

Sur les traces du mercure au fil de l'eau, des Andes à l'Amazonie.

Laurence Maurice

► To cite this version:

Laurence Maurice. Sur les traces du mercure au fil de l'eau, des Andes à l'Amazonie.. Planète et Univers [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2008. tel-00288015

HAL Id: tel-00288015

<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00288015>

Submitted on 13 Jun 2008

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.

Sur les traces du mercure au fil de l'eau, des Andes à l'Amazonie

*Mémoire en vue de l'obtention de l'Habilitation à Diriger des Recherches
Laurence MAURICE*

Chargée de Recherches à l'Institut de Recherche pour le Développement



Laboratoire des Mécanismes et Transferts en Géologie (LMTG)
OMP
UMR 5563 CNRS – IRD – Université de Toulouse
14, Avenue E. Belin
F-31400 Toulouse

e-mail: maurice@lmtg.obs-mip.fr
☎ : +33 5 61 33 26 68
📠 : +33 5 61 33 25 61

Juin 2007

A Téo, Willy et BB

TABLE DES MATIERES

Remerciements	5
AVANT PROPOS	6
OU 12 ANS D'ACTIVITES EN QUELQUES LIGNES.....	6
COMPRENDRE LES DYNAMIQUES HYDROLOGIQUES ET SEDIMENTAIRES.....	10
Zones de production : les Andes	10
Zones de stockage : les plaines d'inondation	11
Contrôle climatique	14
LE MERCURE : ENTRE MYTHES ET REALITE, ENTRE HYPOTHESES ET EXPERIMENTATIONS, ENTRE TERRAIN ET LABORATOIRE.....	16
Quelques chiffres et quelques généralités	16
Les sources	17
Les sources naturelles	17
Les sources d'origine anthropique.....	19
Apports et transport globaux	21
Etat des connaissances en Amazonie, en 1995	22
Apports andins.....	23
Transfert et dépôt - Rôle des plaines d'inondation	25
Premiers bilans	31
Impacts sur la santé humaine	33
QUE CHERCHE-T-ON À SAVOIR ET COMPRENDRE MAINTENANT ?.....	37
Quelle est la part des activités humaines dans les concentrations en mercure des compartiments biotiques et abiotiques de notre planète ?.....	37
Quels sont les mécanismes naturels qui influencent la dynamique du mercure dans l'environnement ?.....	38
QUELS NOUVEAUX OUTILS POUR DE NOUVELLES REPONSES ?.....	41
PERSPECTIVES.....	45
Références bibliographiques	47
Curriculum Vitae.....	52
Liste de publications, ouvrages et communications.....	57
Rapports divers.....	64

Encadrement d'étudiants	65
Participation à des jurys de thèse	69
Activités d'enseignement	70
Programmes de recherche actuels	71
ANNEXE	72
5 PUBLICATIONS MAJEURES	72

Remerciements

C'est avec une sincère et profonde reconnaissance que j'ai le plaisir de remercier toutes les personnes qui m'ont accompagnée au cours de ces années de recherche initiées à l'Ifremer puis au sein de l'IRD à Montpellier, La Paz et Brasilia, pour se poursuivre aujourd'hui fructueusement au LMTG.

A La Seyne/Mer, Nantes, Brest et Marseille, pour ces 3 années de thèse qui m'ont ouvert les yeux et l'esprit à l'interdisciplinarité et aux thématiques environnementales.

De ces douze années de recherche dans le cadre de l'IRD, je tiens à remercier sincèrement toutes les personnes qui ont eu confiance en moi et m'ont offert la possibilité de coordonner des projets de recherche passionnants, dans des pays fascinants et avec des collaborateurs, on ne peut plus attachants.

Pour ces 6 années en Bolivie, pour ce premier enfant, pour cette première autonomie, pour cette première collaboration internationale et fructueuse, pour ces premiers pas sur la thématique du mercure en Amazonie, merci.

Pour ces 3 années au Brésil, pour ces collaborations mêlées d'excellence scientifique et d'amitié, pour ces jours et ces nuits passées dans des paysages extraordinaires, dans ces lacs aux eaux calmes et secrètes, sur ces fleuves longs et peu tranquilles, dans ces environnements merveilleux habités d'âmes attachantes, merci.

Pour ces 2 années à Toulouse, pour ces nouvelles collaborations et pour la cristallisation des anciennes, pour ces nouveaux projets et cette nouvelle confiance, merci.

A (dans l'ordre alphabétique et sans désordre émotionnel) : Rolf Aalto, Agnès, Lucia Alanoca, David Amouroux, Andrea, Anthony Aufdenkampe, Philippe Behra, Bertha, Beto, Geraldo R. Boaventura, Bosco, Pascal Bourgoïn, Brigitte, Jacques Callède, Caco, Carole, Cecilia, Jaime Chincheros, Gérard Cochonneau, Marina Coquery, Daniel Cossa, Philippe Courau, Daniela, Frédérique Debarro, Tom Dunne, Bernard Dupré, Eraldo, Poliana Dutra Maia, Edith, Elsit, Naziano Filizola, Pascal Fraizy Christian France-Lanord, , Bernard Francou, Florence, Jérôme Gaillardet, Jean-Rémy Guimarães, Valdemar Guimarães, Gérard Hérail, Pascal Kosuth, Christelle Lagane, Maïté, Jean-Michel Martinez, Nigma, Irma Quiroga, Jean-Loup Guyot, Laure Laffont, Benoît Le Guennec, Marc Lucotte, Olaf Malm, Donna Mergler, Patricia Moreira-Turcq, Eurides de Oliveira, Oscar, Bernard Pouyau, Bernadette Quémerais, Irma Quiroga, Jorge Quintanilla, Rafaela, Isabelle Rhéault, Robert & Ghislaine, Rolando, Axel Romaña, Josyane Ronchail, Pierre Sabaté, Sabrina, Frédérique et Patrick Seyler, Francis Sondag, Sonia, Jeroen Sonke, Evelyn Taucer, Manu Tessier, Bénédicte Thouvenin, Toninho, Philippe Vauchel, Jérôme Viers, Téo et Willy.

« Um grande abraço » à toutes les personnes qui vivent le quotidien de ces rivières amazoniennes et qui ont contribué à la réussite de notre réseau d'observation, et accompagné notre travail de terrain sous des horizons poétiques et exotiques.

A vous tous, je vous exprime ma profonde gratitude et reconnaissance.

AVANT PROPOS

OU 12 ANS D'ACTIVITES EN QUELQUES LIGNES

A l'issue de ma thèse de doctorat effectuée à l'Ifremer, sur la « Modélisation du cycle de dégradation bactérienne de la matière organique - Application à la zone de turbidité maximale de l'estuaire de la Loire », j'ai continué à travailler dans le même département (Laboratoire Chimie des Contaminants et Modélisation) et rédigé les Livres Blancs sur la qualité des eaux de l'estuaire de la Gironde. Aucune proposition concrète de poste ne s'ouvrant dans cet organisme qui m'avait pourtant initiée au métier de chercheur et sensibilisée au problème de la contamination des eaux, j'ai eu l'opportunité d'appliquer mes connaissances pendant près d'une année dans un bureau d'ingénierie conseil en environnement. L'expérience a été très enrichissante car il a fallu allier à l'expertise scientifique, des contraintes politiques et sociales particulièrement sévères et restrictives. Ces contraintes politiques m'ont convaincue de continuer dans la voie de la recherche et non uniquement de l'expertise et c'est avec une immense joie que j'ai appris en 1994 que ma candidature à l'Orstom à l'époque, avait été retenue. La gestion des contraintes politiques est en effet une voie à l'ouverture des démarches diplomatiques, indispensable à tout travail en coopération.

C'est donc au sein de la première équipe HIBAM « Hidrologia da Bacia Amazônica », dont le programme était coordonné par Jean-Loup Guyot, que j'ai été accueillie. L'équipe s'est considérablement agrandie et nos projets de recherche initiés en Bolivie puis au Brésil, se sont élargis au Pérou et en Equateur, pour couvrir aujourd'hui la majeure partie du bassin Amazonien.

Le travail de recherche en coopération *pour et sur le développement* présente l'avantage de pouvoir s'engager parallèlement à un axe de recherche fondamental sur des problématiques régionales et/ou nationales, dans le domaine de nos compétences. C'est pour cette raison que les objectifs du programme HIBAM entre 1995 et 2001, lors de mon affectation en Bolivie, s'orientaient selon deux axes de recherche :

- un premier axe sur le **suivi géochimique** des éléments majeurs, nutritifs et trace sur l'ensemble du bassin amazonien depuis ses sources andines, et
- un second axe consacré à une problématique environnementale importante et non étudiée en Bolivie, celle de la **contamination environnementale par le mercure**, largement utilisé dans l'exploitation de l'or alluvial et natif.

L'objectif du premier axe est de comprendre, au travers des connaissances acquises par le suivi des **éléments majeurs, nutritifs et métalliques, l'origine et le comportement de ces éléments depuis les Andes jusqu'à l'Amazone**. L'intérêt scientifique porte principalement sur l'analyse des éléments trace car ces éléments n'avaient fait l'objet d'aucun suivi sur le haut bassin du rio Madeira, des massifs andins jusqu'à la frontière brésilienne, et sont porteurs d'informations quant à l'origine des particules charriées et des terrains traversés ; c'est le cas, en particulier, du strontium, de l'arsenic, du plomb, du rubidium, ces éléments pouvant servir de traceurs de séries géologiques ; plus tard, en collaboration avec l'IPGP, l'analyse de certains isotopes a permis de déterminer les temps de transfert des particules dans les différentes unités géomorphologiques du système.

L'objectif du second axe est d'établir un diagnostic de la contamination de l'écosystème aquatique par le mercure, dans le bassin amazonien bolivien pour commencer, et d'étudier la distribution et l'évolution des teneurs en mercure dissous et particulaire en Amazonie bolivienne et brésilienne.

Ce second volet de mes recherches développées en Bolivie a été en grande partie financé par la Banque Mondiale, au travers du FONAMA, Fondo Nacional para el Medio Ambiente, de 1998 à 2001. Ce projet dédié à la contamination par le mercure du bassin du Rio Beni et à ses impacts sur l'environnement et la santé humaine, et dont j'ai assuré la coordination a également permis la signature d'accord de coopération avec l'UMSA (La Paz), l'UFRJ (Univ. Federal Rio de Janeiro), le LPCM (URA CNRS de Villefranche /Mer) et l'UQAM (Montréal) ainsi que de publications communes.

Cette thématique continue de vivre en Bolivie et fait l'objet actuellement de recherches plus approfondies notamment sur les processus de méthylation dans les lacs d'inondation mais également au niveau des implications sur la santé des populations exposées.

La conjonction de ces objectifs présente donc l'avantage de travailler sur deux volets complémentaires de recherche scientifique et d'apporter des éléments de réponse à des problématiques des pays d'accueil. Cette conjonction permet également de proposer ce projet à une ou plusieurs institutions internationales, finançant des programmes de recherche en coopération avec des pays en voie de développement.

Ainsi, l'étude du cycle biogéochimique du mercure dans l'environnement amazonien passe par une connaissance approfondie des dynamiques hydrologiques et sédimentaires des rivières et fleuve étudiés, réalisée en collaboration avec les membres de l'équipe ainsi que nos partenaires du Nord et du Sud compétents sur ces sujets.

A l'issue de ma première affectation en Bolivie, j'ai été nommée en août 2001, pour assurer la coordination, pendant 3 ans, de ce même programme de recherche HyBAM à Brasilia (Brésil) me permettant ainsi d'étendre et de développer mes activités plus particulièrement sur une zone d'inondation du cours principal de l'Amazone dont l'étude des dynamiques hydrologique et sédimentaire avait été engagée dès 1999 par mes prédécesseurs. L'équipe sur place regroupait au total 12 participants français (5 CR, 2 IR, 2 VI, 3 doctorants) et 23 participants brésiliens dont 12 chercheurs. Durant cette période, j'ai consacré une grande partie de mes activités à l'identification des besoins de nos partenaires brésiliens (réseau de données nouvelles principalement géochimiques, formation, financements, etc...), à la rédaction de projets de recherche en coopération et à leur implication scientifique au sein de nos programmes.

L'augmentation de partenaires universitaires dans le programme HIBAM au cours de ces dernières années est relativement explicite (Fig. 1) et a permis de répondre aux critiques du CNPq, Conselho Nacional de Pesquisa, émises lors de ses premières évaluations.

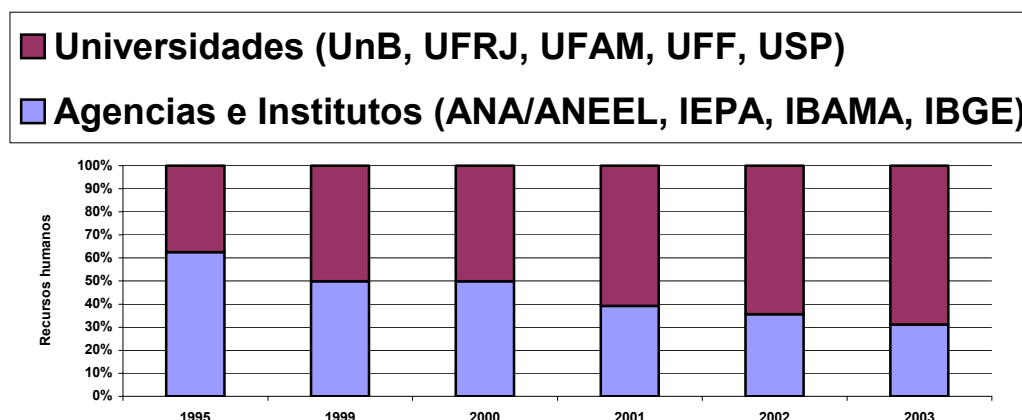


Figure 1. Distribution des partenaires universitaires et institutionnels Brésiliens dans le programme HIBAM entre 1995 et 2003.

Les thématiques de recherche développées au cours de ces années se sont orientées autour des axes suivants :

- Étude des dynamiques hydrologique et sédimentaire d'un système de lacs d'inondation dans une zone pilote ("várzea do Lago Grande de Curuai") du cours moyen de l'Amazonie
- Rôle des plaines d'inondation dans le transport, le piégeage, la spéciation et le relargage des métaux trace et du mercure en particulier dans le cours moyen de l'Amazonie.
Importance des conditions rédox en cours dans certains lacs dans les processus de spéciation géochimique.
Rôle de la production et de la dégradation de la matière organique dans les eaux de surface et les sédiments dans les processus de spéciation du mercure.
- Bilan des transferts géochimiques (phases dissoute et particulaire) entre les eaux du fleuve et les systèmes de lacs d'inondation (à partir de l'étude fine d'un site pilote : várzea de Lago Grande de Curuai)
- Rôle des activités d'origine anthropique dans cette géodynamique (élevage intensif, déforestation, etc...)

