat intitulée « *Impact des anciens sites miniers et métallurgiques sur des écosystèmes terrestre et aquatique actuels – Étude comparative de deux moyennes montagnes : le Morvan et les Cévennes* » (Camizuli, 2013), dont le support est un projet multidisciplinaire décrit dans Alibert *et al.* (2011). Son originalité réside dans l'analyse combinée des compartiments terrestre et aquatique. Riche de son patrimoine industriel, la France ne manque pas d'anciennes zones minières et métallurgiques. Les parcs nationaux ou les parcs naturels régionaux sont des espaces aujourd'hui protégés et réglementés qui ont pu être par le passé des lieux de hautes activités économiques et industrielles. Les sites d'extraction peuvent avoir disparu sous la végétation, ou laissé des traces ténues, de sorte qu'ils sont aujourd'hui difficiles à identifier, voire, perdus pour la mémoire collective. Cependant ces activités anciennes ont perturbé et sont susceptibles de perturber encore l'équilibre des cycles biogéochimiques en augmentant les teneurs en ETMs dans l'environnement, notamment par lessivage/altération des déchets miniers et métallurgiques. La question est aujourd'hui de savoir dans quelle mesure ces éléments stockés depuis des siècles ou des millénaires sont susceptibles d'être libérés dans les écosystèmes.

La présente étude se focalise sur quatre ETMs couramment examinés en écotoxicologie : deux éléments essentiels, le cuivre (Cu) et le zinc (Zn), et deux éléments non-essentiels, le cadmium (Cd) et le plomb (Pb). Les principaux objectifs sont (i) d'identifier les anciens sites miniers et métallurgiques ; (ii) de quanti-

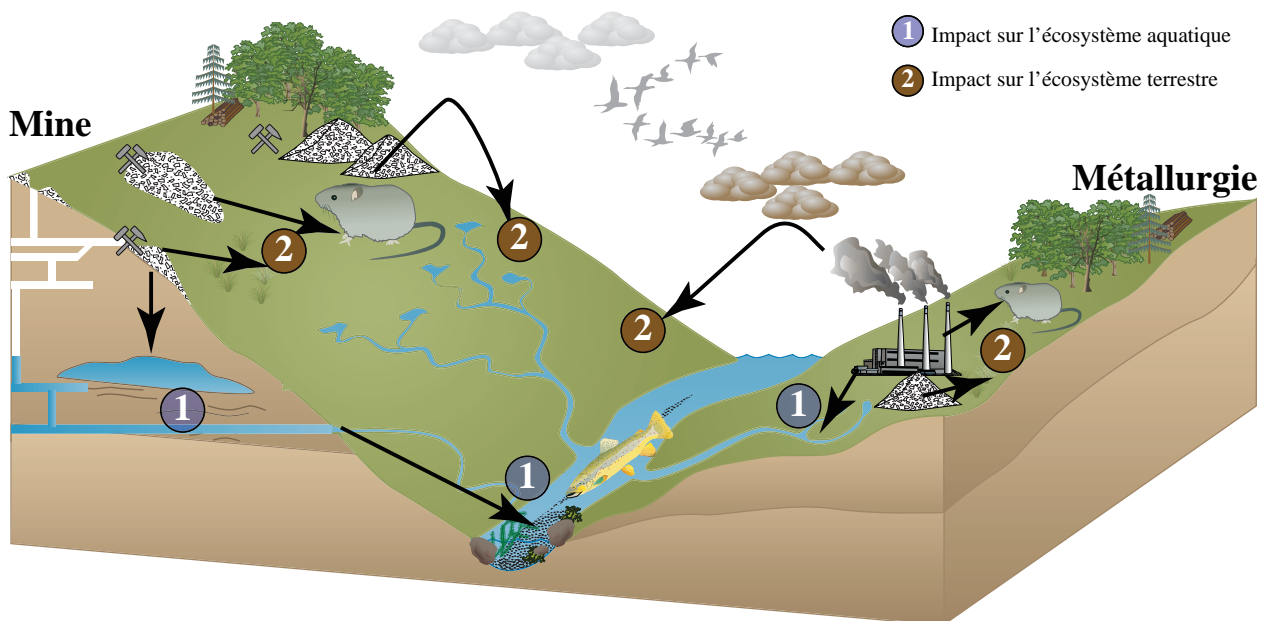


Figure 1 - Schéma des impacts miniers et métallurgiques sur les écosystèmes. Les flèches indiquent la relation entre les écosystèmes et les bioindicateurs sélectionnés pour cette étude (Camizuli, 2013).

fier dans les biotopes la concentration en ETMs issus des anciennes activités ; (iii) de préciser la part de ces éléments traces métalliques assimilable par les organismes vivants et (iv) de déterminer leur influence sur les organismes.

L'impact sur l'écosystème aquatique actuel (noté 1 sur la Figure 1) a été estimé à partir de l'analyse des sédiments de rivière. La biodisponibilité dans cet écosystème a été plus précisément évaluée en utilisant comme bioindicateurs une espèce de mousse aquatique (*Fontinalis antipyretica*) et la truite indigène fario (*Salmo trutta fario Linnaeus*). Ces deux organismes, reconnus accumulateurs d'ETMs (Linde et al., 1998 ; Cenci, 2000 ; Bailly et al., 2004), informent sur la qualité des rivières.

L'impact des anciens sites miniers et métallurgiques sur l'écosystème terrestre actuel (noté 2 sur la Figure 1) a été évalué à partir d'analyses de sols de surface. Le bioindicateur sélectionné pour cet écosystème est le mulot sylvestre (*Apodemus sylvaticus*). Il renseigne sur la biodisponibilité de la contamination accumulée dans les sols par dépôt atmosphérique ou par stockage direct de déchets miniers et métallurgiques (Velickovic, 2007 ; Fritsch et al., 2010).

Afin d'apprécier l'état général des truites et des mulots vivant dans ces milieux, des indices de conditions corporelle et somatique ont été calculés (Peig et Green, 2009, 2010) et l'instabilité de développement a été estimée via la mesure des niveaux d'asymétrie fluctuante (Palmer et Strobeck, 2003).

I - CARACTÉRISTIQUES DES ZONES ÉTUDIÉES

Le cadre géographique correspond à deux zones naturelles protégées, sélectionnées afin de s'affranchir autant que possible de l'impact des activités anthropiques actuelles. Il s'agit du parc naturel régional du Morvan et du parc national des Cévennes. Les deux zones sont situées dans le Massif central (Figure 2) et ont été des lieux d'extraction minière dès la Protohistoire (Jouffroy-Bapicot et al., 2007). Afin de caractériser les écosystèmes actuels, trois fenêtres ont été sélectionnées dans chacun des parcs : un secteur non contaminé, utilisé comme site de référence, et deux secteurs miniers et/ou métallurgiques (Figure 3). Dans le Morvan, le secteur moyennement contaminé correspond à une zone d'exploitation du fer située près de Bibracte, capitale des Eduens, riche peuple celte. Le secteur fortement contaminé est centré sur une des mines de plomb argentifère les plus importantes du royaume de France durant la première partie du 16^e siècle. La même approche a été appliquée dans les Cévennes avec un site minier contemporain, et une zone d'activité métallurgique médiévale comprenant plusieurs petits ateliers très localisés (Figure 3).

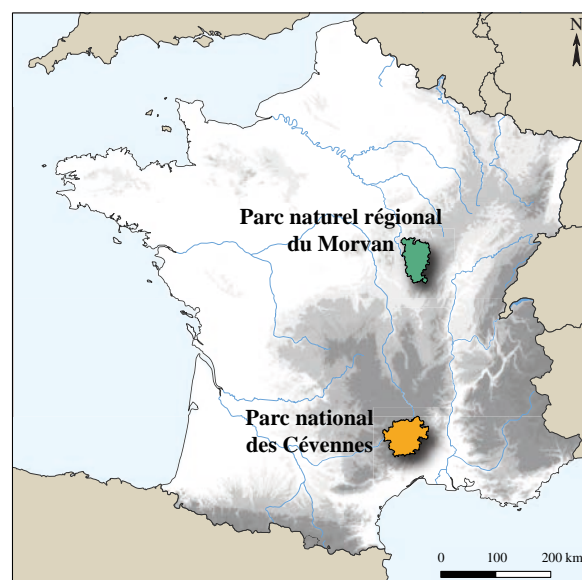


Figure 2 - Localisation du parc naturel régional du Morvan et du parc national des Cévennes.

Région	Secteur	Type de vestiges	Type de métaux	Principales périodes d'exploitation (siècles ap. J.-C)
Morvan	Gien-sur-Cure (0)	-	-	-
	La Ruchette (+)	Minier et métallurgique	Fe	3 ^e -5 ^e ; 19 ^e -20 ^e
	Chitry-les-Mines (++)	Minier	Pb-Ag	15 ^e -16 ^e
Cévennes	Vérié (0)	-	-	-
	Ramponenche (+)	Minier et métallurgique	Zn-Pb-Ag	20 ^e
	Serre des Countrasts (++)	Métallurgique	Pb-Ag	11 ^e -14 ^e

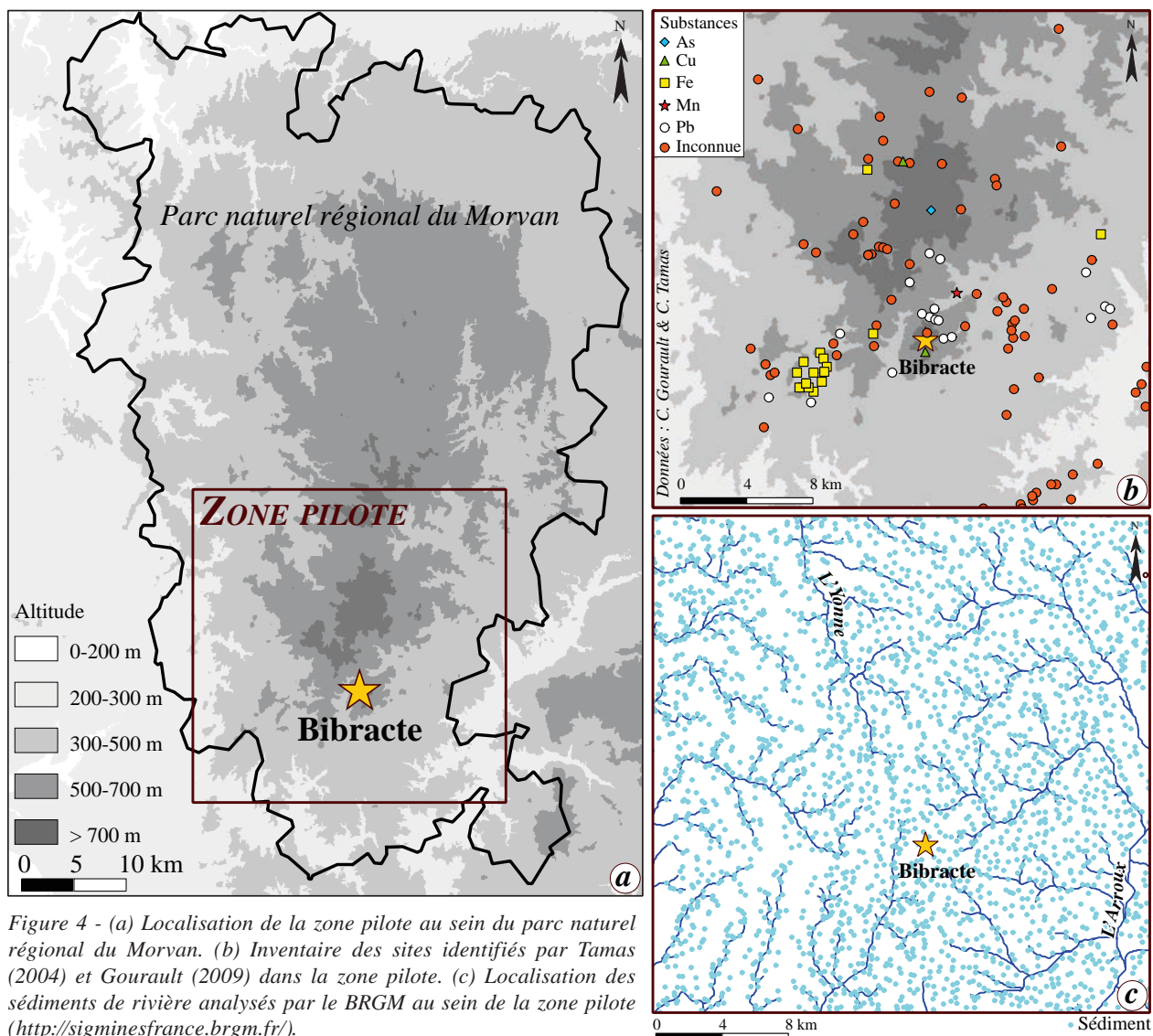
Figure 3 - Type de vestige, type de métal, et principales périodes d'exploitation des six zones d'étude. Les trois secteurs étudiés au sein de chaque parc sont codés en fonction de leur contamination supposée : 0 pour le site de référence, + pour le site moyennement contaminé et ++ pour le site fortement contaminé.

II - LOCALISATION DES ANCIENS SITES MINIERS

La reconnaissance sur le terrain est la première étape pour déterminer la localisation des anciens sites miniers, mais elle peut être couplée à des méthodes empruntées à la prospection minière actuelle pour guider le travail du prospecteur. Dans cette étude, la méthode proposée est basée sur la délimitation d'anomalies géochimiques correspondant à des zones où les substances minérales telles que As, Cu, Pb, ou Zn sont abondantes (Garrett *et al.*, 2008 ; Carranza, 2011). Lors de la prospection, l'archéologue minier pourra alors concentrer son attention sur ces zones car potentiellement exploitées dans le passé en raison de leur richesse.

Les environs de l'oppidum celtique de Bibracte, dans le nord du Massif central, sont connus pour avoir été le lieu d'exploitations minières depuis au moins l'Âge du Bronze final jusqu'à la période Moderne (Monna *et al.*, 2004 ; Jouffroy-Bapicot *et al.*, 2007).

Ils ont été choisis pour illustrer le potentiel de ces méthodes d'exploration en archéologie. Une prospection pédestre a donc été entreprise dans une aire pilote de 30 x 30 km², centrée sur l'oppidum de Bibracte (Figure 4a) afin de réaliser un inventaire exhaustif des sites miniers. La compilation des données de Tamas (2004) et de Gourault (2009) met en évidence 109 sites anciens dans cette zone pilote (Figure 4b). En parallèle, une méthode basée sur l'analyse des sédiments de rivière est employée pour identifier les anomalies d'un point de vue géochimique. Les sédiments résultent en effet de l'érosion des formations géologiques situées en amont. Les analyses de sédiments de rivière réalisées par le BRGM dans les années 1980 fournissent une base de données géochimiques exceptionnelle (Lambert, 2005) : plus de 2500 échantillons sont disponibles dans la seule zone pilote (Figure 4c). A l'époque, les sédiments ont été séchés et tamisés



à 125 μm . Plus de 22 éléments ont été analysés par DCP (spectrométrie d'émission à plasma conducteur), incluant As, Cu, Pb, Zn, Fe_2O_3 , et MnO (éléments étudiés ici pour la délimitation des anomalies).

La délimitation des anomalies géochimiques se base sur un modèle multi-fractal (Cheng *et al.*, 1994 ; Carranza, 2009 ; Monna *et al.*, 2014). Des cartes élémentaires sont obtenues par interpolation puis, sur un diagramme log-log, le pourcentage de la surface supérieure à une certaine concentration est représenté en fonction de la concentration considérée (exemple avec le plomb en Figure 5 a). Les points d'inflexion de la courbe correspondent à des changements de dimension fractale. Ils définissent des seuils séparant le fond géochimique des anomalies, positives ou négatives. Les sous-bassins-versants présentant dans la zone pilote un fort potentiel peuvent être alors facilement identifiés, puis comparés avec les données de prospection pédestre (Figure 5 b). La

pertinence du modèle multi-fractal est ensuite évaluée par comparaison avec un modèle aléatoire, où les découvertes seraient purement fortuites : *i.e.* 50 % des sites auraient été découverts en prospectant 50 % de la zone (Figure 5 c). Grâce au modèle fractal, il s'avère que 70 % des sites miniers auraient été découverts en ne prospectant que 15-20 % de la zone pilote, ce qui représente un gain de temps considérable. Une fois la validité du modèle établie à partir de la zone pilote, il a pu être étendu à l'échelle du Morvan pour le plomb, le cuivre et l'arsenic (exemple avec le plomb en Figure 5 d). Outre les économies réalisées en termes de temps et de moyens, l'approche décrite ici peut fournir des informations quant à la nature des substances minérales exploitées dans le passé ; une information souvent difficile à obtenir en l'absence d'archives. Ce n'est toutefois qu'une étape préliminaire : la méthodologie proposée ne remplace en aucun cas la fouille archéologique d'un site.