Ces années m'ont permis en particulier d'assurer l'organisation et la coordination de 10 campagnes de terrain le long du fleuve Amazone, de ses tributaires et dans des systèmes de lacs d'inondation, en coopération avec des partenaires français et brésiliens. Au réseau de suivi hydrosédimentaire déjà en place dans les lacs d'inondation de Curuai depuis 1999, j'ai superposé en fonction des compétences, des moyens et de la localisation des observateurs sur place, un réseau de suivi mensuel de la qualité des eaux de surface et de la nappe phréatique en 7 points de mesure. Ce réseau, initié en juin 2002, a continué de fonctionner jusqu'en décembre 2006.

Ces précieuses années m'ont confirmé le rôle de la diplomatie, de l'excellence scientifique et des relations amicales dans le travail en coopération avec nos partenaires ainsi qu'avec les grandes institutions du Sud.

Mon programme de recherche s'est toujours intégré aux grandes **questions scientifiques** du programme de recherche HyBAm « Hydrogéodynamique actuelle du bassin Amazonien » développé dans le cadre de l'UR 154 rattachée aujourd'hui à l'UMR LMTG, et qui sont :

1. *Quelles sont les dynamiques d'érosion, d'altération, de piégeage et d'exportation de matières dissoutes et particulières dans tout le bassin amazonien ?*
2. *Quels sont les impacts de la variabilité climatique et de la pression d'origine anthropique dans ces transferts (érosion, transport, dépôt) ?*
3. *Quel est le rôle des plaines d'inondation dans les bilans hydrique, sédimentaire et géochimique ainsi que dans les processus de transfert de matières par le fleuve Amazone et ses tributaires depuis les zones de piémont andin jusqu'à l'Océan Atlantique ?*

Puis 2004 a été une année particulièrement intéressante et a marqué un cap important puisqu'elle a signé mon retour dans l'un des laboratoires de recherche en géodynamique les plus renommés en France, le LMTG. Ce cap signifie l'ouverture de nouvelles collaborations, le montage de nouveaux projets de recherche avec des équipes françaises tout en maintenant un partenariat fort avec nos collègues d'Amérique Latine.

C'est également une période charnière importante pour le LMTG puisqu'en pleine phase non seulement de bilan mais aussi de rédaction du nouveau plan quadriennal, phases

auxquelles j'ai apporté à mon échelle, un soutien sincère et contribué à la constitution d'une nouvelle équipe sur le thème des "cycles externes"; un effort particulier a été proposé sur l'élément mercure, effort qui a été encouragé l'année suivante par le recrutement d'un jeune chercheur CNRS (Jeroen Sonke), actuellement un de mes principaux collaborateurs.

Aujourd'hui, mes perspectives scientifiques dans le cadre de l'UR 154 et de l'UMR LMTG, sont les suivantes:

- Une détermination plus précise de la part des sources naturelle et anthropique dans la distribution spatiale et la variabilité temporelle du mercure dans le bassin amazonien; l'idée étant d'utiliser le fractionnement isotopique de Hg dans différents compartiments clés pour tracer les origines de cet élément. Cet axe de recherche a fait en 2006 l'objet d'un financement dans le cadre du programme EC2CO-CYTRIX (projet dont j'assure la coordination).
- La poursuite de l'étude de l'historique de la contamination par le mercure à l'échelle séculaire et également à l'échelle géologique, par l'analyse de carottes de sédiments dans des systèmes d'inondation du bassin de l'Amazonie aux caractéristiques géomorphologiques très contrastées.

A plus long terme,

- L'étude des processus biogéochimiques de transformation et de spéciation du mercure dans l'estuaire de l'Amazonie – Quantification des apports à l'Océan. Cet axe de recherche fait l'objet d'un financement ANR dans un programme plus global sur l'estuaire de l'Amazonie et la zone côtière (Projet AMANDES) et d'une collaboration avec le LEGOS et l'Ifremer.
- L'étude de nouvelles plaines d'inondation au Pérou, et de nouveaux systèmes de piégeages sédimentaires. Quantification de ces piégeages, rôle de la tectonique et du climat, et importance de ces zones dans les flux de mercure apportés au Rio Solimões. A ce jour, aucune information précise tant sur les bilans sédimentaires que sur les bilans en Hg n'est disponible malgré l'importance de ce tributaire (en termes de flux solides et de taux de dépôt).

COMPRENDRE LES DYNAMIQUES HYDROLOGIQUES ET SEDIMENTAIRES

La compréhension du cycle du mercure dans un bassin versant nécessite au préalable une connaissance approfondie de l'hydrologie et du devenir des particules associées à l'eau transportée. En effet, la distribution des formes chimiques du mercure dans un système fluvial ainsi que leur spéciation, dépendent des dynamiques hydrologiques et sédimentaires.

Dans les tributaires andins étudiés au cours de mes années de recherche en Bolivie, il apparaît clairement que dans les « eaux blanches », le mercure est principalement transporté sous forme particulaire. Dans la rivière Beni, le mercure particulaire représente en moyenne 82% de Hg total et ce pourcentage s'élève à 99% au cours des premières crues de l'année hydrologique.

D'un point de vue géomorphologique, on distingue généralement 3 zones (Schumm, 1977) d'amont en aval :

- Une « zone de production », située dans les reliefs d'où les sédiments sont arrachés et de nombreux éléments chimiques lessivés. Généralement, cette partie supérieure des cours d'eau présente une forte pente, une largeur réduite, un débit faible mais un courant fort. Les processus d'érosion y sont très intenses.
- Une « zone de transfert », partie intermédiaire du réseau où la pente et la vitesse diminuent ; aux blocs des cours d'eau supérieurs succèdent des fonds constitués de galets et graviers. Au fur et à mesure que la pente et la vitesse diminuent, les processus de sédimentation deviennent prépondérants par rapport à l'érosion.
- Une « zone de stockage », plus à l'aval, dans la partie du réseau hydrographique à pente extrêmement faible, une grande partie des matériaux transportés peut se déposer formant de larges plaines alluviales inondables.

Le fonctionnement ne se réduit pas à de simples échanges d'eau et d'éléments organiques et minéraux, temporisés par des temps de stockage plus ou moins prolongés, les zones de stockage sont des zones à forte production biologique et le siège de transformations biogéochimiques de nombreux éléments. Le fonctionnement du fleuve dépend de sa plaine alluviale et réciproquement le fonctionnement de la plaine dépend de la dynamique du fleuve. Cette interdépendance du cours d'eau et de sa plaine alluviale est à la base du concept d'*hydrosystème fluvial*.

ZONES DE PRODUCTION : LES ANDES

Le domaine andin couvre 23% de la superficie du bassin du Rio Madeira. La production de sédiments à partir de l'érosion de la chaîne andine Bolivienne a été étudiée en détails par Guyot (1993). Cependant, en fonction des années hydrologiques, le flux de sédiments arrachés des sous-bassins andins est très variable ; en Bolivie, les apports andins dans le Rio Beni par exemple, peuvent varier de 70 Mt.an⁻¹ à plus de 400 Mt.an⁻¹. Le taux d'érosion mécanique moyen de la chaîne andine de Bolivie est estimé à 3200 t.km⁻².an⁻¹ (Guyot, 1993).

Leur variabilité temporelle et le rôle du climat dans ce processus continuent de faire l'objet de recherches grâce à la mise en place d'un réseau de suivi hydrologique et sédimentaire sur une vingtaine de stations (dès 1992 en Bolivie et 1995 au Brésil) ; une partie de ce réseau Hybam est actuellement labellisé « ORE », Observatoire Régional en

Environnement.

Dans les zones de production et de transfert des hydrosystèmes, le mercure est majoritairement transporté sous forme particulaire dans les eaux de surface.

ZONES DE STOCKAGE : LES PLAINES D'INONDATION

Dans l'hydrosystème fluvial, plus à l'aval des zones de production et de transfert, se forme une zone de stockage, constituée de larges plaines alluviales inondables (Schumm, 1977). Elles sont formées de l'accumulation de sédiments transportés puis déposés par le cours d'eau. Ultérieurement, ces sédiments peuvent être repris par l'érosion et entraînés à nouveau par le fleuve. Les trajectoires de ces flux bidirectionnels ne se limitent pas à la dimension transversale, sur le plan horizontal de la surface de la plaine alluviale mais concernent aussi la dimension verticale dans la mesure où les eaux peuvent s'infiltrer et circuler à travers les alluvions. Des événements brefs et aléatoires, tels que certaines crues, influencent aussi bien la structure physique de l'hydrosystème mais également les écosystèmes associés. La qualité de l'eau peut aussi se modifier lors du mélange transversal des eaux fluviales et des eaux de la plaine alluviale, par précipitation de métaux lourds comme le mercure ou au contraire par relargage à partir des sédiments.

On peut distinguer dans les zones de stockage du bassin amazonien brésilien, deux systèmes naturels dans lesquels la réduction des vitesses et l'élargissement du lit favorisent le dépôt des particules transportées par les rivières :

- les lacs d'embouchure, ou *rias*, formés en amont de la confluence des grandes rivières d'eaux claires (Tapajós et Xingu) avec l'Amazone (effet longitudinal), et
- les plaines d'inondation des rivières d'eaux noires (Negro) ou d'eaux blanches telles que le Madeira, le Solimões et leurs tributaires, et l'Amazone (effet transversal).

Les « rias », formés à leur embouchure avec l'Amazone, sont caractérisés par des largeurs plus importantes et des vitesses plus lentes que celles de la rivière en amont favorisant ainsi la sédimentation des particules transportées (Sioli, 1975). Dans la partie aval du Rio Tapajós, cette « zone de sédimentation » atteint une centaine de kilomètres de long et de 8 à 12 km de large. La qualité des matières en suspension varie du rio au ria, en passant d'un matériel détritique terrigène à un matériel autochtone essentiellement planctonique (Roulet *et al.*, 1998).

Etant donné que le mercure est essentiellement transporté adsorbé à la fraction fine des particules, une chute des concentrations en mercure a été observée dans le « ria » du Tapajós liée à la sédimentation d'une partie de la charge particulaire (Roulet *et al.*, 1998). En saison sèche, ces mêmes auteurs ont constaté, dans les lacs d'inondation de faibles profondeurs, une augmentation des teneurs en mercure particulaire résultant de la remise en suspension des sédiments de fond.

Les plaines d'inondation (ou 'várzeas' en brésilien)

Dans le bassin amazonien global, la superficie des plaines d'inondation est estimée à plus de 300 000 km², soit environ 5% de la surface du bassin versant. Elles constituent une mosaïque de zones libres d'eau, de forêts inondables et de chenaux interconnectés en permanence ou de manière saisonnière. Ont été recensés approximativement, 6500 lacs de formes et dimensions variées (Melack 1984; Sippel *et al.*, 1991). Ces zones inondables constituent des biotopes particulièrement recherchés par les populations humaines locales en raison de leur grande fertilité et de leur richesse en espèces piscicoles. Pitelli (1984) et Junk

and Piedade (1993) ont été les premiers à mettre en évidence l'importance de ces zones d'inondation en termes de biodiversité et de production biologique. Ces zones sont particulièrement propices à la production primaire et au développement de prairies de macrophytes.

Leur caractéristique majeure est la dynamique hydrologique engendrée par la variation du niveau des eaux du fleuve. En terme de bilans hydrologique et sédimentaire, les zones d'inondation remplissent deux fonctions : celle de stockage temporaire voire définitif des éléments dissous et du matériel particulaire, avec une variation du temps de stockage compris entre quelques mois (eau et substances dissoutes) à quelques centaines d'années (sédiment), et une fonction de relargage des éléments dissous et des particules de la plaine vers le fleuve lors des décrues.

Sur le plan hydrique, il a été estimé que 20 à 30% des eaux de surface de l'amazone transite par les "várzeas". Ces zones permettent d'expliquer en particulier, la forme aplatie de l'hydrogramme de crue de ce fleuve, caractérisé par un débit moyen maximal ($280\,000\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$) équivalent à seulement 4 fois le débit moyen minimal ($70\,000\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$).

Sur le plan sédimentaire, les zones d'inondation jouent un rôle de dépôt d'une partie importante des sédiments arrachés de la cordillère des Andes. Dans les "várzeas" du cours moyen de l'Amazone, les eaux sont retenues quelques mois contre des centaines voire milliers d'années pour les sédiments. On estime que 80% du matériel transporté par l'Amazone transite par les "várzeas" avec un flux entrant estimé à 2 milliards de tonnes par an (Mertes *et al.*, 1996 ; Dunne *et al.*, 1998); en sortie, le flux exporté des "várzeas" vers le cours principal est quant à lui, estimé à 1,5 milliards de tonnes par an, une grande partie des sédiments déposés étant susceptible d'être remise en suspension sous l'action du vent ou par érosion des berges.

L'entrée d'eau et de sédiments associés dans une plaine alluviale dépend de 3 processus majeurs : 1) le ruissellement direct sur le bassin versant, 2) l'inondation par le fleuve via des chenaux et 3) le débordement du chenal principal (« diffuse overbank deposition ») sur les berges en général couvertes de végétation, ce dernier processus étant le plus efficace en terme de piégeage sédimentaire (Dunne *et al.*, 1998; Maurice Bourgoïn *et al.*, 2007).