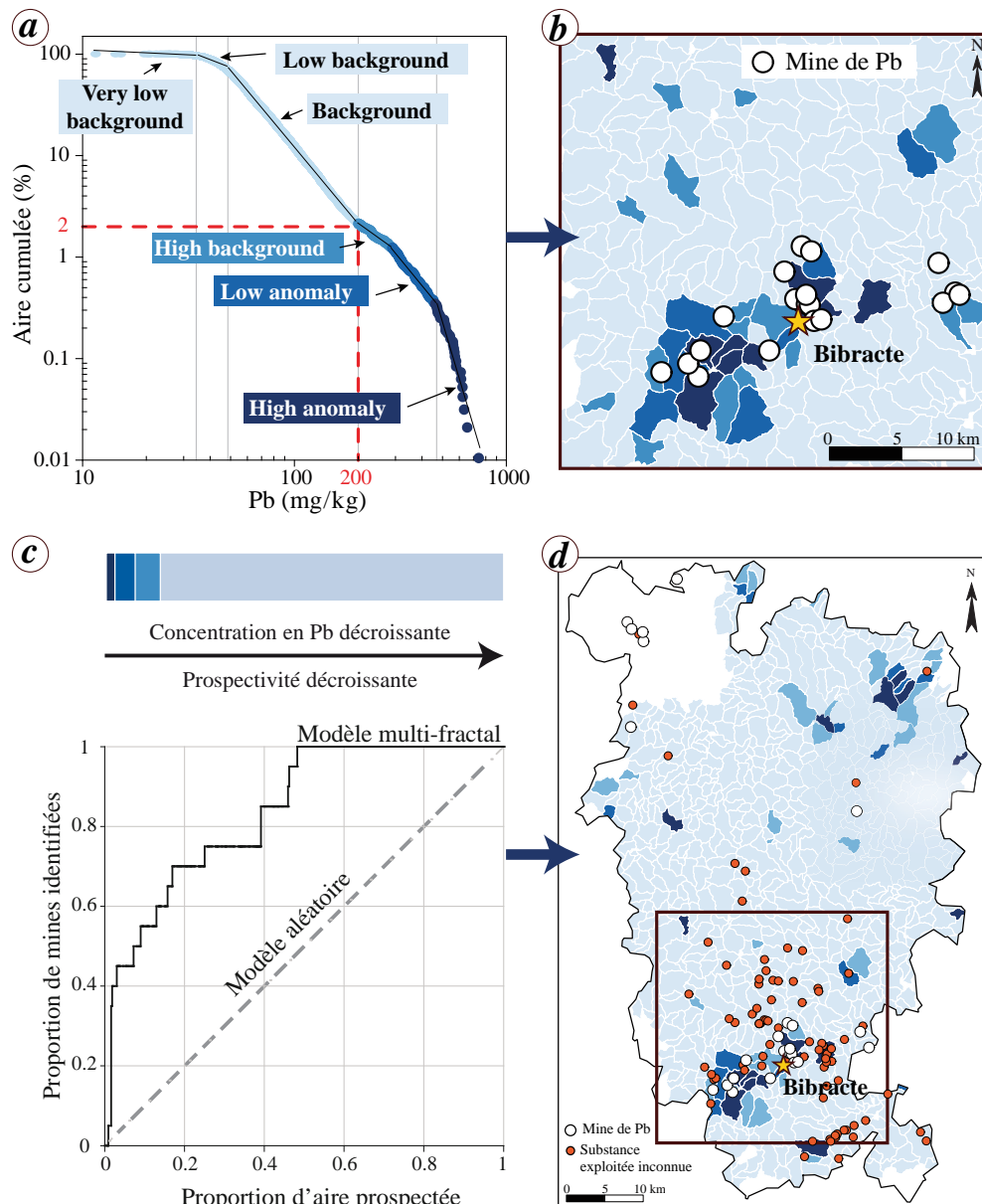


Figure 5 - (Monna *et al.*, 2014),

(a) Détermination des valeurs seuils à l'aide de la méthode multi-fractale. Par exemple, 2 % de la surface totale présente des concentrations supérieures à 200 mg/kg de Pb (en pointillé rouge) ;

(b) Bassins versants colorés en fonction des valeurs seuils définies pour le Pb et superposition avec les données de prospection ;

(c) Comparaison entre le modèle multi-fractal (en trait plein) et un modèle aléatoire (en pointillé) ;

(d) Extrapolation à l'échelle du parc naturel régional du Morvan pour l'élément Pb.

III - IMPACT SUR L'ÉCOSYSTÈME AQUATIQUE ACTUEL

1 - Caractérisation du milieu aquatique

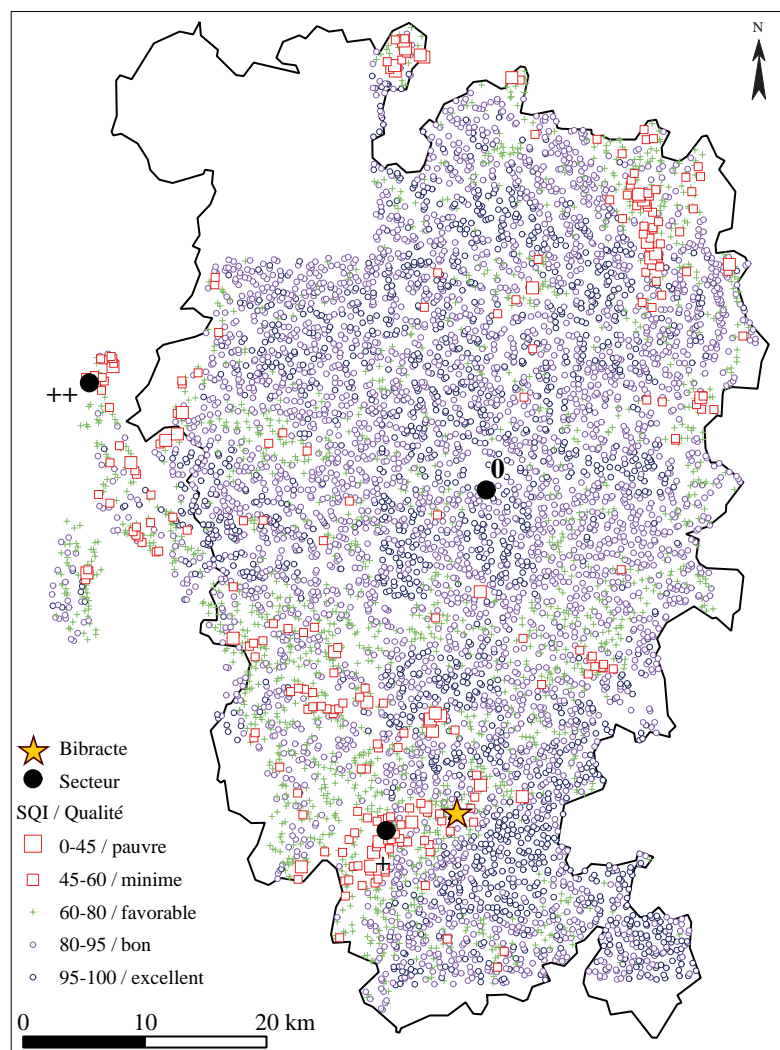
La base de données du BRGM a également été utilisée pour caractériser la qualité des rivières du Morvan selon une méthode développée par le gouvernement canadien (CCME, 2002 ; Marvin et al., 2004). Contrairement à la méthode fractale, il s'agit ici d'avoir une approche multi-élémentaire (Camizuli et al., 2014 ; Marvin et al., 2004). Un indice exploratoire de qualité des sédiments, sediment quality index (SQI), est calculé à partir des concentrations de sept éléments (As, Cd, Cr, Cu, Ni, Pb et Zn) pour chaque échantillon en tenant compte du nombre d'éléments qui excèdent une valeur seuil et de la magnitude du dépassement. Les détails concernant le calcul de cet indice sont disponibles dans Marvin et al. (2004). Plus de 96% des sédiments mesurés appartiennent au pire à la catégorie favorable, sachant que cinq catégories ont été définies (cf. légendes de la Figure 6, Marvin et al., 2004). La majorité des sédiments de rivière du Morvan ne devraient donc pas *a priori* présenter un danger pour les organismes vivant dans ces rivières (Figure 6). Cependant, trois zones présentant des SQIs moins bons se distinguent au sein du parc naturel régional du Morvan : (i) à l'est et au nord-est du parc, au contact géologique entre les roches sédimentaire et endogènes, (ii) autour de l'oppidum de Bibracte et (iii) en limite de parc, près de Chitryles-Mines. Des décrets royaux attestent que des exploitations de plomb-argent étaient très développées dans cette zone pendant le 15^e et le 16^e siècle. Les bassins versants où des activités minières ont eu lieu dans le passé présentent donc des SQIs moins bons. Cet outil permet de traiter des quantités importantes de données et de mettre en évidence les zones qui nécessitent une attention particulière en matière de suivi environnemental. Cependant, afin de caractériser les effets sur les organismes vivants, un changement d'échelle et d'indicateur est nécessaire.

Figure 6 - Carte des SQIs calculés pour l'ensemble du parc naturel régional du Morvan (Camizuli et al., 2014). La localisation du site de référence (0), du site moyennement contaminé (+) et du site fortement contaminé (++) est également indiquée.