En général, les eaux du fleuve commencent à remplir les zones d'inondation au cours de la montée de crue et dans le cas de l'Amazone, la vidange des lacs et chenaux de plaine commencent dès le pic de crue du fleuve avec des flux liquides et solides maxima en étiage (Maurice-Bourgoïn *et al.*, 2007). La géomorphologie des zones d'inondation est un bel exemple de rétroaction du climat et de l'hydrologie sur la dynamique hydrosédimentaire des grands fleuves. Le stockage de sédiments à l'intérieur des plaines d'inondation dépend en effet de la géomorphologie de ces zones et peut être particulièrement important dans les chenaux de connexion au fleuve (Moreira-Turcq *et al.*, 2004). Dans le bassin du Rio Madeira par exemple, une grande hétérogénéité a été observée non seulement dans les temps de stockage mais également en termes de capacité de stockage ; en amont, à la sortie du piémont andin bolivien, où une zone de subsidence a été mise en évidence, 70% des sédiments arrachés des Andes est stocké dans la plaine d'inondation du Rio Mamoré, contre 40% dans celle du Rio Beni (Guyot, 1993 ; Maurice-Bourgoïn *et al.*, 2002) et seulement 20% du flux sédimentaire total provenant des rios Solimões et Madeira est déposé le long du fleuve Amazone, en amont d'Óbidos (Laraque *et al.*, 2005). Ces différences dans les capacités de stockage s'expliquent en grande partie par la géomorphologie des plaines inondables, à la présence de nombreux lacs reliés par des canaux au chenal principal, à la typologie des berges (présence de « levees »), à l'extension de la plaine distale, etc... L'extension et la géomorphologie des plaines d'inondation est très variable et ces paramètres ont un rôle déterminant dans les temps de transfert des eaux et des particules associées et donc sur les temps d'altération. Par exemple, l'extension des plaines d'inondation du bassin Amazonien

Bolivien varie d'environ 30 000 km² dans le bassin du Rio Beni à près de 150 000 km² dans celui du Mamoré en période de très fort débordement ; ce dernier étant caractérisé par une pente très faible (moins de 10 cm km⁻¹). Les caractéristiques granulométriques des sédiments de fond ainsi que des particules en suspension sont différentes pour chacun de ces 2 bassins ; le d₅₀ des sédiments de fond du Rio Mamoré est 3 fois plus faible que celui des sédiments du Beni indiquant un dépôt préférentiel des sables dans la partie amont de la plaine du Beni (Guyot *et al.*, 1999). La granulométrie des argiles est également un paramètre intéressant intégrant les différences de lithologie des hauts bassins ; les suspensions du Rio Madeira sont particulièrement enrichies en illite et chlorite alors que celles du Rio Solimões présentent de fortes teneurs en smectite (Guyot *et al.*, in press). Ces bassins offrent une opportunité unique d'étudier des rivières non anthropisées interagissant dynamiquement avec leur plaine d'inondation et donc de répondre à nos questions par l'étude d'un système fluvial entièrement naturel.

Un bilan sédimentaire précis vient d'être publié sur une zone d'inondation située le long du fleuve Amazone, à 900 km de son embouchure avec l'Océan, la "várzea de Curuai", (Maurice Bourgoïn *et al.*, 2007). Sur la période 2000-2004, les calculs de flux solides entrant et sortant du système ont été réalisés à partir d'un modèle réservoir (révisé de Kosuth, 2002) associé aux données d'un réseau décadaire de mesures des MES dans le fleuve et dans le chenal de sortie de la plaine d'inondation mis en place dans le cadre du programme HIBAM (accord de coopération IRD/CNPq). Les calculs ont été réalisés sur 3 années hydrologiques consécutives, de novembre 2000 à octobre 2003. Au cours de chacune des campagnes de terrain, les débits ont été mesurés à l'aide d'un profileur de courant à effet Doppler (ADCP) dans chacun des canaux reliant le fleuve à la plaine d'inondation, et ceci à plusieurs moments de la journée, sur au moins un demi cycle de marée, de sorte que la somme totale des débits prenne en compte l'effet de la marée.

Ce modèle permet d'estimer les flux sédimentaires journaliers échangés entre la plaine d'inondation et le fleuve et sont intégrés aux pas de temps mensuel et annuel (Fig. 2).

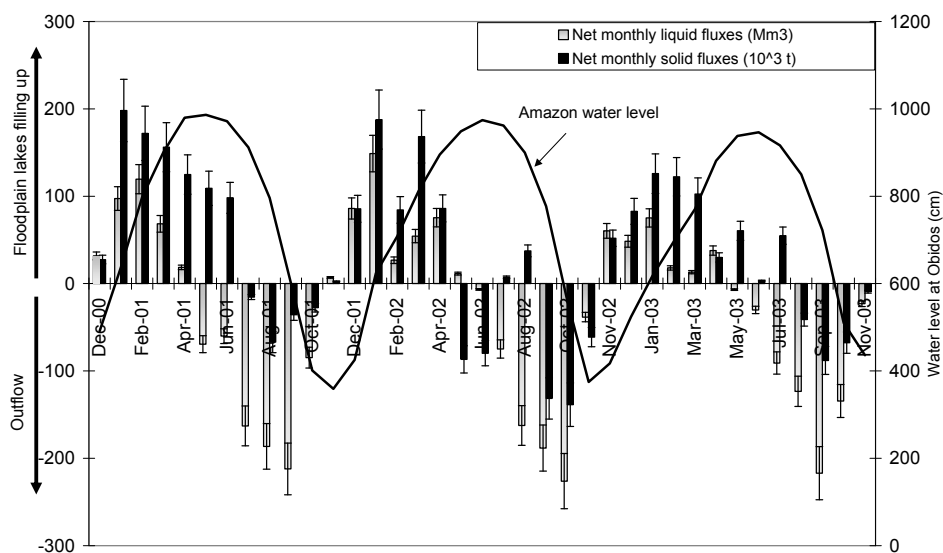


Figure 2. Modélisation des flux liquides et des flux sédimentaires entre les lacs d'inondation de Curuai et le fleuve Amazone (exprimés en moyenne mensuelle). Les flux positifs indiquent la phase de remplissage des lacs par le fleuve et négatifs, la phase de vidange des lacs vers le fleuve (Maurice-Bourgoïn *et al.*, 2007).

Sur un cycle hydrologique on observe une phase de remplissage de la plaine de novembre à fin mai (débits calculés positifs), et une phase de vidange de début juin à

novembre (débits calculés négatifs). Les flux sédimentaires ont été calculés à partir des débits liquides obtenus par le modèle réservoir et des concentrations en MES du fleuve ou du chenal de connexion permanente au fleuve, en fonction du sens des échanges d'eau. Pour les 3 années étudiées, l'estimation des MES entrantes varie relativement peu (de l'ordre de 1,5 Mtonnes $\pm$ 9% de sédiments entrants). En 2001 et 2003, les différentes hypothèses de calcul employées n'affectent pas de manière sensible les résultats (environ 740 000 tonnes stockées en 2001 et 830 000 tonnes en 2003 avec un écart-type < 18% de la moyenne).

Les premiers résultats de simulation obtenus sur 2001 et 2003 permettent d'estimer que la quantité de MES stockées dans la plaine d'inondation de Curuai correspond à 47% du flux solide entrant dans le système. Le taux de dépôt spécifique est de 517 ($\pm$ 23%) t km⁻² an⁻¹. Ces résultats concordent avec le chiffre de 400 000 t.an⁻¹ estimé par un autre modèle (Modvarz) pour l'année 98-99 (Kosuth, 2002) mais sont très largement inférieurs au bilan réalisé à partir de la différence des flux amont et aval entre Manacapuru (confluence des Rios Negro et Solimões, à la formation de l'Amazone) et Óbidos pour l'année hydrologique 2002-2003 (Laraque *et al.*, 2005). Des calculs d'erreur sont en cours ainsi que la comparaison avec d'autres modèles. En fait, les autres études sont plus globales ; elles prennent en compte des surfaces inondables beaucoup plus importantes et intègrent les hétérogénéités géomorphologiques des différents systèmes d'inondation sur le tronçon Manacapuru / Óbidos comme les différents processus de sédimentation, à savoir : le débordement diffus dans le lit majeur et la sédimentation dans les chenaux de connexion du fleuve aux lacs d'inondation (prise en compte dans notre modèle).

CONTROLE CLIMATIQUE

Dans le cadre d'une coopération avec Rolf Aalto (U. Washington) et Thomas Dunne (U. Sta Barbara) financée par la NSF, une étude des taux de sédimentation des principaux tributaires du rio Madeira à savoir, les rios Beni, Mamore et Madre de Dios a été initiée en 1999. L'objectif principal de ce projet est d'estimer la part de sédiments déposés dans chaque plaine, ainsi que les sites principaux de dépôt, et le rôle des « oxbow lakes » dans ce processus. Ils ont développé un modèle quantitatif à méso-échelle de transport de sédiments dans le chenal principal et la plaine d'inondation de rivières non anthropisées, calibré à partir de mesures *in situ* et de profils verticaux de ²¹⁰Pb dans la plaine proximale et distale des Rios Beni et Mamore (près de 300 carottes réalisées et analysées).

L'interprétation des résultats d'épisodes irréguliers de fort dépôt sédimentaire dans la plaine d'inondation des Rios Béni et Mamoré nous ont amené à étudier plus précisément la variabilité hydrologique de ces rivières et leur corrélation avec les principaux indices climatiques (événements ENSO-LNSO principalement)

Jusqu'à présent, les calculs de taux de dépôt sédimentaire étaient basés sur l'hypothèse de dépôts constants dans le temps. Mais nos recherches menées dans le cadre de ce projet en coopération avec le Service national de météorologie et d'hydrologie (SENAMHI) de la Paz en Bolivie, sur deux rivières boliviennes montrent au contraire que ce phénomène est irrégulier et moins fréquent qu'on ne le pensait (11 événements de sédimentation sur des colonnes sédimentaires de 90 ans). Ces résultats soulignent que, dans cette partie du bassin amazonien, la sédimentation est étroitement dépendante de la puissance des crues, liée elles-mêmes à la variabilité climatique, et en particulier aux événements 'la Niña', la phase froide d'ENSO (El Niño Southern Oscillation). Nous avons observé une corrélation significative entre ces périodes d'importants dépôts sédimentaires et " la Niña ". Au cours de la plupart des années 'Niña' de ce dernier siècle, les reliefs andins ont subi de violentes pluies à l'origine de fortes crues et d'une intense érosion mécanique des versants andins, ainsi que cela a pu être

mesuré dans une station hydrologique située au pied des Andes et suivie dans le cadre du programme Hybam. Lors de ces crues, de très importantes quantités de sédiments sont arrachés des sous-bassins et transportés vers la plaine d'inondation. Pour que les sédiments aient pu en partie s'y déposer (jusqu'à 40 % dans la plaine du bassin du Béni), la montée des eaux au cours de ces années de forts dépôts sédimentaires, a dû être très rapide et dépasser $8000 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. La crue aurait alors atteint la puissance nécessaire pour détruire les petites digues naturelles (levées) formées le long du cours principal et inonder ainsi une grande partie de la plaine.

Ces résultats sont en accord avec la variabilité des pluies dans les Andes Boliviennes où 50% des anomalies de pluie mesurées entre 3400 et 1800 m d'altitude est expliqué par le Multivariate ENSO Index (MEI) de l'Océan Pacifique Équatorial.



*Dépôt de sédiments fins sur une berge du Rio Beni
(1999) - Photo L. Maurice ©IRD*

Ces résultats ont fait l'objet d'un article dans *Nature* en 2003 et d'articles de vulgarisation associés.

Ces nouvelles mesures m'ont également permis d'étudier l'histoire au cours du siècle dernier, des dépôts de mercure associé aux particules fines dans la plaine d'inondation des rivières Beni et Mamore, ainsi que le rôle de celle-ci dans le piégeage d'éléments métalliques transportés par les grands fleuves et tributaires (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2002). A été mis en évidence, ces trente dernières années, une augmentation importante des concentrations en mercure dans les particules sédimentaires déposées par la rivière dans la plaine du Rio Beni. Ceci correspond au récent "boom" de la prospection aurifère, aujourd'hui terminé, mais aussi à la colonisation de nouvelles terres cultivables sur les flancs abrupts du Piémont andin. Ce point sera repris plus en détails en page 28.

LE MERCURE : ENTRE MYTHES ET REALITE, ENTRE HYPOTHESES ET EXPERIMENTATIONS, ENTRE TERRAIN ET LABORATOIRE

QUELQUES CHIFFRES ET QUELQUES GENERALITES

Le mercure (Hg) est l'un des éléments les plus toxiques, existant dans l'environnement. Cet élément se trouve naturellement à l'état d'ultra-trace entre 10^{-9} et 10^{-12} g g⁻¹ mais ses concentrations peuvent varier considérablement d'un compartiment à un autre de l'hydrosphère ou de la biosphère. La toxicité de cet élément est liée à la présence de ses formes organiques, le méthyl- et diméthyl-mercure, qui présentent la particularité d'être directement assimilable par les organismes vivants et bioaccumulable dans la chaîne trophique. Les processus de bioaccumulation et bioamplification de Hg dans l'écosystème aquatique explique que les concentrations dans les organismes vivants, tels que les poissons piscivores, soient 10^7 fois supérieures à celles de l'eau dans laquelle ils évoluent. La toxicité du mercure vient également de son extrême volatilité qui lui permet de se disperser dans l'atmosphère sur plusieurs centaines de kilomètres de ses points d'émission avant de s'oxyder en atmosphère humide, de sa relative solubilité dans l'eau et les graisses (il peut être facilement transporté dans le corps, s'accumuler dans les organes et se concentrer au niveau du cerveau), et de sa capacité à se lier avec d'autres molécules, en particulier organiques, qu'il va modifier ou dont il va transformer les fonctions. Après ingestion de nourriture contaminée, plus de 90% de Hg est absorbé par la paroi gastro-intestinale, puis transféré dans l'organisme par la circulation sanguine et après 4 jours, diffuse tout l'organisme humain. Le cerveau présente la particularité de concentrer cet élément, notamment dans les molécules lipidiques, et de présenter des concentrations en Hg jusqu'à 6 fois supérieures à celles mesurées dans le sang.

Le mercure existe à divers degrés d'oxydation : 0 (mercure métallique), I (ion mercurieux Hg₂²⁺, Hg₂SO₄), II (ion mercurique Hg²⁺, HgO, HgSO₃, HgI⁺, HgI₂, HgI₃⁻, HgI₄²⁻).

Le mercure se présente en deux familles distinctes d'espèces chimiques :

- **Le mercure inorganique** qui prend lui-même trois formes différentes :
 - le mercure métallique élémentaire, sous forme **liquide** (noté Hg⁰).
Le mercure est le seul métal, qui sous des conditions normales de température et de pression, se trouve à l'état liquide; c'est sa forme la plus connue, qui était utilisé dans les thermomètres et baromètres par exemple.
 - le mercure sous forme **gazeuse** (noté Hg⁰).
Etant donné sa faible pression de vapeur saturante, le mercure est le seul métal qui, à température ambiante, peut passer sous forme vapeur.
 - le mercure inorganique, sous forme **ionique**, que l'on trouve dissous dans l'eau (Hg²⁺ essentiellement)
- **Le mercure organique**, quand il se lie à une molécule contenant du carbone (groupe méthyl, CH₃, ou diméthyl, (CH₃)₂, à la base de tout organisme vivant.

Il existe des échanges permanents entre ces différentes formes chimiques, car le mercure a une grande capacité à se transformer, notamment sous l'effet de l'acidité du milieu, et de la présence de molécules assurant ces combinaisons (avec le chlore, le carbone et la soufre en particulier). Les principales transformations peuvent être décrites comme suit :

Du mercure métallique aux ions mercuriques : l'oxydation. Ce processus a lieu naturellement dans l'atmosphère en présence d'ozone en particulier, et aussi bien en phase gazeuse qu'en phase aqueuse; des cinétiques rapides d'oxydation en présence d'O₃ et de OH ont été mises en évidence en laboratoire. Les réactions d'oxydation par les composés chlorés sont lentes tandis que celles par Br et BrO, observées en particulier en Arctique, sont rapides. Dans l'organisme humain, le mercure sous forme de vapeurs peut être inhalé au cours des opérations de brûlage de l'amalgame or/mercure par les orpailleurs, ou lors de la vente d'or dans les échoppes pour le purifier. Par l'action de la catalase dans les globules rouges, le mercure inhalé est transformé en ions mercuriques qui passent dans le sang.

Du mercure ionique au mercure gazeux: la réduction. Dès 1994, la réaction de réduction de Hg(II) en Hg⁰ dans l'atmosphère a été expliquée à partir de la réaction en phase aqueuse de Hg(II) avec SO₂ dissous. L'importance de cette réaction est limitée par une cinétique relativement lente et parce que le Hg forme facilement d'autres complexes comme le HgCl₂ par exemple.

Du mercure dissous au mercure particulaire : l'adsorption. Ce processus est observé dans l'atmosphère, sur les aérosols, et dans les systèmes aquatiques, sur les particules en suspension. De grandes incertitudes subsistent quant aux cinétiques de ces réactions hétérogènes et à la distribution des espèces de Hg entre la phase aqueuse et les particules.

Des ions mercuriques au mercure organique : la méthylation. La méthylation se déroule principalement en milieu aqueux ou dans les intestins, en fonction de l'acidité et de la présence de soufre. Les composés de mercure organique les plus connus sont le méthylmercure et le diméthylmercure.

Sa distribution et son cycle sont également perturbés par les activités humaines. Certaines activités industrielles relarguent directement Hg⁰ dans l'atmosphère ou Hg(II) dans les rivières et fleuves tandis que d'autres activités, telles que le déboisement, les cultures ou l'élevage, favorisent le relargage de Hg⁰ et Hg(II) vers l'hydrosystème en accroissant le processus naturel d'érosion.

LES SOURCES

Les sources naturelles

Les sources et émissions naturelles sont nombreuses. On distingue généralement les sources primaires des sources secondaires.

Les réserves les plus importantes se trouvent dans les roches et/ou les sédiments océaniques. On estime le gisement de mercure à 300 milliards de tonnes dont 99 % se trouvent dans les sédiments océaniques.

Parmi les sources primaires, on peut citer :

- **les processus de dégazification de l'écorce terrestre** (zones de subduction, failles, cordillères, ...) ; une éruption volcanique libère surtout de grosses quantités de gaz carbonique et de soufre, mais aussi des métaux lourds. On estime que les volcans libèrent en moyenne annuelle dans le monde environ 700 tonnes de mercure dans l'atmosphère (Pyle and Mather, 2003).
- **le processus d'altération des roches** enrichies en Hg et plus particulièrement des roches acides (telles que les schistes, présents en abondance dans la cordillère orientale Bolivienne). En règle générale, les métaux sont fixés dans les roches sous

deux formes peu altérables en climat tempéré: les oxydes et les silicates. Les oxydes sont libérés de la roche par érosion et transportés dans les sols et sédiments. Ils peuvent être fixés aux sulfures et carbonates, très altérables, et qui seront attaqués chimiquement. Les métaux changeront de support. Une partie soluble sera évacuée avec l'eau vers les sols, les sédiments ou la nappe phréatique. Une partie sera adsorbée sur les particules fines (en particulier les argiles) et transportée ou déposée dans l'hydrosystème.

- ***le processus de lessivage des sols :***

Le mercure contenu dans les sols ne provient pas uniquement des apports dus aux activités d'orpaillage en cours dans le bassin amazonien depuis plusieurs siècles mais provient en grande partie d'une accumulation sur plusieurs centaines d'années résultant du cycle atmosphérique naturel du mercure et de la pédogenèse. D'une étude menée sur le bouclier guyanais (Grimaldi *et al.*, 2001), il apparaît que les roches sont 5 à 10 fois plus pauvres en Hg que les altérites prélevées à la base des profils pédologiques et jusqu'à 100 fois plus pauvres que les horizons les plus argileux du sol, mettant en évidence un phénomène de concentration en Hg au cours des processus d'altération des roches et de formation des sols tropicaux.

Lorsque l'intensité des précipitations dépasse la capacité d'absorption du sol, il y a excès d'infiltration ce qui crée un écoulement de surface. Le lessivage des sols par ruissellement superficiel et subsuperficiel entraîne donc le départ de mercure, principalement associé aux particules organo-minérales fines, vers les milieux aquatiques. Par exemple, de fortes concentrations mesurées en mercure dissous sont mesurées dans les rivières d'eaux noires particulièrement riches en substances humiques donc en matière organique colloïdale (Maurice-Bourgoin *et al.*, 1999b) pour laquelle le Hg présente une grande affinité. Il a été estimé que dans le bassin du Tapajós, le ravinement et l'érosion sont responsables du transfert de 500 à 3000 $\mu\text{g Hg.m}^{-2}.\text{cm}^{-1}$ de sols érodé vers l'environnement aquatique (Roulet *et al.*, 1999) ; le Hg transféré se trouvant essentiellement sous forme particulaire. Ces transferts de matière sont considérablement amplifiés sur les sols dénudés après déforestation et contribue à l'augmentation du mercure dans les eaux de surface de sous-bassins versants amazoniens non affectés par les activités d'orpaillage.

En milieu équatorial, la genèse et le fonctionnement des sols (ferralitiques et podzols principalement) couplés à l'écoulement latéral permettent d'expliquer le transfert de certains solutés dans les eaux de surface. L'activité biologique dans les horizons de surface du sol minéralise la litière végétale et produit des composés organiques "agressifs", dissolvant localement les minéraux présents. Si, Al et Fe sont ainsi relâchés dans la solution du sol, l'Al et le Fe étant majoritairement sous forme de complexes organo-minéraux (Eyrolle *et al.*, 1993). En région amazonienne, la remobilisation de Hg des sols ferralitiques vers les milieux aquatiques peut résulter de l'évolution naturelle des couvertures pédologiques par des processus comme l'arénisation et la podzolisation (Roulet *et al.*, 1998 ; Zeidemann, 1998). Ces processus sont caractéristiques de l'évolution de nombreux systèmes de sols amazoniens. L'arénisation correspond à l'érosion sélective des argiles fines riches en oxy-hydroxydes et donc en Hg, le long des pentes, sous l'influence du drainage oblique. La mobilité du mercure est accrue par les conditions de saturation en eau qui règnent dans les zones de podzols et de sols hydromorphes favorisant ainsi le relargage du mercure dans le réseau hydrique ; le bassin du Rio Negro en est un exemple.

Les sources secondaires sont principalement :

- la volatilisation de Hg naturel à partir des eaux de surface océaniques et continentales
- le transport par les vents, rivières, fleuves et océans.

Les émissions naturelles dans l'atmosphère sont estimées à environ 3 000 t Hg an⁻¹.

Les sources d'origine anthropique

L'activité humaine n'a apporté aucun changement dans les volumes de métaux lourds sur la Terre. Il n'y a ni création, ni suppression. Elle a cependant modifié la répartition des métaux, les formes chimiques (ou spéciations) et les concentrations par l'introduction de nouveaux modes de dispersion (fumées, égoûts, voitures...). Si une partie des métaux lourds part directement dans le sol et les eaux, l'essentiel est émis dans l'atmosphère.

Le mercure est utilisé depuis l'Antiquité. Ses capacités à s'associer à d'autres métaux ont été mises à profit pour extraire l'or et l'argent. Le mercure a aussi été utilisé pour ses propriétés biologiques, y compris ses propriétés toxiques (comme biocide et fongicide). Il a été utilisé en tannerie, en médecine, pour traiter la syphilis, par exemple. Le mercure est aujourd'hui utilisé pour ses propriétés physico-chimiques. Il est extrêmement volatile, réagit à la chaleur et est un excellent conducteur d'énergie électrique. Il est utilisé dans la production du chlore et quelques produits de consommation ou de mesure (piles, thermomètres...). En raison de sa toxicité, ses utilisations sont en déclin. Selon les professionnels, les émissions totales auraient diminué de 85 % en 10 ans, pour atteindre 10 tonnes en 1997 ; en 2010, les émissions mercurielles pourraient être ramenées à 1 gramme par tonne, entraînant une émission de 9 tonnes par an, ce qui ferait de l'industrie du chlore un contributeur mineur des émissions mercurielles générées par l'homme en Europe (Miquel, 2001).



Dans l'hémisphère sud (Asie, Afrique, Amérique du sud), ce sont les activités d'orpaillage qui ont été dénoncées comme principale source de mercure dans l'environnement, dès les années 80. Dans l'ensemble des régions amazoniennes, les activités d'orpaillage sont assez répandues, et particulièrement dans les tributaires andins de Bolivie et du Pérou ainsi que sur certains tributaires de l'Amazone comme le Tapajós et le Madeira.

Brûlage à l'air libre de l'amalgame Au-Hg le long du Rio K'aka (Bolivie, 1999) - Photo L. Maurice ©IRD

Les procédés employés au début de la ruée vers l'or par les petits exploitants étaient très rudimentaires, et la méthode d'amalgamation du minerai aurifère par le mercure, en raison de son faible coût, de son efficacité et des facilités opérationnelles qu'elle offre, s'est rapidement imposée et généralisée.

Le mercure est utilisé dans une première phase sous sa forme élémentaire, afin d'enrichir le minerai grâce à la formation d'un amalgame or-mercure. La seconde phase comprend l'élimination de l'excédent de mercure, puis la purification de l'amalgame formé par un traitement à chaud provoquant la vaporisation de Hg⁰.

Au cours de ce processus, hautement contaminant tant pour les orpailleurs que pour

l'environnement, le mercure est en partie rejeté sur place dans les sédiments et les cours d'eau, l'autre partie est dispersée sous forme gazeuse après évaporation à l'air libre. D'après Veiga (1997), 20% du mercure utilisé est perdu en fin d'amalgamation, 70% se volatilise lors du brûlage de l'amalgame, et les 10% restant partent sous forme vapeur lors de l'ultime purification dans les maisons de vente de l'or.

Les activités d'exploitation aurifère ne sont pas les seules contaminantes en mercure. Durant l'époque coloniale, Nriagu (1994) estime que 118 000 t de Hg auraient été émises dans l'atmosphère au cours des activités d'extraction de l'or et surtout de l'argent d'Amérique Latine, dont 50 000 à 60 000 t au Pérou et au niveau de la Bolivie actuelle. Ces chiffres sont en accord avec la production de Hg par les mines d'Almadén (Espagne) et de Huancavelica (Pérou), les deux principales sources de Hg utilisé dans les mines d'or et d'argent de l'Amérique coloniale.

La production annuelle mondiale de mercure est actuellement de l'ordre de 3 000 tonnes, soit l'équivalent des émissions naturelles ; elle a été estimée entre 2 200 et 4 500 t.an⁻¹ (US EPA, 1997a) en fonction des années et des hypothèses de calcul.

Il faut également souligner la part prise par les activités anthropiques dans les entrées de Hg dans la biosphère. Les travaux de Mason *et al.* (1994) ont montré que les concentrations de Hg dans les océans et dans l'atmosphère ont triplé au cours de ce dernier siècle. Les émissions anthropiques de vapeurs de Hg seraient responsables de cette augmentation. La moitié de Hg émis retomberait non loin de la source, tandis que l'autre moitié entrerait dans le cycle atmosphérique global.

Mais dans l'hémisphère nord, les émissions de mercure décroissent de manière importante au cours des dernières années avec l'amélioration des performances de l'incinération des déchets, mais aussi sans doute par des actions préventives en amont, telles que la limitation ou l'interdiction d'emploi de ce métal dans les piles, les thermomètres médicaux, le tri sélectif, etc... Les autres émetteurs identifiés sont les installations de combustion (traces de mercure dans les combustibles minéraux solides) et certains procédés de la métallurgie des non-ferreux. A noter que les émissions provenant de la production de chlore (2^{ème} poste par le niveau d'émission) ont été réduites de plus de 40 % entre 1990 et 1997. Les émissions devraient se maintenir à peu près au même niveau qu'actuellement au cours des prochaines années bien que 1998 fasse exception par suite d'un accroissement ponctuel des consommations de combustibles minéraux dans le secteur de la production d'électricité (CITEPA, 1999).

Il existe enfin une dernière question, plus rarement évoquée, mais aussi plus impertinente : que faire du mercure qui demain ne sera plus utilisé ? Sur ces bases, l'arrêt complet des procédés industriels à base de mercure imposerait de trouver une destination aux cellules d'électrolyse à cathode de Hg, ce qui représente 12 000 tonnes de mercure en Europe dont 3 à 4 000 tonnes en France. Aujourd'hui, le remplacement des anciennes usines à électrolyse à mercure ne pose pas de difficulté. Soit parce que les cellules sont conservées en l'état (on parle de « cellules dormantes »), soit parce qu'il existe un marché secondaire par l'utilisation du mercure recyclé, qui s'ajoute à la production de mercure primaire.

Il reste cependant un marché secondaire non négligeable sur les instruments de mesure, l'électronique, les lampes. Pourra-t-il absorber les quantités de Hg disponibles ?

Dans le cas contraire, la question qu'il faut poser est : Que faire des nouveaux déchets ? Ce problème n'est pas insurmontable, dans la mesure où 2 000 tonnes de mercure ne représentent finalement qu'un petit volume. Il semble que de nombreux travaux menés jusque là n'aient pas totalement considéré cet aspect des choses. L'analyse a été rectifiée en 1999-

2000. Les initiatives tendant à précipiter l'interdiction des électrolyses à mercure ont d'ailleurs été repoussées à cette occasion. Le principe de l'interdiction totale des rejets, envisagée à l'horizon 2010, a été repoussé à l'horizon 2020.

APPORTS ET TRANSPORT GLOBAUX

L'entrée du mercure dans la biosphère se fait :

_ par voie naturelle dans des zones de fragilité de la croûte terrestre (siège de tremblements de terre et d'activités volcaniques), sous forme de vapeurs de Hg émises à partir du manteau terrestre, ainsi que par la solubilisation de certaines roches comme les schistes formés dans des environnements anoxiques et riches en sulfures ;

_ par voie anthropique en des lieux plus ponctuels de rejets de mercure provenant d'activités industrielles, artisanales et domestiques, sous diverses formes organiques et inorganiques, à l'état solide ou gazeux, selon le cas.