2 - Caractérisation des bioindicateurs

a - Mousses aquatiques

Des mousses aquatiques de type *Fontinalis antipyretica* ont été récoltées hors zone d'étude, sur un site non contaminé. Elles ont ensuite été transplantées dans trois rivières du Morvan, dans les rivières non contaminée, moyennement contaminée et fortement contaminée, comme évoqué précédemment. La récolte a été réalisée en deux temps : après un et deux mois d'exposition. Les concentrations en Cd, Cu, Pb et Zn ont ensuite été mesurées (Camizuli et al., 2014) puis comparées aux concentrations initiales dans les mousses, c'est-à-dire avant exposition (Figure 7). Les influences respectives du secteur et du temps d'exposition ont été testées statistiquement afin de satisfaire qualité du modèle et critère de parcimonie (Burnham et Anderson, 2002). L'utilisation de ces modèles linéaires multivariés met en évidence que le secteur se révèle être le facteur le plus influent (p -value $< 10^{-4}$, adj-R²



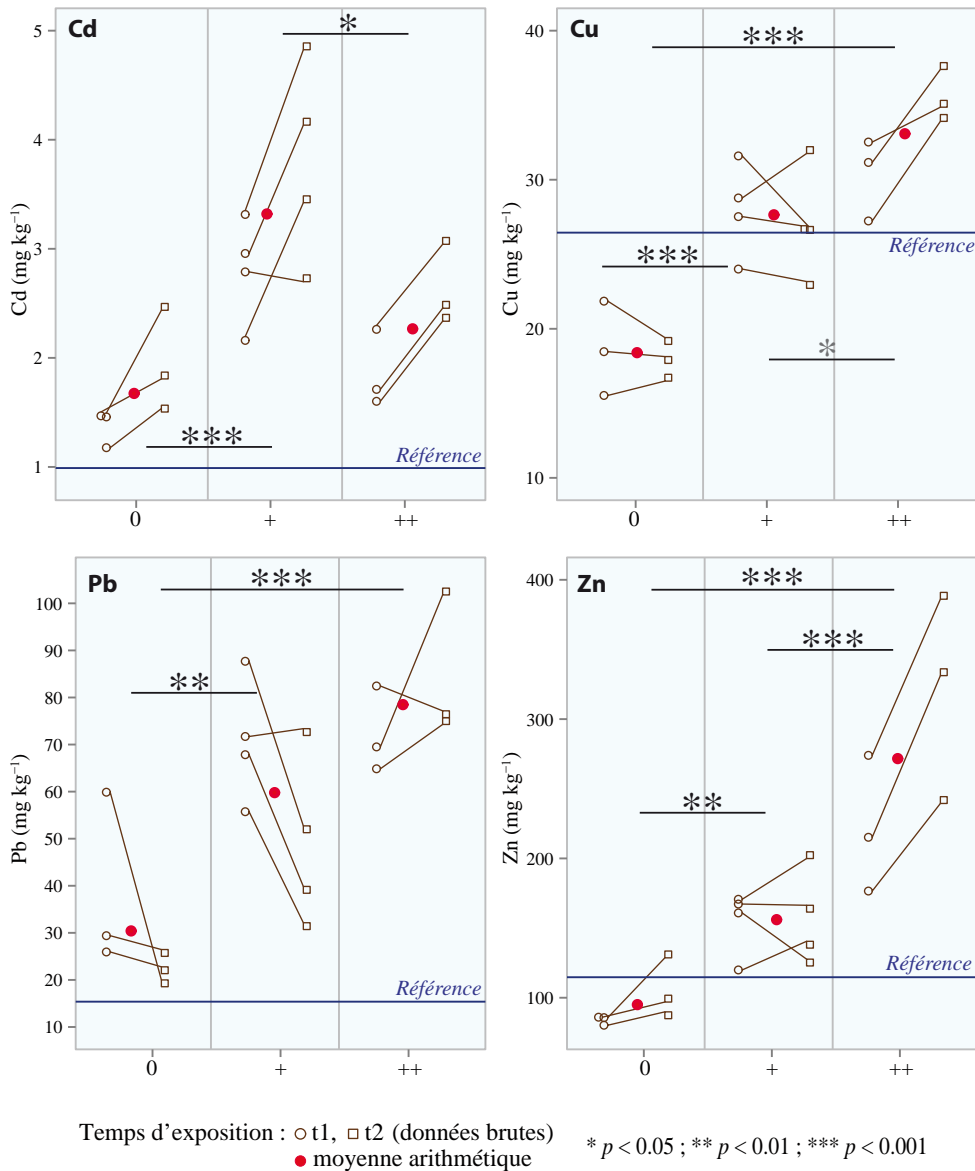


Figure 7 -
Concentrations en ETMs dans les mousses aquatiques transplantes dans trois rivières du Morvan :
(0) non contaminée ;
(+) moyennement contaminée ;
(++) fortement contaminée.

Les valeurs de référence mesurées dans les mousses avant exposition sont indiquées en bleu (Camizuli et al., 2014).

* $p < 0,05$;
** $p < 0,01$;
*** $p < 0,001$.

compris entre 0,61 et 0,81) pour tous les éléments mesurés (Cd, Cu, Pb et Zn). De tels résultats confirment la sensibilité des mousses aquatiques, notamment pour mettre en évidence l'impact des anciens sites miniers sur l'écosystème aquatique.

b - Truites sauvages

Dans le parc national des Cévennes, les truites sauvages (*Salmo trutta fario*) ont été échantillonnées par pêche électrique lors d'une étude menée en 2006 (Monna et al., 2011). La zone comprenait alors six sites dont deux ont été conservés pour le travail sur l'écosystème terrestre (le site de référence et le site moyennement contaminé, Figure 8 a). Cette étude a par la suite été transposée au parc naturel régional du Morvan (Camizuli et al., 2014). Les concentrations en Cd, Pb, Cu et Zn ont été mesurées dans les foies de 114 et 72 truites pêchées dans les Cévennes et le Morvan, respectivement. Sur certains sites des

Cévennes, les concentrations en éléments non-essentiels (Cd et Pb) sont extrêmement élevées (Figure 8 a), bien supérieures à celles rencontrées sur le site de référence. Elles sont fortement liées au degré de contamination des sédiments de rivières, reflet de la distance avec les sites miniers, de la nature du métal exploité et de la période d'exploitation (Monna et al., 2011). La composition isotopique du plomb, empreinte digitale chimique du polluant, confirme sans ambiguïté l'origine de la contamination : il s'agit bien d'un drainage de déchets miniers et métallurgiques. Par contre, les éléments essentiels (Cu et Zn) montrent peu de variation, suggérant une régulation homéostatique efficace par les animaux (Eisler, 2000).

Seulement quatre truites ont été collectées dans la rivière du site le plus contaminé du Morvan. De par sa plus faible représentativité, ce site n'a pas pu être inclus à l'analyse statistique. Sur les deux sites restant, des différences significatives sont observées seulement pour le Cd et pour le Cu (Figure 8 b). La réponse des

truites du Morvan en termes de concentrations n'est donc pas aussi nette que dans les Cévennes.

L'asymétrie fluctuante (AF) est une variable biologique qui caractérise les différences de symétrie latérale dans un organisme. Elle traduit une instabilité de développement pour des individus censés présenter une symétrie bilatérale parfaite, et reflète l'incapacité des individus à corriger des erreurs qui se produisent pendant leur développement (Palmer et Strobeck, 1986). Elle peut être mise en évidence par l'étude des distributions des valeurs droite-gauche ; noté R-L, pour un caractère morphologique donné (Palmer, 1994), et renseigne sur l'aptitude de l'individu à faire face à un stress d'origine génétique ou environnemental. Plus le stress sera important, plus la distribution des valeurs R-L sera large (Figure 9 a).

Pour les truites, quatre caractères métriques ont été sélectionnés : la longueur de la nageoire pectorale, la longueur de la nageoire pelvienne, la longueur nez-œil et la longueur œil-opercule (Figure 9b). Dans les Cévennes, des degrés contrastés d'AF sont observés entre les sites (Figure 10). Les corrélations entre l'AF et les concentrations dans les foies de truites sont significatives pour Pb (exemple avec la nageoire pelvienne : $r_{\text{spearman}} = 0,44$, $p < 10^{-5}$) et Cd (nageoire pelvienne : $r_{\text{spearman}} = 0,41$, $p < 10^{-4}$) (Monna et al., 2011). L'impact environnemental des mines est tel

qu'il semble donc avoir un effet sur le développement précoce des individus.

Dans le Morvan, aucune corrélation significative n'a pu être établie entre l'AF et les concentrations en métaux probablement parce que le degré de contamination de ces rivières est loin d'égaliser celui observé ponctuellement dans les Cévennes (Camizuli et al., 2014). Pour déterminer les effets sur les organismes vivants, des indices de condition ont été calculés (Peig et Green, 2009). Ils prennent en compte la relation entre la taille et le poids des animaux (on parle alors d'indice de condition corporel, SMI) ou entre la taille et le poids d'un organe (indice de condition somatique, noté SLI pour le foie). Les influences respectives des paramètres biologiques (âge, poids, taille, sexe), du secteur et des concentrations en ETMs dans les foies sur les indices de condition ont été testées statistiquement en utilisant des modèles linéaires multivariés (Camizuli et al., 2014). Le secteur et la concentration en plomb dans ces foies sont les variables les plus influentes : plus la concentration en plomb dans les foies de truites est importante, plus l'indice de condition est faible (Figure 11), suggérant des effets délétères sur la condition des poissons ou sur la taille relative des organes. Les corrélations négatives entre les indices de condition et les concentrations en ETMs dans les foies sont généralement interprétées comme étant liées