La répartition du mercure à la surface de la planète n'est pas pour autant étroitement dépendante des sources, qu'elles soient zonales ou ponctuelles. Sa volatilité élevée le prédispose à des transports atmosphériques sur de longues distances, tandis que ses propriétés chimiques de complexation aux matériaux colloïdaux et soufrés en particulier favorisent son transport par voies atmosphérique et fluviale.

Si on se réfère au bilan établi pour le milieu océanique par Cossa *et al.* (1996), les fleuves représentent la principale voie de transport du mercure à la surface de la planète. En effet, les océans recevraient environ 4,7 Mmoles de Hg par an par voie fluviale, contre à peine 2 Mmoles par an par voie atmosphérique. Cependant, ces flux globaux ont été récemment révisés par un comité d'experts de l'AGU en particulier et n'attribuent plus « que » 1 Mmol Hg par an apportés aux océans par les fleuves et rivières contre 9,7 par l'atmosphère sous forme de dépôts secs et humides (Lindberg *et al.*, 2007 ; tableau 2). Cette dernière étude confirme en revanche que les apports par les eaux douces ont été multipliés par 5 depuis le début de l'ère industrielle. D'où l'importance qu'il faut accorder aux transports fluviaux dans la dissémination de Hg à la surface de la Terre.

Stock (tonnes)	Flux (tonnes/an)	
	Sources naturelles	Sources anthropiques
Sédiments 300 000 000 000	Volcans 700	Combustion du charbon 2 100
Sols 20 000 000 (augmentation des dépôts de 1720 t.an ⁻¹ et d'émission dans l'atmosphère de 800 t.an ⁻¹)	Emissions volatiles 610	Incinération de déchets 1 200
Océans 14 000 000 (augmentation des dépôts de 480 t.an ⁻¹ et de la volatilisation dans l'atmosphère de 1 100 t.an ⁻¹)	Sources marines 770	Autres industries 300
	Rivières (ère pré-industrielle) 40	Rivières (actuel) 160
	Autres ~380	
TOTAL	~2 500	2 400 à 3 7060

Tableau 2. Estimation du stock (Miquel, 2001) et du flux planétaires de mercure (from Mason and Sheu, 2002)

Mais il est évident qu'à l'échelle globale, des informations précises manquent sur le cycle actuel de Hg, ses sources et ses transformations au cours du siècle dernier jusqu'à nos jours, et ce en particulier, dans les pays en plein développement, notamment en Asie.

Des tendances sur les émissions de Hg° dans l'atmosphère ont été proposées pour chacun des continents (Tableau 3 d'après Lindberg *et al.*, 2007) :

Tableau 3. Emissions de Hg dans l'atmosphère : tendances des 10 dernières années (1990 – 2000)

Continent	1990 – 1995	1995 – 2000	Incertitude (± %)
Afrique	Augmentation d'un facteur 2	Taux constant de 400 t an ⁻¹	50
Amérique du Nord	Léger déclin	Taux constant de 200 t an ⁻¹	27
Amérique du Sud	Accroissement de 30%	Taux constant de 80 t an ⁻¹	50
Asie	Augmentation d'un facteur 2	Taux constant de 1200 t an ⁻¹	40
Australie	Augmentation d'un facteur 2	Taux constant de 100 t an ⁻¹	30
Europe	Diminution de 550 à 300 t an ⁻¹	Diminution à 200 t an ⁻¹	30

ETAT DES CONNAISSANCES EN AMAZONIE, EN 1995

En milieu amazonien, les études sur le transfert de Hg des sols aux milieux aquatiques ainsi que sur son transport et sa sédimentation dans les rivières et les plaines d'inondation ont été retardées en raison des difficultés que posaient l'échantillonnage, la conservation et la mesure de Hg dissous dans les eaux. L'application d'un protocole rigoureux portant sur le mode de prélèvement (technique « ultrapropre » de Ahlers *et al.*, 1990), la conservation des échantillons, leur traitement et leur analyse (technique hautement sensible de spectrométrie de fluorescence atomique ; Cossa *et al.*, 1995) ont permis ces dernières années d'obtenir des résultats fiables concernant le mercure total dans les eaux de surface du bassin amazonien (Vinson *et al.*, 1997 ; Maurice-Bourgoin *et al.*, 1997, 1999 a et b ; Roulet *et al.*, 1998) et ainsi de corriger les très fortes valeurs publiées jusque-là (dans Pfeiffer *et al.* (1989, 1991) compilées par Lacerda et Salomons, 1998). Les concentrations en mercure total dans les eaux de surface du bassin amazonien sont généralement comprises entre 1 et 30 ng.l⁻¹ ; les valeurs supérieures peuvent être mesurées dans des cas particuliers tels que les eaux sortant d'une mine (Telmer *et al.*, 1999) ou les eaux de début de crue des tributaires andins, lorsqu'ils sont fortement chargés en matériel en suspension (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000 b).

Cependant, la **contamination de l'environnement et des écosystèmes aquatiques par le mercure** et les conséquences sur les communautés riveraines qui constitue un problème grave de santé publique est étudiée au Brésil depuis une vingtaine d'années. Cette pollution a initialement été attribuée à l'activité des coopératives minières qui exploitent l'or (Malm *et al.*, 1990 ; Pfeiffer *et al.*, 1993 ; Nriagu *et al.*, 1992) sur la base d'une réaction chimique or-mercure permettant d'amalgamer les particules d'or entre elles. Cette problématique fait l'objet de nombreuses études et publications depuis près de 20 ans (Martinelli *et al.*, 1988 ; Lacerda *et al.*, 1989 ; Malm *et al.*, 1990 ; Akagi *et al.*, 1994 ; Palheta et Taylor, 1995) et qui

font état de teneurs inquiétantes de mercure dans le sang, les urines et les cheveux des communautés indigènes, riveraines du Madeira et du Tapajós.

En Bolivie, en revanche, la seule étude sur cette problématique réalisée avant 1995, par des institutions boliviennes, ne s'est intéressée qu'au rio Madeira sur sa partie frontalière avec le Brésil (LIDEMA, 1993). Les conséquences environnementales de l'extraction d'or alluvial dans cette zone sont préoccupantes puisqu'ont été mesurées, dans les sédiments, des teneurs en mercure de l'ordre du gramme par litre, et dans les poissons, des teneurs de 800 ng.g^{-1} alors que la valeur seuil autorisée est de 500 ng.g^{-1} . Cependant, cette étude ne donne aucune valeur fiable de mercure dans les eaux en raison de la stratégie d'échantillonnage, de la méthodologie et des techniques analytiques utilisées.

Plus en amont, dans le haut bassin du rio Béni, les activités liées à la recherche de l'or alluvial sont importantes et remontent à environ 50 ans. Dans le bassin des rios Tipuani, caractérisé par la formation aurifère Cangalli (Hérail *et al.*, 1991; Coudrain-Ribstein *et al.*, 1992), Mapiri, K'aka, Alto-Béni et Béni, les alluvions des terrasses et du lit actuel des cours d'eau constituent la seconde source d'or exploitable, la première étant contenue dans la paléovallée, jusqu'à environ 100 m de profondeur. Les sources de ces rivières se rencontrent pour la majorité dans la zone nord de la cordillère orientale (Hérail *et al.*, 1986). Le mercure est en effet utilisé pour extraire l'or des autres particules contenues dans les eaux et les sédiments de fond. Un tri granulométrique est d'abord effectué sur les suspensions et les sédiments avant leur amalgamation. Au cours de l'amalgamation, 5 à 30% du mercure utilisé est rejeté directement dans les rivières tandis que pratiquement tout le reste peut s'échapper sous forme de mercure élémentaire dans l'atmosphère au moment de l'extraction d'or par calcination de l'amalgame. En raison des conditions de travail précaires et du manque d'informations sur les quantités d'or extraites des rivières brésiliennes et boliviennes, il est relativement difficile d'estimer les quantités de mercure utilisé et échappé dans l'environnement. De nombreux auteurs (Lacerda *et al.*, 1989 ; Malm *et al.*, 1990 ; Pfeiffer *et al.*, 1993 ; LIDEMA, 1993) font état d'un rapport Hg émis/Au extrait de 1 allant jusqu'à 10 dans le bassin versant du Madeira. En Bolivie, dans les années 90, les activités d'exploitation aurifère employaient 60 000 personnes travaillant dans 1 200 entreprises et environ 450 coopératives. La quantité de mercure utilisée au cours de ces opérations s'estime à 30 tonnes par an, évaluation minimale en raison du nombre important d'activités non déclarées.

Une partie de mes activités en Bolivie a consisté donc dans un premier temps à réaliser un diagnostic de cette contamination dans différents compartiments de l'hydrosystème, dans les compartiments abiotiques (eau, suspensions, sédiments) et biotiques (poissons, communautés et villes concernées) en réalisant un zoom au niveau du haut bassin du Béni, à Rurrenabaque. Nos premiers résultats, élaborés en collaboration avec l'UMSA, Vétérinaires Sans Frontières et un laboratoire de l'Université de Rio de Janeiro, font état d'un niveau de contamination inquiétant dans la chaîne trophique puisque les teneurs en mercure obtenus dans les espèces de poissons carnivores dépassent jusqu'à plus de trois fois la valeur limite définie par l'OMS (Maurice-Bourgoin *et al.*, 1999, 2000, 2001(a et b) et 2002).

APPORTS ANDINS

L'érosion physique et le lessivage chimique des sous-bassins andins sont à l'origine du flux de sédiments et d'éléments métalliques associés comme le mercure, apportés à la plaine et aux tributaires.

Dans la zone de production sédimentaire, au niveau des Andes et du piémont, le Hg est essentiellement relargué dans l'hydrosystème au cours des crues et il est préférentiellement

adsorbé et donc transporté sur la fraction fine des particules en suspension. L'influence des actions de déforestation sur les processus de lessivage des sols est majeure et contribue à l'augmentation du mercure dans les eaux de surface de sous-bassins versants amazoniens non affectés par les activités d'orpaillage.

Entre 1999 et 2001, l'étude plus spécifique de la variation temporelle des concentrations en mercure dans la rivière Beni et un de ses tributaires d'eau claire (le Coroico) a permis d'estimer des flux mensuels et annuels de Hg total et particulaire (Carli, 2003), de mieux comprendre leur comportement, et de mettre en évidence le contrôle hydrologique. La quantité de mercure total transporté par la rivière suit les variations de débit comme présenté sur la figure 3, qui montre bien le contrôle hydrologique des apports en mercure dans les eaux de surface des tributaires andins.

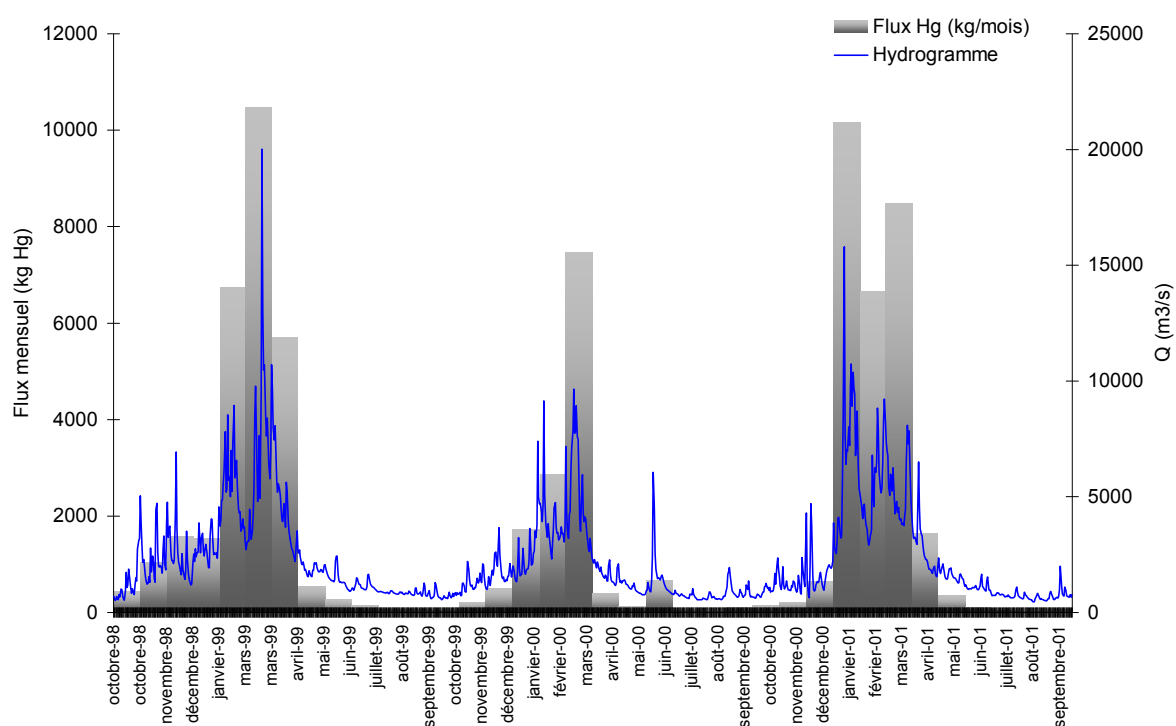


Figure 3. Débit liquide journalier et flux mensuels en Hg total (1998 – 2001) estimés dans les eaux de surface du Rio Beni (Rurrenabaque, Bolivie).

Les apports annuels en Hg issus du piémont andin bolivien varient en fonction des années hydrologiques et atteignent entre 10 et 30 t Hg.an⁻¹.

Tandis que 54% du débit liquide annuel s'écoule en moyenne pendant les 3 mois de crue (janvier-mars), 82% du flux annuel en mercure total et 84% du flux annuel de matières en suspension sont transportés. C'est en effet à cette période que l'érosion des sols est la plus forte, et que la majorité du mercure, plus de 70%, est transportée sous forme particulaire.

Les taux de mercure particulaire observés sont supérieurs à 99,5% du mercure total (pour une moyenne de 82%) (figure 4) en début de crue où les sols sont lessivés pour la première fois après trois mois de saison sèche. Le contrôle hydrologique des apports en mercure s'exerce donc essentiellement par le biais du transport de matières en suspension, très important dans le cas d'une « eau blanche » comme le Rio Beni.