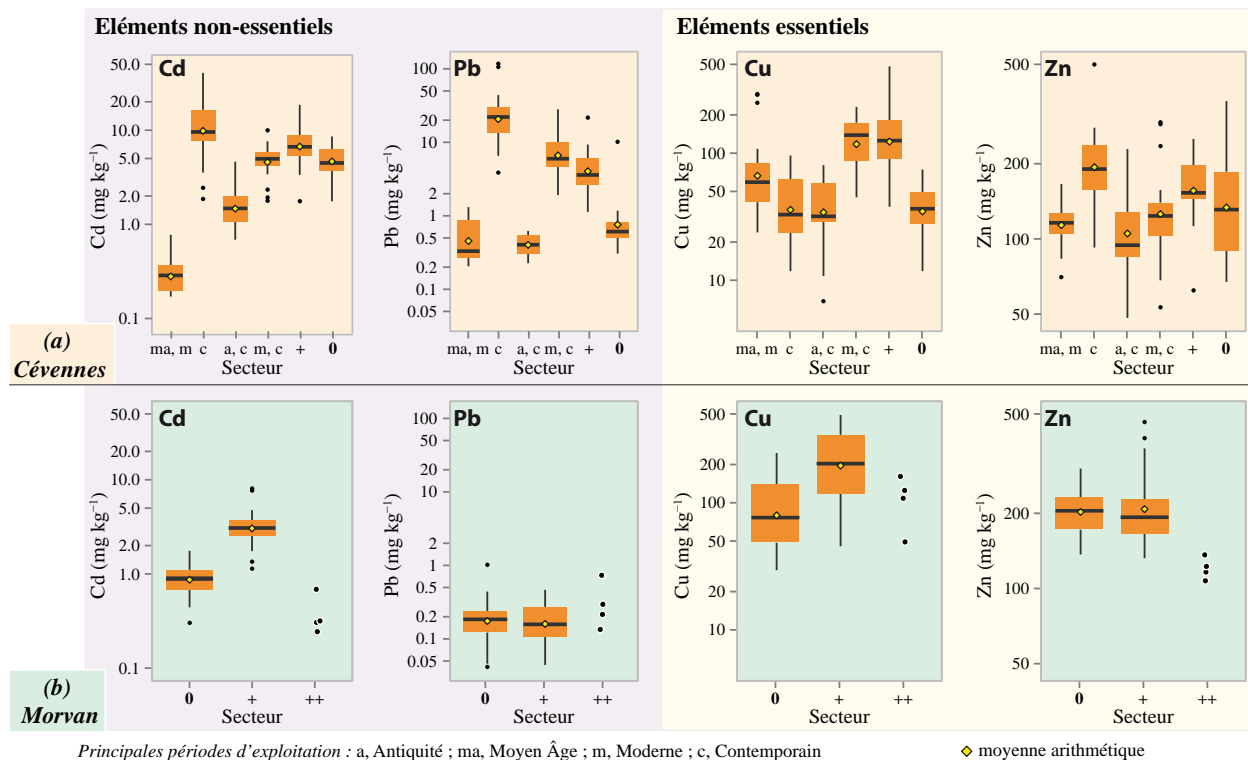


Figure 8 - Concentrations en ETMs dans les foies de truites (a) des Cévennes (Monna et al., 2011) et (b) du Morvan (Camizuli et al., 2014), exprimées en poids sec. Pour les Cévennes, les six secteurs sélectionnés pour l'étude menée en 2006 sont précisés en fonction de leurs principales périodes d'exploitation sauf pour le secteur de référence (0) et pour le secteur moyennement contaminé (+). À l'époque, le secteur fortement contaminé (++) n'était pas inclus dans l'étude.

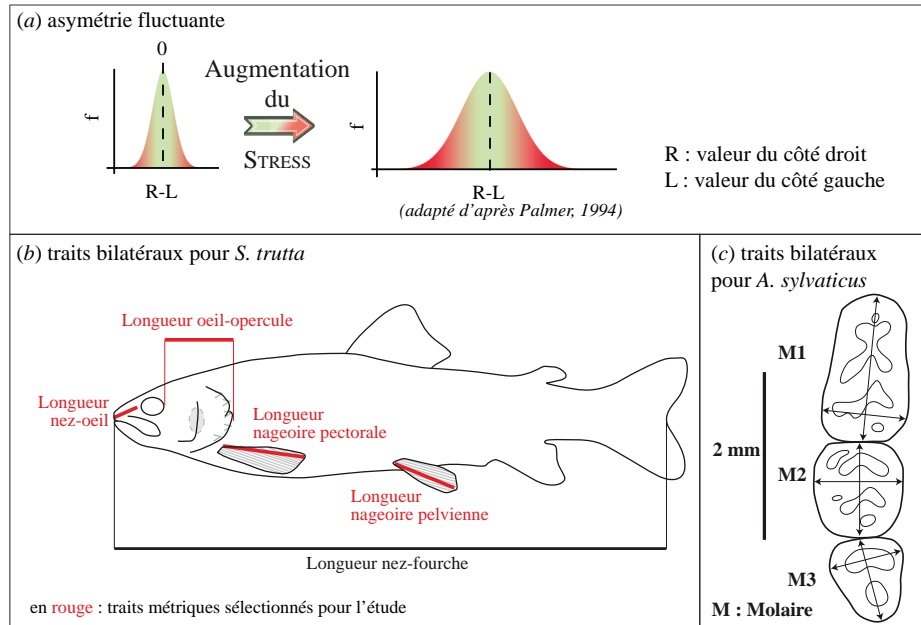


Figure 9 - Paramètres sélectionnés pour l'étude de l'instabilité de développement.

(a) Distribution des valeurs droite-gauche pour une population présentant une asymétrie fluctuante.

(b) Caractères morphologiques bilatéraux étudiés pour *Salmo trutta*.

(c) Caractères morphologiques bilatéraux étudiés pour *Apodemus sylvaticus*.

à un stress environnemental provoquant une diminution des réserves énergétiques (Almeida et al., 2005). L'absence d'impact clair sur les truites du Morvan pourrait s'expliquer par le caractère isolé et ancien des

sites qui conduiraient aujourd'hui à une contamination modérée. Cette relation pourrait également être due à un facteur confondant comme par exemple un polluant non mesuré dans cette étude, mais corrélé au plomb.

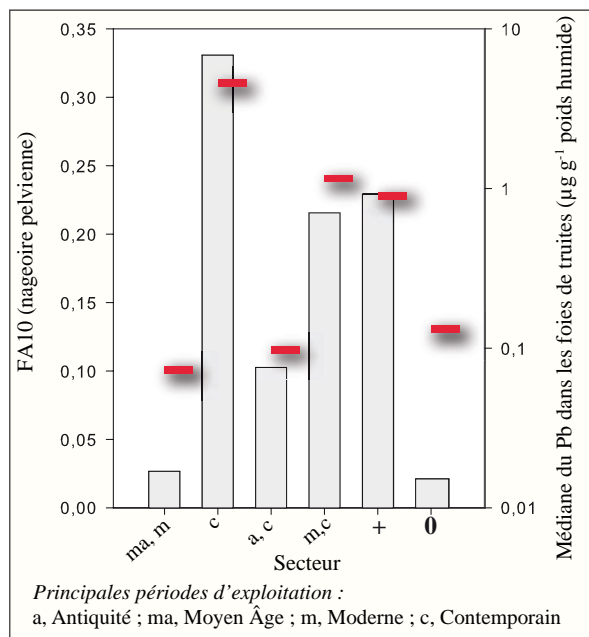


Figure 10 - Diagramme en barres des FA10 (un indice d'asymétrie fluctuante qui prend en compte l'erreur de mesure) pour le paramètre «nageoire pelvienne». Les médianes des concentrations en Pb dans les foies des truites des Cévennes sont indiquées par des traits pleins (Monna et al., 2011).

Les six secteurs sélectionnés pour l'étude menée en 2006 sont précisés en fonction de leurs principales périodes d'exploitation sauf pour le secteur de référence (0) et pour le secteur moyennement contaminé (+). À l'époque, le secteur fortement contaminé (++) n'était pas inclus dans l'étude.

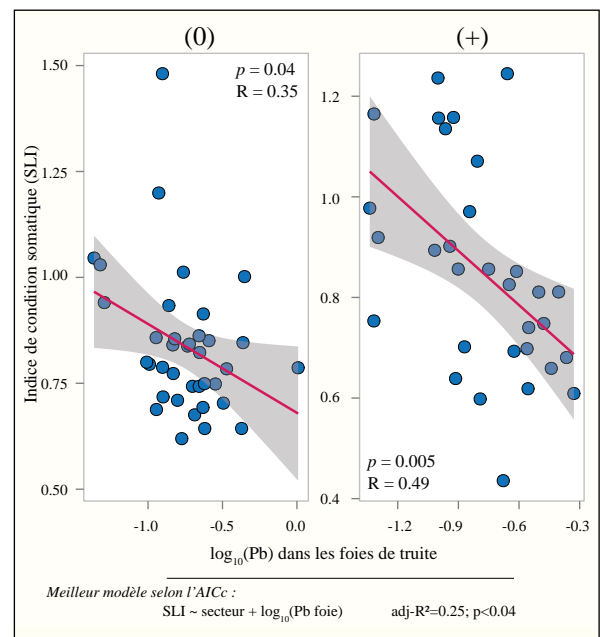


Figure 11 - Indice de condition somatique (SLI) en fonction de la concentration en Pb (log₁₀) dans les foies des truites du Morvan pour le site de référence (0), n=37 et le site moyennement contaminé (+), n=31.

Le meilleur modèle obtenu en suivant le critère d'Akaike (AICc) est également précisé (Camizuli et al., 2014). Les bandes grises correspondent aux intervalles de confiance de la régression linéaire à 95%.