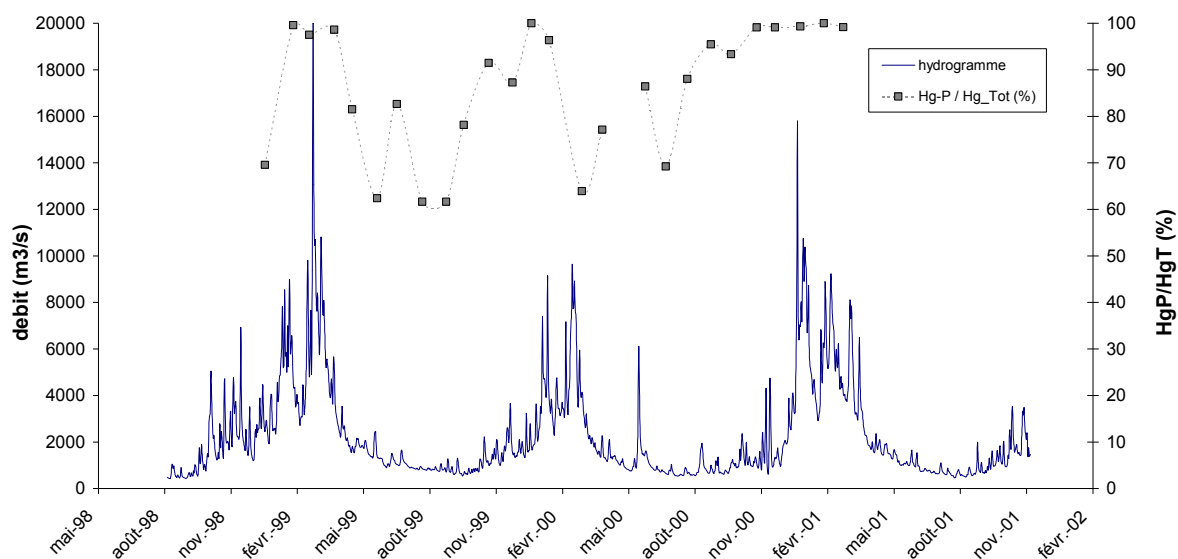


Figure 4. Variabilité temporelle du pourcentage de mercure particulaire par rapport au mercure total (1998 – 2001) dans les eaux de surface du Rio Beni (Rurrenabaque, Bolivie).

Les transports hydriques ne jouent pas qu'un rôle neutre de redistribution de Hg à partir de ses diverses sources. Le Hg est susceptible d'être véhiculé vers des sites où il est transformé en méthylmercure (MeHg), point de départ de la contamination mercurielle des humains *via* la chaîne trophique. D'où la nécessité de présenter un bilan de nos connaissances sur les processus de transfert du milieu terrestre vers le milieu aquatique ainsi que de transport et de sédimentation de Hg en milieu fluvial et lacustre. Les plaines d'inondation jouent un rôle clé dans le piégeage de cet élément ainsi que dans le processus de méthylation. Par la présence de ces zones étendues, l'Amazonie constitue un système à risque pour la contamination mercurielle.

Ces processus ont été expliqués et quantifiés en détails dans le livre édité par l'IRD dans la collection des Expertises Collégiales (Carmouze J.P., Lucotte M. and Boudou A., Eds.), intitulé : *Le Mercure en Amazonie: Rôle de l'homme et de l'environnement*.

TRANSFERT ET DEPOT - ROLE DES PLAINES D'INONDATION

L'extension des plaines d'inondation dans les grands bassins fluviaux joue un rôle déterminant dans le transfert aux Océans des éléments chimiques et des métaux lourds en particulier, en phase dissoute et associés aux particules (Junk *et al.*, 1989).

Sur le plan biogéochimique, ces zones humides jouent un double rôle de filtre et de réacteur. Elles remplissent deux fonctions : celle de stockage temporaire voire définitif des éléments dissous et du matériel particulaire, avec une variation du temps de stockage compris entre quelques mois (eau et substances dissoutes) à quelques centaines d'années (sédiment), et une fonction de relargage des éléments dissous et des particules de la plaine vers le fleuve lors des grandes inondations. Elles jouent un rôle déterminant dans le cycle du carbone, du fer et d'autres éléments rédox. L'installation de conditions réductrices dans les sédiments et leur remise en suspension dans la colonne d'eau en étiage sont contrôlés par la dynamique hydrologique. Le transport, la spéciation et le transfert du mercure dans les eaux de surface étant largement contrôlés par le cycle de la matière organique, on comprend l'importance de ces zones dans le cycle biogéochimique de Hg. Cependant, dans les eaux pauvres en

composés organiques, les oxy-hydroxydes de Fe, d'Al et de Mn, ainsi que les composés sulfureux et les minéraux argileux constituent d'excellents ligands pour les métaux lourds tels que le Hg. Les sols des zones humides en Amazonie, qui contiennent de fortes concentrations en fer, 5-10% (Irion *et al.*, 1997) ont sans doute un rôle non négligeable dans cette dégradation. Dans ces mêmes conditions physico-chimiques, la dissolution des oxyhydroxydes de fer particulière s'accompagne de la libération d'éléments adsorbés tels que le mercure probablement sous forme complexée qui peuvent ainsi migrer vers la colonne d'eau.

Du point de vue géochimique, deux types de "várzeas" sont présentes en Amazonie centrale : celles aux eaux « blanches », riches en matériel dissous et en suspension, avec un pH proche de la neutralité, et celles aux eaux « noires », pauvres en matériel particulaire et à pH acide, et dont les eaux contiennent de fortes concentrations d'acides humiques et fulviques. Alors que les cours d'eaux amazoniens sont considérés comme hétérotrophes, les "várzeas" présentent une production autotrophe considérable, ce qui aura une importance sur les formes chimiques et le bilan des espèces dissoutes, notamment pour les éléments qui présentent des formes méthylées (As, Pb, Se, Hg). Le fonctionnement trophique des "várzeas" dépend des caractéristiques locales comme la morphologie, les précipitations, la biogéochimie du système, ainsi que des apports en éléments nutritifs. De plus, l'alternance sur un cycle annuel, d'apports d'eaux blanches de l'Amazone et d'eaux noires issues du lessivage des sous-bassins forestiers (de "terra firme") favorise les réactions d'oxydoréduction et les échanges entre phases dissoute et particulaire (Maurice Bourgoïn, 2001).

Une étude concernant les variations saisonnières des concentrations à Óbidos a montré que pour des éléments tels que le Fe, le Mn ou l'As, les maxima de concentrations dans la phase dissoute présentaient un décalage de plusieurs semaines par rapport au maximum hydrologique (Seyler and Boaventura, 2003). Ce déphasage a été interprété comme étant dû à l'influence de l'arrivée à Óbidos des eaux ayant séjourné dans les "várzeas" où les conditions biogéochimiques différentes ont permis une remobilisation des éléments associés à la phase particulaire. De plus, une grande partie de la matière organique « réactive » semble être produite et introduite dans le fleuve par les zones humides.

En effet, ces zones sont caractérisées par une très forte productivité primaire au cours de la première moitié du cycle hydrologique, suivi, durant la phase d'étiage, par des processus de dégradation bactérienne anaérobie en particulier à l'origine de l'émission de gaz à effet de serre tel que CO₂, CH₄ et H₂S (Junk *et al.*, 1989; Richey *et al.*, 1988, 2002; Grace and Malhi, 2002). Ces zones constituent donc des environnements propices à la production de formes organiques de certains métaux et de Hg en particulier. Par exemple, des mesures réalisées dans les racines adventives de certaines plantes aquatiques ont révélé des taux de méthylation 30 fois supérieurs à ceux mesurés dans les sédiments de fond sous-jacents. Ces plantes macrophytes constituent environ 60% de la production primaire des "várzeas" et représentent une source importante de carbone organique pour la chaîne trophique aquatique dont certains maillons peuvent être exposés à des teneurs en méthyl-Hg élevées (Guimarães *et al.*, 1998 et 2000). La production primaire dans les "várzeas" est estimée à 110 t de poids sec/ha dont 73% est attribué au phytoplancton et aux macrophytes terrestres et aquatiques, et 27% à la forêt ennoyée (Junk and Furch, 1985). Cette productivité importante est due à la fertilité des sédiments des lacs enrichis en cations majeurs apportés par le fleuve indispensables au développement du phytoplancton et des espèces végétales, et est 10 fois plus élevée que la productivité de sols forestiers de "terra firme" (Victoria *et al.*, 1989). Quay *et al.* (1992) estime que 40% de carbone dissous analysé dans le fleuve Amazone est produit dans les «várzeas». D'autres auteurs (Victoria *et al.*, 1989; Richey *et al.*, 1988; Junk, 1997) ont mis en évidence le rôle de ces zones d'inondation dans le bilan de carbone et dans la production de matière organique (Moreira-Turcq *et al.*, 2003).



Plaine d'inondation du Rio Mamore, Bolivie (2000) - Photo L. Maurice ©IRD

Il existe donc une grande variété de plaines d'inondation le long du fleuve Amazone et surtout de ses tributaires andins qui jouent un rôle de première importance dans les processus d'érosion physique, de reprise sédimentaire, d'altération des particules et de spéciation chimique. Dans les bassins versants où les activités humaines sur les surfaces terrestres sont intenses, les sédiments récents déposés au fond des lacs des plaines d'inondation présentent une augmentation des concentrations en Hg par rapport aux sédiments plus anciens.

Cette augmentation est le résultat d'une sédimentation accrue de particules fines riches en oxydes de fer, aluminium et manganèse ainsi qu'en Hg provenant des sols altérés des bassins versants.

Malgré les difficultés d'accès à ces grands bassins, nous avons étudié plus particulièrement les plaines du bassin du Madeira et de l'Amazone ; elles font l'objet d'un suivi hydrologique et sédimentaire régulier et de long terme par l'équipe du projet HyBAm de l'IRD (www.mpl.ird.fr/hybam/).

Notre premier objet d'étude a concerné la plaine d'inondation du Rio Beni, en Bolivie, à l'exutoire des sous-bassins andins.

La plaine d'inondation du Rio Beni est apparue comme un « piège à mercure » relativement efficace puisque retenu en particulier dans les sédiments de la plaine distale sans risque de remobilisation actuelle. Cette étude a été menée dans le cadre d'un second projet financé par la NSF intitulé "Episodic, ENSO-Orchestrated Carbon Sequestration in Amazonian River Basins by Erosion-Sedimentation Processes" (NSF award number EAR-0404169), en collaboration avec Aalto, et Anthony Aufdenkampe, du Stroud Water Research Centre, spécialisé dans le cycle du carbone en Amazonie. A ce projet sont également associés d'autres chercheurs et un ingénieur de l'UR154 (JL Guyot, P Moreira-Turcq et P Vauchel). Ce projet, validé pour 3 ans, a débuté en août 2004. L'objectif principal de ce projet est d'étudier en détails le rôle des fortes crues dans la séquestration des sédiments et du carbone associé dans les plaines d'inondation du "foreland basin" en Bolivie, ainsi que d'autres éléments géochimiques importants, comme le mercure associé à la fraction fine de ces sédiments. Mon objectif scientifique principal a été de quantifier le rôle des plaines d'inondation du bassin amazonien dans le piégeage du mercure ainsi que d'étudier l'historique de la contamination par cet élément à l'échelle du siècle. Pour répondre à cet objectif, plusieurs campagnes de carottages ont été réalisées dans des sections où l'on avait observé des taux de sédimentation constant (lors du précédent projet NSF).

On a observé une augmentation significative des concentrations de Hg (normalisées par les argiles) dans les sédiments de la plaine du Béni à partir des années 1970 jusqu'en 1995 (Fig. 5). Cette observation peut s'expliquer par la colonisation récente (extension des cultures dans les bassins du piémont, pratique du brûlis) et par le boom minier qui accélèrent le

processus d'érosion déjà important naturellement dans ces vallées érosives en saison des pluies.

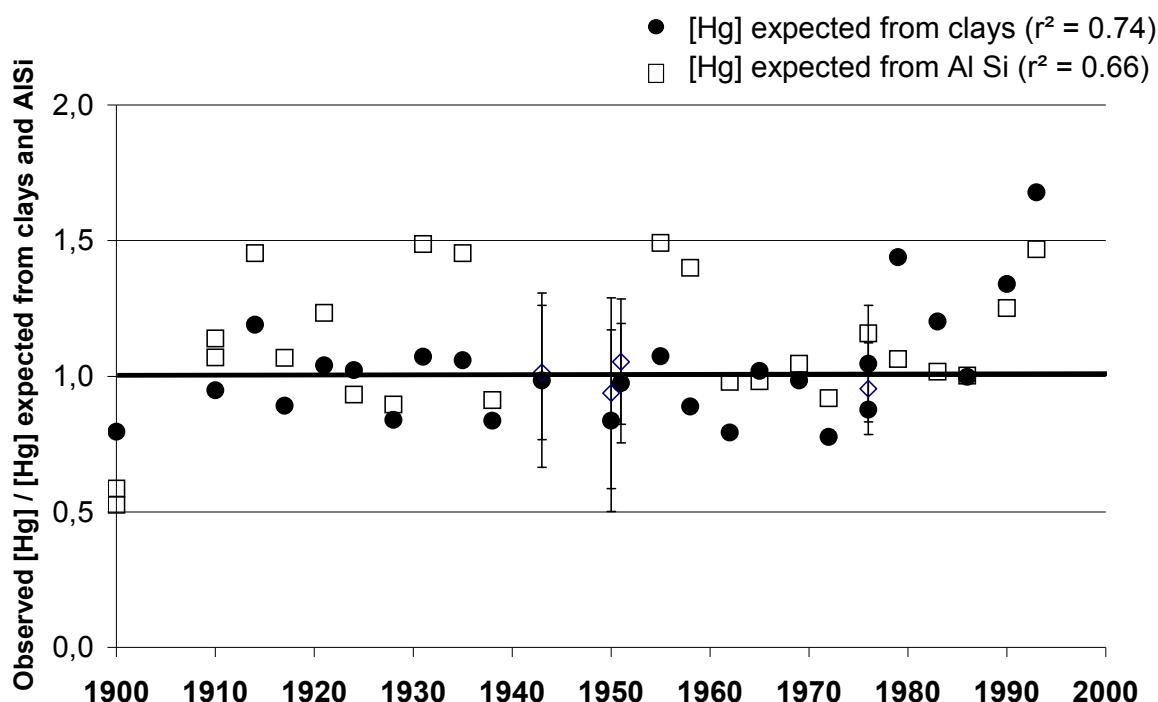


Figure 5. Normalisation des concentrations en Hg total mesurées dans les sédiments de la plaine d'inondation du Rio Beni aux valeurs théoriques estimées à partir des teneurs en argiles et en oxy-hydroxydes d'Al, sur un siècle de dépôt.

Cette augmentation en revanche n'a pas été observée sur les échantillons de sédiments prélevés dans la plaine du Rio Mamoré.

Les résultats sont présentés en détails dans l'article Maurice Bourgoïn *et al.* (2002).

Second site d'étude : la plaine d'inondation de Curuai, système de lacs interconnectés entre eux et reliés au fleuve Amazone.