IV - IMPACT SUR L'ÉCOSYSTÈME TERRESTRE ACTUEL

1 - Caractérisation du milieu terrestre

Les secteurs étudiés (~1 km²) ont été divisés en grille de 100 x 100 m² ou de 200 x 200 m² (Figure 12 a). Dans chaque maille, les horizons de surface des sols (*i.e.* 20 cm) ont été prélevés puis la fraction inférieure à 2 mm a été analysée pour les quatre éléments Cd, Cu, Pb et Zn. En zone minière, la distribution des concentrations est hétérogène, avec les plus fortes valeurs localisées au voisinage des sites d'extraction et de traitement, et cela quel que soit le métal considéré (ex avec le plomb en Figure 12 b).

Il n'existe pas de consigne claire au niveau européen en matière de contamination des sols. Prenons néanmoins l'exemple des Pays-Bas où les seuils d'intervention sont fixés à 12 mg kg⁻¹ pour le Cd, 190 mg kg⁻¹ pour le Cu, 530 mg kg⁻¹ pour le Pb, et 720 mg kg⁻¹ pour le Zn (Lynden *et al.*, 2004). Au total, 29% des sols analysés dépasseraient la limite d'intervention fixée pour le seul plomb. Cependant, la concentration totale en métal dans un sol ne reflète pas son degré de disponibilité pour les organismes vivants. La toxicité dépend également des propriétés physico-chimiques du sol et des propriétés biologiques des organismes. Les analyses biologiques restent donc la meilleure méthode pour déterminer la biodisponibilité des métaux, et éventuellement leur impact négatif sur les organismes vivants.

2 - Caractérisation des mulots

Des campagnes de piégeage de micromammifères ont donc été organisées au sein des deux parcs, dans les six zones d'étude. La capture a été réalisée sur dix mailles par secteur (e.g. Figure 12 b), sélectionnées en fonction de leur position par rapport aux sites miniers et métallurgiques anciens, ou de façon aléatoire pour les deux sites de référence. Au total, 650 individus ont été capturés. Après analyse ADN, le mulot sylvestre (*Apodemus sylvaticus*) a finalement été retenu en raison de sa répartition sur les six sites d'études sélectionnés. Les concentrations en Cd, Cu, Zn et Pb ont été mesurées dans 157 reins ($n = 91$ pour le Morvan et $n = 66$ pour les Cévennes). Cu et Zn ne sont liés ni au site étudié, ni à la concentration dans le sol de surface, suggérant une régulation homéostatique efficace de la part des individus (Figure 13 a). En revanche, pour ces éléments, les concentrations dans les reins sont liées à la masse des individus. Les concentrations en Cd dans les reins augmentent avec l'âge des individus, en suivant le schéma : juvéniles < sub-adultes = adultes (Camizuli *et al.*, en préparation). Pour le plomb, la concentration mesurée dans les reins varie en fonction des sites et de la concentration en plomb dans les sols de surface (Figure 13 b) : plus la concentration dans le sol est forte, plus la concentration dans le mulot sera élevée. Ces résultats montrent que les élé-

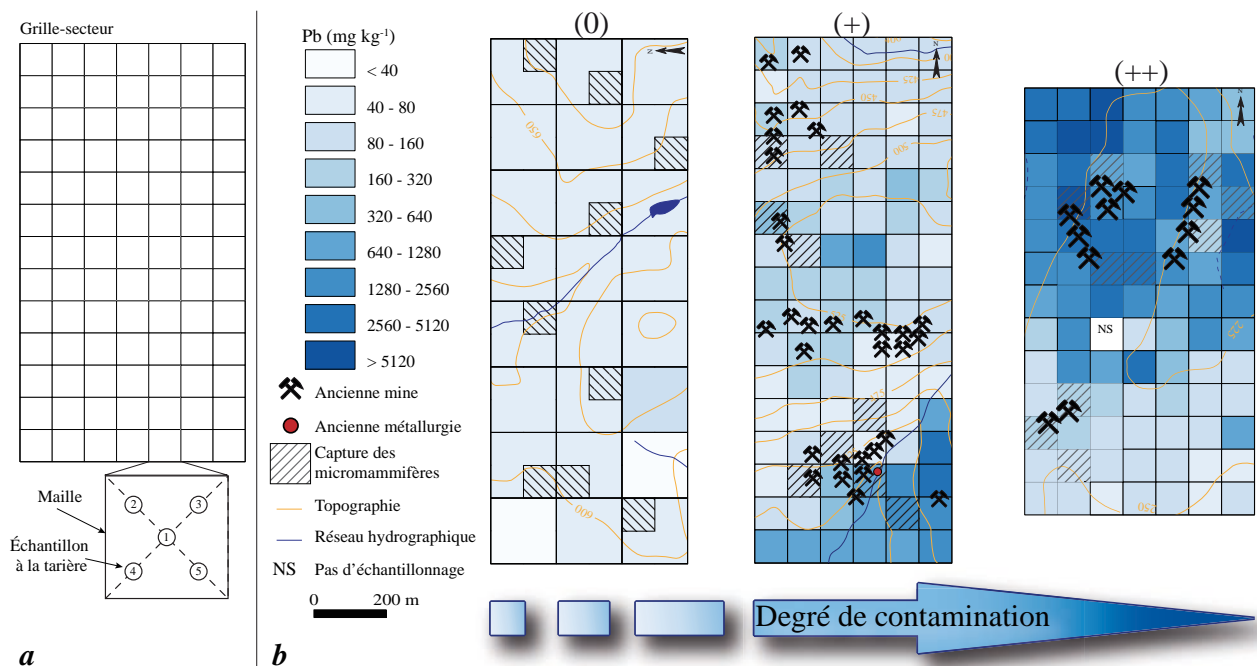


Figure 12 - Caractérisation des sols (Camizuli *et al.*, en préparation) ; (a) Protocole d'échantillonnage suivi pour le prélèvement des sols de surface ; (b) Répartition des concentrations en Pb dans les sols de surface pour les trois secteurs étudiés dans le Morvan : non contaminé (0), moyennement contaminé (+) et fortement contaminé (++).

ments (en particulier le Pb) sont toujours disponibles pour la faune sauvage. Cependant la comparaison avec des analyses réalisées sur des contaminations récentes (Fritsch et al., 2010) suggère que la biodisponibilité des anciens sites reste relativement limitée. De plus,

les concentrations en éléments non-essentiels peuvent être comparées à des valeurs de référence (LOAELs, Lowest Observed Adverse Effects Levels ; Ramade, 2007). Il s'agit d'une estimation des concentrations à partir desquelles les effets négatifs sur les organismes sont observables. Ici, ni les concentrations en Pb ni en Cd n'atteignent ces seuils (Figure 13b).

Afin d'apprécier l'état général des mulots, l'instabilité de développement a été estimée par l'étude des niveaux d'asymétrie fluctuante sur six caractères morphologiques : les longueurs et les largeurs des molaires M1, M2 et M3 des mandibules inférieures (Figure 9c). Après analyse statistique, aucun effet sur l'instabilité de développement n'a pu être mis en évidence. Les indices de conditions ont également été calculés (Camizuli et al., en préparation). Les indices de condition corporelle (SMI) apparaissent négativement corrélés à la concentration en plomb dans les reins (Figure 14). Même si la relation est faible, elle est significative ($adj-R^2=0,16, p < 0,003$). Les résultats sur l'écosystème terrestre tendent donc à démontrer que plusieurs siècles après que les activités aient cessé les ETMs sont toujours accessibles

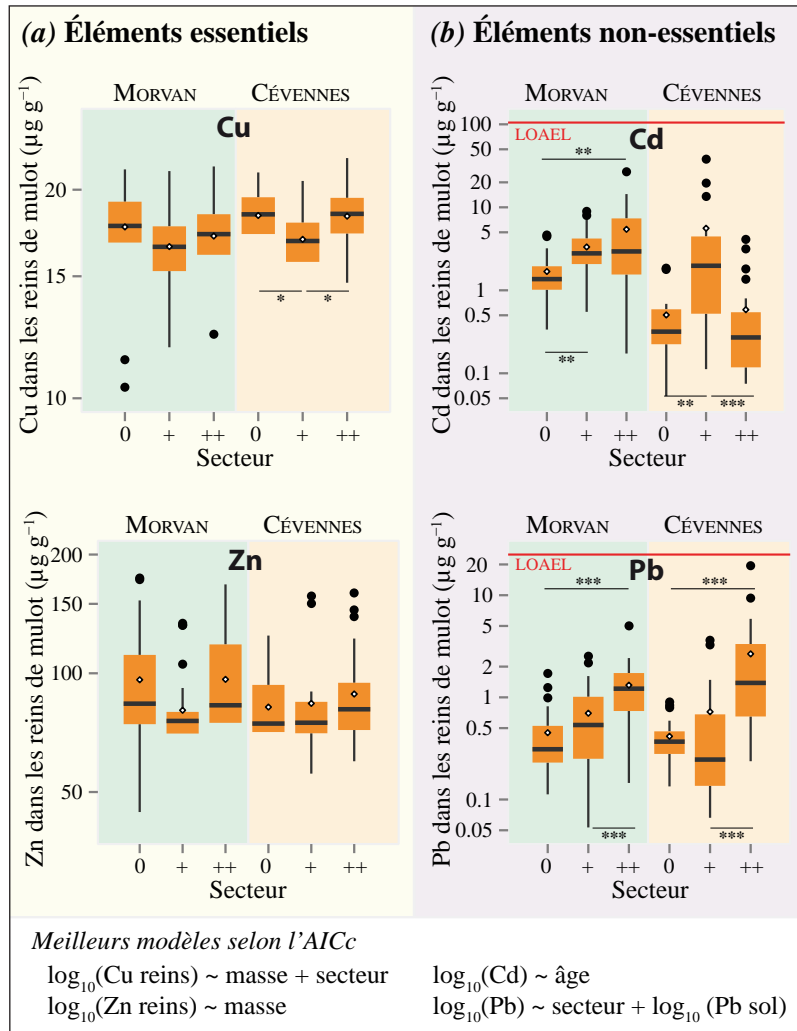


Figure 13 - Distribution des concentrations en ETMs dans les reins de mulot (poids sec) pour les six secteurs étudiés.

(a) Distribution pour les éléments essentiels Cu et Zn.

(b) Distribution pour les éléments non-essentiels. Les LOAELs sont précisées, en rouge, pour le Cd (Shore & Douben, 1994b) et pour le Pb (Shore & Douben, 1994a). Les sites de référence sont notés 0 et les sites miniers/métallurgiques sont indiqués en fonction de leur degré de contamination supposé : moyen +, ou fort ++.

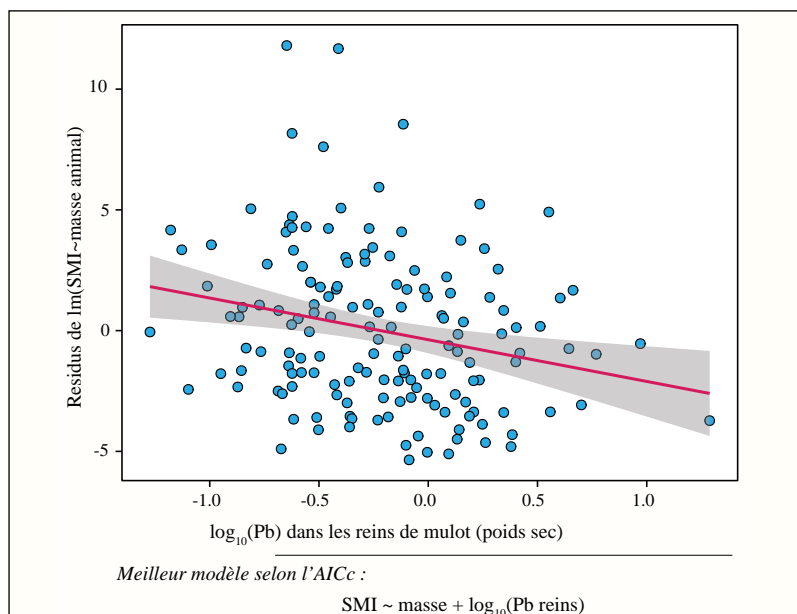


Figure 14 - Indice de condition corporelle (SMI) en fonction de la concentration en Pb (\log_{10}) dans les reins des mulots des Cévennes et du Morvan (n=157).

Le meilleur modèle obtenu en suivant le critère d'Akaike (AICc) est également précisé (Camizuli et al., en préparation). Les bandes grises correspondent aux intervalles de confiance de la régression linéaire à 95%.

pour les animaux, avec des concentrations en Cd et en Pb augmentant en fonction de la concentration dans les sols. Toutefois il existe également des facteurs confondants comme le type d'habitat ou l'accès à la nourriture (Tête et *al.*, 2013). Les résultats hétérogènes obtenus, en termes de toxicité, suggèrent que les concentrations en ETMs ne sont pas assez

élevées pour induire des effets mesurables au niveau de l'AF. Cependant la relation négative entre les concentrations en Pb dans les reins et les indices de condition soulèvent la question des conséquences de ces anciennes activités sur les organismes vivants. Une approche histologique permettrait de préciser les effets toxiques directement sur les organes.

CONCLUSION

L'approche développée ici contribue à éclairer sous un jour nouveau l'impact des anciens sites miniers et métallurgiques. Aujourd'hui, de nombreux réseaux de surveillance existent dans les zones urbaines et industrielles. Ces sites à fort degré d'anthropisation sont unanimement reconnus comme des environnements contaminés par l'homme. Par opposition, les zones aujourd'hui protégées et dites naturelles sont le plus souvent vues comme des lieux exempts de tout impact anthropique, tout au moins concernant la contamination métallique, et de ce fait, sont bien moins surveillées. Avec le temps, la végétation arborée se développe, l'héritage anthropique est alors masqué et les sites oubliés par la mémoire collective. Pourtant la pression environnementale générée par ces anciens sites miniers ou métallurgiques est réelle. Dans un tel contexte, il est compliqué de modéliser de façon précise la réponse de l'environnement face à ces contraintes, compte tenu des nombreux paramètres impliqués. Notre démarche, volontairement pluridisciplinaire et englobant des compartiments (terrestre et aquatique) rarement associés, apporte des éléments de réponse originaux.

En ce qui concerne la localisation des sites, les méthodes statistiques issues de la prospection minière actuelle permettent de cibler les zones où des anciennes activités minières ont eu lieu, mais également renseignent sur les substances exploitées lorsque cette information n'est pas disponible. Ces méthodes permettent un gain de temps et de moyen, mais il ne s'agit que d'une étape préliminaire. Elle ne remplace en rien la reconnaissance sur le terrain, et éventuellement la mise en place de fouilles archéologiques. Les données BRGM sont disponibles sur toute la France et cette méthode pourrait être appliquée à d'autres zones.

Les métaux qui résultent d'activités minières et métallurgiques anciennes, persistent dans les écosystèmes longtemps après la fin de ces activités. Certains peuvent être présents à des niveaux extrêmement

élevés. Ils sont susceptibles de s'accumuler dans les organismes terrestres ou aquatiques, tout du moins pour ce qui concerne les éléments non-essentiels.

Les indices de condition et l'asymétrie fluctuante ont été utilisés pour étudier les effets négatifs sur les organismes vivants. Une importante instabilité de développement a été détectée dans les truites des Cévennes qui sont au contact de sédiments de rivière qui peuvent être localement très contaminés. De plus, les indices de condition des mulots et des truites sont négativement corrélés aux concentrations en plomb mesurées dans les organes des animaux. Les impacts sur la condition générale des individus, voire sur la qualité de leur développement, ont donc pu être mis en évidence. Les études combinant des compartiments terrestre et aquatique sont rares. La combinaison de ces deux écosystèmes apporte des informations complémentaires. L'étude de mulots sylvestres renseigne sur la biodisponibilité de la contamination accumulée dans les sols par dépôt atmosphérique ou par stockage direct des déchets miniers et métallurgiques tandis que l'étude de bryophytes et de truites sauvages renseigne essentiellement sur les transferts liés au lessivage des sites miniers et des sols contaminés environnants.

Ces résultats suggèrent que les ETMs émis par les activités minières et métallurgiques persistent dans les écosystèmes longtemps après que ces activités aient cessé. Avec le temps, ces anciennes émissions sont en partie stabilisées et leurs effets sur le vivant sont moins visibles que s'agissant d'émissions récentes, du moins, pour les quatre ETMs étudiés ici. La faible quantité réactive est néanmoins susceptible de s'accumuler dans les organismes vivants actuels et d'avoir un impact sur leur condition générale. La question de la durée des effets se rapportant aux émissions actuelles (dont la magnitude n'est pas comparable) doit donc être prise en compte pour une gestion pérenne des écosystèmes sur le long terme.

Remerciements

Cette thèse a été financée par le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche (allocation de recherche). Les analyses ont été financées par le FEDER, la région Bourgogne, un BQR Université de Bourgogne, et le Parc national des Cévennes. Il a été soutenu par le Parc naturel régional du Morvan et le Centre archéologique européen de Bibracte.