Cette thématique a été poursuivie au Brésil, par l'étude du rôle des échanges entre le fleuve Amazone et la plaine d'inondation de Curuai, entre 2001 et 2004 au cours de mon affectation à Brasilia, et fait actuellement l'objet d'une thèse de doctorat (Poliana Dutra Maia) et la préparation de trois articles.

On observe dans les eaux de surface des lacs d'inondation du cours de l'Amazone, une grande hétérogénéité spatiale des concentrations en mercure total (T-Hg) ainsi qu'une importante variabilité temporelle. Les concentrations maxima en T-Hg (jusqu'à 190 ng.l⁻¹) ont été mesurées pendant la phase d'étiage dans le lac en connexion permanente avec le fleuve enrichi en MES. Les concentrations minima varient entre 3 et 9 ng.l⁻¹, respectivement dans des lacs d'eau noire et blanche, et ont été mesurées en hautes eaux, en juin. Les très fortes concentrations sont dues à l'enrichissement en MES de la colonne d'eau, fortement réduite en étiage (Fig. 6), dû à la remise en suspension des sédiments de fond sous l'action du vent, et confirmées par le rapport P-Hg/T-Hg qui atteint 92 à 99% en basses eaux dans les lacs d'eau blanche.

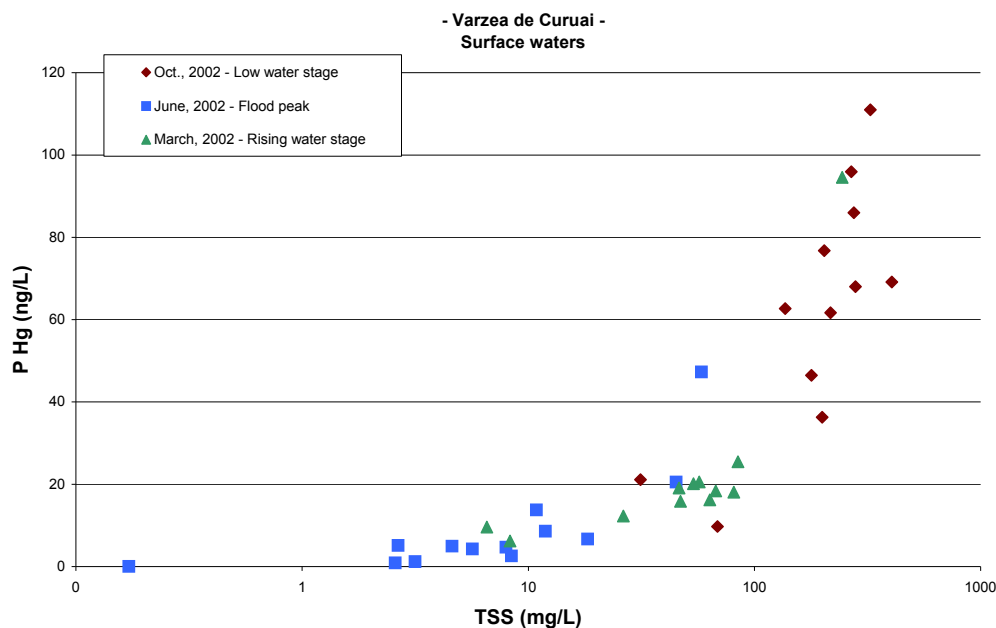


Fig. 6. Distribution du P-Hg (ng l^{-1}) avec les concentrations en MES (mg l^{-1}) dans les eaux de surface des lacs d'eau blanche et mise en évidence de la variation saisonnière.

La distribution de Hg entre les phases dissoute et particulaire (K_d) présente des corrélations négatives avec les teneurs en suspension dans les lacs d'inondation, et ce à toutes les périodes hydrologiques et ne varie pas avec les saisons ; la plus grande variabilité de K_d est spatiale et non temporelle (Fig. 7) une part importante de Hg « dissous » est en fait liée à la fraction colloïdale ; dans les lacs d'eau blanche, la réaction de sorption de Hg sur les hydroxydes de Mn semble dominer par rapport à ceux de Fe.

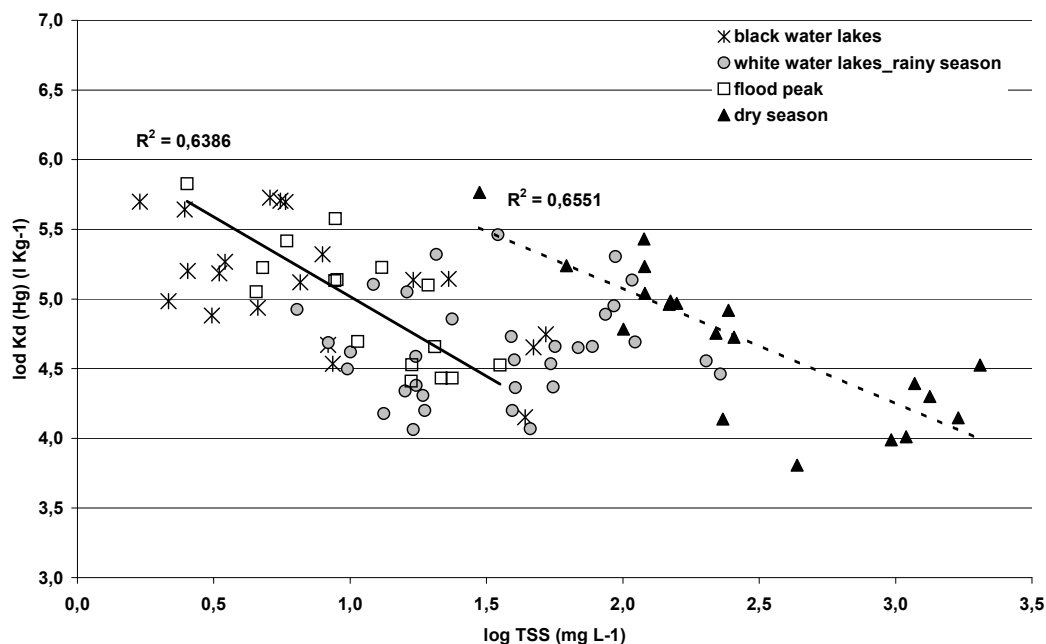
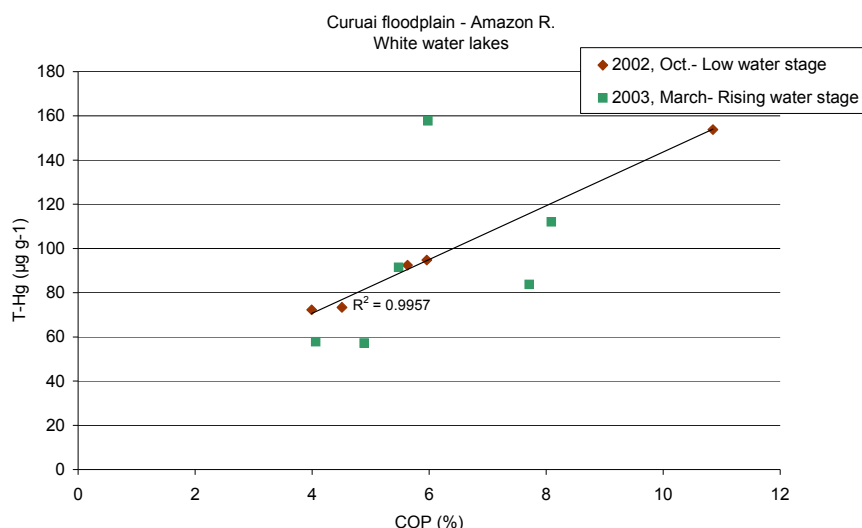


Fig. 7. Distribution du K_d avec les MES dans les lacs d'eau noire et d'eaux blanches en différentes saisons hydrologiques (2001 – 2006) de la « várzea de Curuai ».

Dans les sédiments de fond, l'hétérogénéité spatiale des teneurs en Hg-T est à relier à leur contenu en carbone organique (Fig. 8). Les concentrations varient entre 60 et 160 ng.g⁻¹, les concentrations les plus élevées étant observées dans les lacs d'eau noire, plus riches en carbone organique. Pendant leur stockage dans les lacs d'inondation, le mercure qui entre dans les lacs d'eaux blanches principalement sous forme particulaire subit différents processus tels que le dépôt en hautes eaux (conditions réductrices) et la remise en suspension en étiage (conditions oxydantes), l'adsorption et la désorption, la méthylation et la déméthylation, en



raison du changement des conditions rédox mais également hydrodynamiques.

Fig. 8. Distribution des concentrations en T-Hg (ng g⁻¹) en fonction des teneurs en COP (%) dans les sédiments de fond de lacs d'eau blanche.

Ces résultats font l'objet de 3 articles en préparation (insérés dans le cadre du travail de doctorat de P. Dutra Maia).

Par ailleurs, les "várzeas", nombreuses dans le bassin amazonien, présentent des conditions physico-chimiques propices à la méthylation du mercure et donc à la contamination des écosystèmes dans des environnements aquatiques non affectés directement par les activités d'orpaillage (Roulet *et al.*, 2000).

C'est en effet sous sa forme méthylée que le mercure devient un agent extrêmement toxique dans la chaîne alimentaire et devient donc responsable de l'intoxication de communautés installées sur les berges de rivières contaminées et fortes consommatrices de poissons (Malm *et al.*, 1990 ; Lebel *et al.*, 1998 ; Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000a).

PREMIERS BILANS

Nos différents calculs permettent de comparer l'importance de la géomorphologie dans le processus de transport et de piégeage des sédiments et du mercure associé aux particules fines.

Nous comparons dans ces premiers bilans, 2 sites, identiques à ceux du précédent chapitre :

1. la plaine d'inondation du Rio Béni, située au pied du piémont andin bolivien, et traversant 50 000 km² de forêts inondables
2. le système d'inondation de Curuai situé en rive droite du fleuve Amazone, à 900 km de son embouchure à l'Océan, d'une surface inondée variant de 575 km² à 2900 km².

Ces premières estimations sont calculées à partir d'un réseau de suivi hydrologique, sédimentaire et géochimique (mis en place dans le cadre du programme actuel Hybam), d'images satellitaires multi-temporelles et de modèles hydrosédimentaires développés dans ces 2 régions.

Dans la zone de piémont, la charge annuelle de sédiments érodés des massifs andins boliviens est en moyenne de 300 10⁶ tonnes dont 70% à 97% est exportée durant les 4 mois de la période de crue (Guyot *et al.*, 1995; Maurice Bourgoïn *et al.*, 2002).

Les mesures mensuelles de flux instantanés de Hg associé aux mesures de débits journaliers nous ont permis d'estimer que les apports annuels en Hg à l'entrée de la plaine d'inondation du Rio Beni varient entre 14,2 tonnes (en 1999-2000) et 28,6 t (en 1998-99 et 2000-01, années caractérisées par des crues abondantes) dont 71 à 78% est exporté en crue.

A partir d'un modèle détaillé de transport et de dépôt sédimentaire développé dans la plaine du Rio Beni, calé sur des mesures de ²¹⁰Pb dans près de 200 carottes de sédiments (Aalto *et al.*, 2003) et la relation entre les concentrations en Hg-T dans les sédiments et les teneurs en argiles ($r^2=0,7$; N=109), il apparaît que les taux annuels de dépôt de sédiments et de mercure atteignent respectivement 126.10⁶ t et 4,5 t T-Hg (Fig. 9), ce qui correspond à 42% et 14% des flux totaux annuels de sédiments et de Hg arrachés des massifs andins. On observe également une diminution dans le taux de dépôt de Hg d'amont en aval de la plaine du Rio Beni, se réduisant de 9,7 à 1,5 kg.y⁻¹ entre Rurrenabaque et sa confluence avec le Rio Madre de Dios.

Dans la plaine d'inondation de Curuai, les estimations ont été faites pour la période 1999-2003. Le dépôt moyen annuel de sédiments est de 700 000 t.an⁻¹, ce qui correspond à un taux moyen d'accrétion de 1,6 mm.an⁻¹ ($\pm 23\%$).

La source principale de suspensions dans ce système d'inondation est le fleuve Amazone, et plus précisément environ les 10 premiers mètres de ses eaux de surface, qui pénètrent dans les chenaux de connexion au fleuve ou qui se déposent par débordement de berges. Ce processus a lieu entre janvier et mai, pendant la phase de montée de crue de l'Amazone. Les concentrations en Hg-P adsorbé sur les particules fines des eaux de surface du fleuve et mesurées au cours de campagnes ponctuelles (8 entre 2001 et 2004) nous ont permis de calculer un bilan annuel en Hg dans ce système. Le taux annuel de dépôt de Hg dans la « várzea de Curuai » varie entre 66 et 128 kg P-Hg.an⁻¹ ce qui correspond à 7% seulement du flux journalier de Hg transporté par le fleuve en montée de crue.

En comparaison, le flux spécifique de dépôt moyen annuel dans la plaine d'inondation du Rio Beni est de $90 \text{ g P-Hg km}^{-2}.\text{an}^{-1}$ contre $\sim 60 \text{ g P-Hg km}^{-2}.\text{an}^{-1}$ dans une plaine d'inondation du cours moyen de l'Amazone (Maurice Bourgoïn *et al.*, 2004). Les taux de dépôt sédimentaire actuel et de Hg associé sont donc plus importants dans les premières plaines d'inondation (« foreland basin ») que dans celles du cours moyen du fleuve.

Nos résultats mettent en évidence que les échanges d'eau et de sédiments entre la plaine d'inondation et le chenal principal jouent un rôle important dans la distribution spatiale de Hg, dans son transport et son dépôt et montrent un contraste évident entre les premières plaines d'inondation, situées juste à l'aval du piémont andin et celles du cours moyen de l'Amazone.

Même si ce stockage ne dépasse pas 20% du mercure transitant par le chenal principal, cet élément, pendant sa phase de stockage dans les lacs d'inondation subira de nombreux processus de spéciation chimique, comme la méthylation, la réduction, la volatilisation, l'adsorption, etc..., en raison du changement des conditions rédox et des caractéristiques hydrodynamiques. La combinaison de ces facteurs va favoriser l'entrée de Hg dans la chaîne trophique aquatique.