BIBLIOGRAPHIE

- ALIBERT P., BEIS P., BERMOND A., BOHARD B., CAMIZULI E., DELIVET G., GOURAULT C., GUILLAUMET J.P., HAMM G., LABANOWSKI J., LACHICHE C., LOSNO R., MONNA F., PEREIRA A., PETIT C., REVELLI P., SCHEIFLER R., VAN OORT F., 2011. Le projet identification et impact des sites miniers abandonnés sur les écosystèmes aquatiques et terrestres actuels. *Bourgogne Nature*, 13, 35-37.
- ALMEIDA J.S., MELETTI P.C., MARTINEZ C.B.R., 2005. Acute effects of sediments taken from an urban stream on physiological and biochemical parameters of the neotropical fish *Prochilodus lineatus*. *Comparative Biochemistry and Physiology Part C: Toxicology & Pharmacology*, 140, 3-4, 356-363.
- BAILLY G., VADAM J.-C., VERGON J.-P., 2004. Guide pratique d'identification des bryophytes aquatiques. Ministère de l'Écologie et du Développement Durable, 158 p.
- BEERNAERT J., SCHEIRS J., VAN DEN BRANDE G., LEIRS H., BLUST R., DE MEULENAER B., VAN CAMP J. & VERHAGEN R., 2008. Do wood mice (*Apodemus sylvaticus* L.) use food selection as a means to reduce heavy metal intake? *Environmental Pollution*, 151, 3, 599-607.
- BURNHAM K.P., ANDERSON D.R., 2002. Model Selection and Multi-Model Inference: A Practical Information-Theoretic Approach, Springer, 512 p.
- CAMIZULI E., 2013. Impact des anciens sites miniers et métallurgiques sur des écosystèmes terrestre et aquatique actuel - Etude comparative de deux moyennes montagnes : le Morvan et les Cévennes. Thèse Université de Bourgogne, 350 p.
- CAMIZULI E., MONNA F., SCHEIFLER R., AMIOTTE-SUCHET P., LOSNO R., BEIS P., BOHARD B., CHATEAU C., ALIBERT P., 2014. Impact of trace metals from past mining on the aquatic ecosystems: a multi-proxy approach in the Morvan (France). *Environmental Research*, 134, 410-419.
- CAMIZULI E., SCHEIFLER R., MONNA F., GOURAULT C., HAMM G., LOSNO R., GARNIER S., LACHICHE C., DELIVET G., CHATEAU C., ALIBERT P. (en préparation). What legacy from ancient mining site? When past contamination impacts modern environment.
- CARRANZA E.J.M., 2009. Geochemical anomaly and mineral prospectivity mapping in GIS. Handbook of exploration and environmental geochemistry, n°11, Amsterdam, 351 p.
- CARRANZA E.J.M., 2011. Analysis and mapping of geochemical anomalies using logratio-transformed stream sediment data with censored values. *Journal of Geochemical Exploration*, 110, 2, 167-185.
- CCME, 2002. Canadian environmental quality guidelines - Summary Table. Technical report, Canadian Council of Ministers of the Environment.
- CENCI R.M., 2000. The use of aquatic moss (*Fontinalis antipyretica*) as monitor of contamination in standing and running waters: limits and advantages. *Journal of Limnology*, 60, 53-61.
- CHENG Q., AGTERBERG F.P., BALLANTYNE S.B., 1994. The separation of geochemical anomalies from background by fractal methods. *Journal of Geochemical Exploration*, 51, 2, 109-130.
- EISLER R., 2000. Handbook of chemical risk assessment: Health Hazards to Humans, Plants, and Animals. Volume 1, Metals. Lewis Publishers, 738 p.
- ELBAZ-POULICHET F., MORLEY N.H., BECKERS J.-M., NOMERANGE P., 2001. Metal fluxes through the Strait of Gibraltar: the influence of the Tinto and Odiel rivers (SW Spain). *Marine Chemistry*, 73, 3-4, 193-213.
- ESCARRÉ J., LEFÈVRE C., RABOYEAU S., DOSSANTOS A., GRUBER W., CLEYET MAREL J., FRÉROT H., NORET N., MAHIEU S., COLLIN C., VAN OORT F., 2011. Heavy Metal Concentration Survey in Soils and Plants of the Les Malines Mining District (Southern France): Implications for Soil Restoration. *Water, Air, & Soil Pollution*, 216, 1, 485-504.
- FRI TSCH C., COSSON R.P., COEURDASSIER M., RAOUL F., GIRAUDOUX P., CRINI N., DE VAUFLEURY A., SCHEIFLER R., 2010. Responses of wild small mammals to a pollution gradient: Host factors influence metal and metallothionein levels. *Environmental Pollution*, 158, 3, 827-840.
- GARRETT R.G., REIMANN C., SMITH D.B., XIE X., 2008. From geochemical prospecting to international geochemical mapping: a historical overview. *Geochemistry: Exploration, Environment, Analysis*, 8, 3-4, 205-217.
- GOURAULT C., 2009. Les anciennes mines du Haut Morvan. Méthode d'inventaire, essai de caractérisation, Mémoire de Master 2, Dijon : Université de Bourgogne, 117 p.
- JALALI M., KHANLARI Z.V., 2008. Effect of aging process on the fractionation of heavy metals in some calcareous soils of Iran. *Geoderma*, 143, 1-2, 26-40.
- JOUFFROY-BAPICOT I., PULIDO M., BARON S., GALOP D., MONNA F., LAVOIE M., PLOQUIN A., PETIT C., BEAULIEU J.-L., RICHARD H., 2007. Environmental impact of early palaeometallurgy: pollen and geochemical analysis. *Vegetation History and Archaeobotany*, 16, 4, 251-258.
- LAMBERT A., 2005. Les données géochimiques et alluvionnaires de l'Inventaire minier du territoire national. Constitution d'une base de données exhaustive., Rapport final brgm, RP-53546-FR, Orléans : BRGM, 115 p.
- LINDE A.R., SANCHEZ-GALAN S., IZQUIERDO J.I., ARRIBAS P., MARANON E., GARCÍA-VÁZQUEZ E., 1998. Brown trout as biomonitor of heavy metal pollution: effect of age on the reliability of the assessment. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 40, 1-2, 120-125.
- LYNDEN G.W.J. VAN, MANTEL S., VAN OOSTRUM A., 2004. Guiding principles for the quantitative assessment of soil degradation - with a focus on salinization, nutrient decline and soil pollution. Rome : Food and Agriculture Organization of the United Nations, 73 p.
- MACKLIN M.G., HUDSON-EDWARDS K.A., DAWSON E.J., 1997. The significance of pollution from historic metal mining in the Pennine orefields on river sediment contaminant fluxes to North Sea. *Science of the Total Environment*, 194/195, 391-397.
- MARTINS R.J.E., FREITAS O.M.M., VILAR V.J.P., BOAVENTURA R.A.R., 2012. Accumulation and release of Pb(II) in aqueous solution by aquatic mosses (*Fontinalis antipyretica*), *International Journal of Environment and Waste Management*, 9, 3, 270-283.
- MARVIN C., GRAPENTINE L., PAINTER S., 2004. Application of a Sediment Quality Index to the Lower Laurentian Great Lakes. *Environmental Monitoring and Assessment*, 91, 1-3, 1-16.

- MONNA F., PETIT C., GUILLAUMET J.-P., JOUFFROY-BAPICOT I., BLANCHOT C., DOMINIK J., LOSNO R., RICHARD H., LEVEQUE J., CHATEAU C., 2004. History and environmental impact of mining activity in Celtic Aeduan territory recorded in a peat bog (Morvan, France). *Environmental Science and Technology*, 38, 3, 665-673.
- MONNA F., CAMIZULI E., REVELLI P., BIVILLE C., THOMAS C., LOSNO R., SCHEIFLER R., BRUGUIER O., BARON S., CHATEAU C., PLOQUIN A., ALIBERT P., 2011. Wild Brown Trout Affected by Historical Mining in the Cévennes National Park, France. *Environmental Science & Technology*, 45, 16, 6823-6830.
- MONNA F., CAMIZULI E., NEDJAI R., CATTIN F., PETIT C., GUILLAUMET J.-P., JOUFFROY-BAPICOT I., BOHARD B., CHATEAU C., ALIBERT P., 2014. Tracking archaeological and historical mines using mineral prospectivity mapping. *Journal of Archaeological Science*, 49, 57-69.
- PALMER A., STROBECK C., 1986. Fluctuating Asymmetry: Measurement, Analysis, Patterns. *Annual Review of Ecology and Systematics*, 17, 391-421.
- PALMER A.R., 1994. Fluctuating asymmetry analyses: a primer, in : Markow, T. A. (ed) *Developmental instability, its origins and evolutionary implications*. Dordrecht, Netherlands : Kluwer Academic Publishers, 335-364.
- PALMER A.R., STROBECK C., 2003. Fluctuating asymmetry analyses revisited, in *Developmental instability: causes and consequences*. Oxford University Press, Oxford : M. Polak, 279-319.
- PEIG J., GREEN A.J., 2009. New perspectives for estimating body condition from mass/length data: the scaled mass index as an alternative method. *Oikos*, 118, 12, 1883-1891.
- PEIG J., GREEN A.J., 2010. The paradigm of body condition: a critical reappraisal of current methods based on mass and length. *Functional Ecology*, 24, 6, 1323-1332.
- RAMADE F., 2007. Introduction à l'écotoxicologie : fondements et applications. Éditions Tec & Doc, Lavoisier, 618 p.
- RAMADE F., 2008. Dictionnaire encyclopédique des sciences de la nature et de la biodiversité. Dunod, 726 p.
- SHORE R.F., DOUBEN P.E.T., 1994 a. Predicting Ecotoxicological Impacts of Environmental Contaminants on Terrestrial Small Mammals. In Ware, G. W. (ed) *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*. Springer New York, *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology*, 134, 49-89.
- SHORE R.F., DOUBEN P.E.T., 1994 b. The ecotoxicological significance of cadmium intake and residues in terrestrial small mammals. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 29, 1, 101-112.
- TAMAS C.-G., 2004. Caractérisation minéralogique des mines anciennes du Morvan. Rapport post-doctoral, Dijon : Université de Bourgogne, 70 p.
- TÊTE N., FRITSCH C., AFONSO E., COEURDASSIER M., LAMBERT J.-C., GIRAUDOUX P., SCHEIFLER R., 2013. Can Body Condition and Somatic Indices be Used to Evaluate Metal-Induced Stress in Wild Small Mammals? *PLoS ONE*, 8, 6, e66399.
- VELICKOVIC M., 2007. Measures of the developmental stability, body size and body condition in the black-striped mouse (*Apodemus agrarius*) as indicators of a disturbed environment in northern Serbia. *Belgian Journal of Zoology*, 137, 2, 147-156.