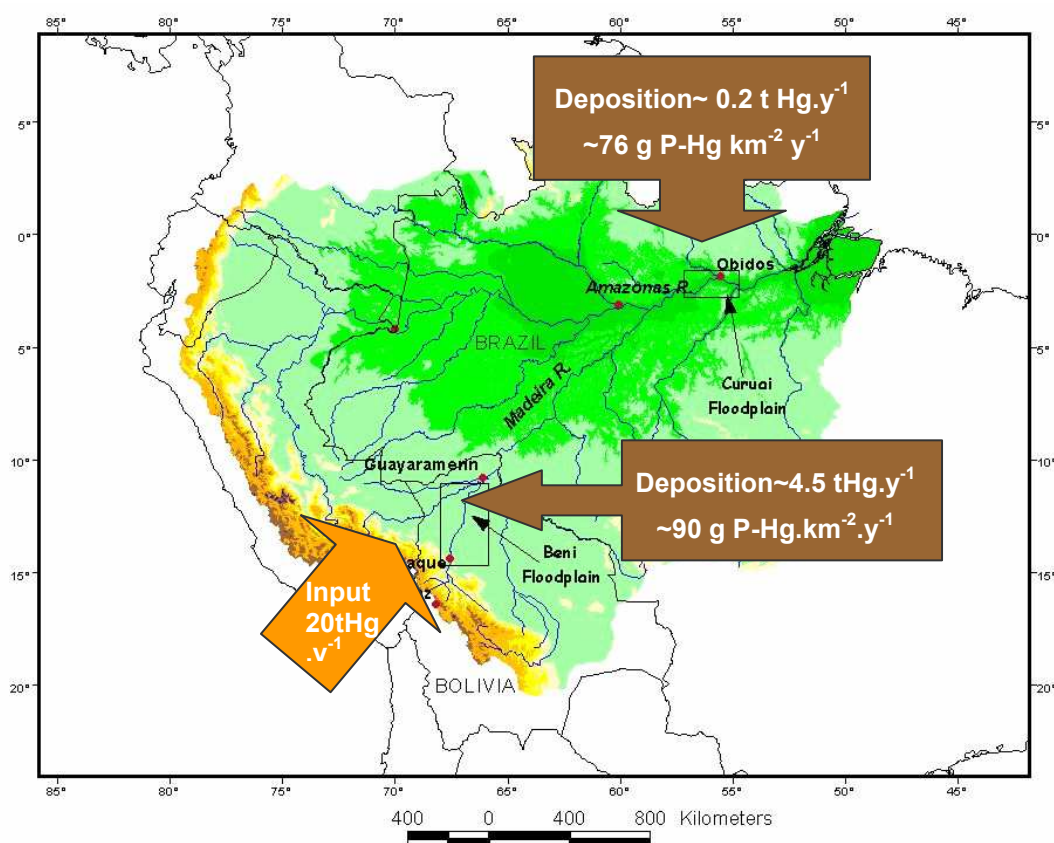


Figure 9. Comparaison des apports et des taux de dépôt annuels de Hg dans deux systèmes d'inondation du bassin Amazonien : l'un situé à l'exutoire du piémont andin (Beni floodplain) et le second, le long du fleuve Amazone, dans la plaine centrale (Curuai floodplain).

IMPACTS SUR LA SANTE HUMAINE

Le mercure est à l'origine de maladies professionnelles. L'intoxication par le mercure s'appelle l'*hydrargie* ou *hydrargyrisme*, caractérisée par des lésions des centres nerveux se traduisant par des tremblements, des difficultés d'élocution, des troubles psychiques. Il a longtemps été utilisé dans l'industrie du feutre, dans la fabrication des peintures, piles, des lampes, des thermomètres, des amalgames dentaires, ainsi que dans l'industrie électronique.

En dehors du milieu professionnel, le mercure est repéré comme un élément toxique, et plus particulièrement néphrotoxique (agissant sur les reins), et neurologique (agissant sur le système nerveux). Les symptômes sont des troubles mentaux plus ou moins graves, une salivation excessive, des douleurs abdominales, des vomissements, de l'urémie (accumulation d'urée liée à une insuffisance de la fonction rénale).

Les troubles peuvent être décuplés en cas d'intoxication grave comme ce fut le cas au Japon, il y a un demi-siècle (voir encadré sur le drame de Minamata). Les premiers effets neurotoxiques décelés chez l'adulte surviendraient à partir d'un certain seuil, variable selon les indicateurs. Il est habituellement reconnu que le seuil minimum de concentration en mercure dans le sang et dans les cheveux est de $200 \mu\text{g.l}^{-1}$ et $50 \mu\text{g.g}^{-1}$. Chez les personnes exposées au méthylmercure, le seuil de $200 \mu\text{g.l}^{-1}$ doit être divisé par deux, soit $100 \mu\text{g.l}^{-1}$. Pour un travailleur exposé aux vapeurs de mercure, la concentration est calculée par rapport à l'air et à l'urine, soit $50 \mu\text{g.m}^3$ d'air et $50 \mu\text{g.g}^{-1}$ de créatinine. Les seuils de détectabilité des effets ont entraîné la fixation de valeurs limites d'exposition :

mercure inorganique	Concentration moyenne dans la population générale	Valeur limite pour les travailleurs exposés
Concentration urine	$5 \mu\text{g.g}^{-1}$ de créatinine	$50 \mu\text{g.g}^{-1}$ de créatinine
Concentration sang	$5 \mu\text{g.l}^{-1}$ de sang	$15 \mu\text{g.l}^{-1}$ de sang

Les symptômes sont des troubles mentaux plus ou moins graves, une salivation excessive (ptyalisme), des douleurs abdominales, des vomissements, de l'urémie.

D'où vient la toxicité du mercure ?

La toxicité du mercure est établie depuis l'Antiquité. C'est un métal très réactif aux conditions du milieu dans lequel il se trouve.

La toxicité du mercure est associée à sa relative solubilité dans l'eau et dans les graisses et à sa capacité à se lier avec d'autres molécules, en particulier organiques, dont il va modifier les fonctions. Le méthylmercure (MMHg) est la forme plus toxique du Hg dû au fait qu'il est directement assimilable par les organismes vivants et bioaccumulable dans la chaîne trophique (Guimarães et al., 1999 ; Roulet et al., 2000 ; Mergler et al., 2007). Cette forme chimique toxique a une grande solubilité dans les lipides et les solvants, mais surtout une grande affinité pour les groupements sulfhydryles ou thiols (-SH), particulièrement abondants dans les protéines (cystéine, kératine, ...). Le méthylmercure est un neurotoxique très actif qui peut passer dans le sang et à travers la membrane des cellules. Ces propriétés lui confèrent une grande stabilité avec un temps de demie vie long : 70 jours dans le sang, et 270 jours dans le cerveau (Picot et al., 1998). Les cibles principales du MMHg sont le cerveau où il attaque le système nerveux en inhibant la synthèse de protéines et d'ARN. Il génère aussi des effets tératogènes sur l'embryon provoquant des malformations (Mergler et al., 2007 ; Scheuhammer et al., 2007). La particularité du MMHg est qu'il est très toxique même à très faibles concentrations avec de doses létales comprise entre 10 et $100 \mu\text{g L}^{-1}$ pour les organismes aquatiques (WHO IPCS, 1989).

La contamination par le mercure : l'exemple de Minamata

En 1956, une épidémie se déclenche dans la baie de Minamata, au sud du Japon. Les troubles affectent plus particulièrement les familles de pêcheurs (malformation de nouveau-nés, dysfonctionnement du système nerveux) et les animaux domestiques (chats atteints de convulsions, se jetant dans la mer du haut des falaises), également grands consommateurs de poissons.

Les analyses montrent qu'une usine de produits chimiques fabriquant du plastique (PVC, chlorure de polyvinyle) utilisait le mercure comme catalyseur qu'elle rejetait en mer. Bien que le mercure soit rejeté sous forme inorganique (oxyde de mercure), l'activité bactérienne des micro-organismes marins l'ont transformé en une forme organique (méthylmercure), biodisponible et très toxique.

Les concentrations maximales de mercure dans les coquillages et les poissons atteignaient respectivement $179 \mu\text{g.g}^{-1}$ de poids sec (norme OMS $2,5 \mu\text{g.g}^{-1}$ de poids sec) et $23 \mu\text{g.g}^{-1}$ de poids frais (norme OMS $0,5 \mu\text{g.g}^{-1}$ de poids frais). Les concentrations de mercure dans les cheveux des malades pouvaient monter jusqu'à $705 \mu\text{g.kg}^{-1}$ (pour une norme OMS de 10).

Le lien entre l'épidémie et la présence de mercure ayant été détecté, l'activité de la société a été arrêtée, la pêche interdite pendant plus de quarante ans, des opérations gigantesques de dragage ont été menées (pour retirer $1,5$ millions de m^3 de sédiments). Les concentrations ont graduellement diminué. L'épidémie a causé au moins 48 morts, 158 invalides, incapables de subvenir seuls à leurs besoins, et 1 742 victimes.

Une toxicité qui n'est pas uniforme

a) Cette toxicité dépend des formes chimiques du mercure :

- **le mercure sous forme liquide (Hg^0)**. Cette forme est peu toxique car très peu absorbée par voie orale. L'ingestion de mercure quitte le corps en quasi-totalité (plus de 99 %) par les voies naturelles (selles, urine). Un directeur d'un centre antipoison à Vienne s'est personnellement soumis à l'expérience qui consistait à avaler 100 grammes de mercure métallique : le mercure va dans l'estomac, puis dans l'appendice. Le taux de mercure dans l'urine est monté jusqu'à 80 mg/litre après deux mois, puis est redescendu jusqu'à résorption totale.

- **le mercure métallique sous forme vapeur (Hg^0)**. Le mercure liquide chauffé au cours du brûlage de l'amalgame par exemple, passe sous forme vapeur. Il n'est plus ingéré dans l'estomac mais inhalé, et va, par conséquent, dans les poumons et dans le sang. Le mercure est alors transporté dans les différentes parties du corps, notamment dans le cerveau, organe cible des intoxications par vapeurs mercurielles.

Lorsque les vapeurs ont pour origine un amalgame dentaire, une partie est avalée et solubilisée dans la salive, puis absorbée par l'estomac.

- **le mercure sous forme ionique (HgII)** peut pénétrer dans le corps par voie orale (inhalation) ou cutanée. Par exemple, les racines des dents peuvent être chargées en mercure, après la pose d'un amalgame. Les voies de contamination se concentrent notamment dans le foie et les reins.

- **Le mercure organique** a déjà été absorbé et assimilé par un organisme vivant et se retrouve dans les tissus de celui-ci. Il peut être à nouveau ingéré par un autre (exemple : mercure absorbé par les poissons et crustacés, concentré dans les parties digestives et dans la chair, elles-mêmes consommées par les humains). Cette forme est très toxique.

*b) Cette toxicité est renforcée par un phénomène de concentration au sein de la chaîne trophique, appelé **bioaccumulation**.* La bioaccumulation est le processus d'assimilation et de concentration des métaux lourds dans les organismes vivants. Le processus se déroule en deux

temps : la bioaccumulation commence par un premier organisme (le mercure soluble est très peu éliminé et est assimilé par des bactéries, algues, ...) et continue à se transmettre à d'autres organismes puis passe d'un niveau trophique à un autre supérieur (herbivore, carnivore, piscivore,...). Les concentrations augmentent avec le niveau trophique. Ce phénomène de **bioamplification** représente le principal danger du méthylmercure, car à partir d'un milieu apparemment peu pollué, les concentrations dans les compartiments de fin de chaîne peuvent atteindre des valeurs dix millions de fois supérieures à celle de départ. De 70% à 90% de Hg qui se concentre dans les poissons se trouve sous forme organique et devient donc, de ce fait, très toxique, et ce, quelles que soient les sources de Hg inorganique à l'origine de la production de MeHg. La bioaccumulation préférentielle de cette forme organique vient de ce qu'elle est plus rapidement assimilée et plus lentement éliminée que les formes inorganiques. Les processus de bioaccumulation de MeHg dans les organismes, combinés à ceux de bioamplification le long de la chaîne trophique, expliquent la présence de grandes quantités de MeHg dans les tissus musculaires des poissons, pouvant atteindre jusqu'à 60% de leur biomasse. Les niveaux de contamination des poissons au MeHg peuvent être très variables d'une espèce à l'autre mais également au sein d'une même espèce. Ils varient en fonction de l'évolution bioécologique des poissons et surtout de leur niveau trophique (changement d'habitat et de régime alimentaire et parfois de sexe, au cours de leur vie) ; il faut donc connaître les « traits de vie » des différentes espèces consommées par les populations locales, pour interpréter les résultats de Hg dans leurs tissus.

Quelles sont les voies d'intoxication ?

Les deux voies principales de pénétration du mercure dans l'organisme sont l'inhalation et l'ingestion. L'absorption cutanée est beaucoup moins fréquente et ne survient qu'à la suite d'intoxications accidentelles (contact de la peau avec du mercure liquide) ou cosmétiques (savon à base de iodure de mercure utilisé en Afrique pour blanchir la peau).

L'inhalation : Le mercure est le seul métal qui peut passer sous forme vapeur à température ambiante. La vapeur est inhalée et est très facilement absorbée. Certains dérivés organiques (le diméthylmercure) volatiles, peuvent pénétrer également dans l'organisme par inhalation.

L'ingestion : Hors absorption accidentelle ou expérimentale du mercure liquide, et hors absorption de composés ioniques, l'ingestion concerne essentiellement les formes organiques de mercure, absorbées par l'intermédiaire de la nourriture.

Le mercure affecte les 3 systèmes biologiques : nerveux, rénal et immunitaire. En fonction de ses propriétés physico-chimiques, chaque forme chimique de mercure atteint des « cibles » biologiques préférentielles. Selon la forme chimique, le mercure va être dirigé vers certaines cellules ou parties de l'organisme. La spéciation influence directement la toxicité du mercure. Pour cette même raison, la sensibilité au mercure est également très différente selon les espèces biologiques. Les composés inorganiques du mercure ont pour cibles principales le système nerveux central (quand le mercure est sous forme métallique Hg^0), les reins (quand le mercure est sous forme ionisée Hg^{2+}) et, éventuellement, la peau. Le cerveau humain présente des affinités particulières pour le Hg organique et peut concentrer cet élément jusqu'à six fois la teneur mesurée dans le sang. Après digestion d'aliments contaminés, plus de 90% de Hg est absorbée par la paroi gastro-intestinale. Il est ensuite transféré dans le sang et 4 jours plus tard, 95% de Hg est diffusé dans tout l'organisme.

L'alimentation des populations humaines du bassin Amazonien, basée sur la consommation de poissons de rivières, est la source majeure de l'imprégnation par le méthylmercure. L'analyse de la concentration de Hg dans les cheveux constitue un moyen

efficace pour connaître l'exposition au MeHg ; ces concentrations montrent que les niveaux d'exposition chronique auxquelles sont soumises les populations amazoniennes sont parmi les plus élevés au monde. A l'échelle mondiale, il est rapporté des valeurs moyennes allant de 1,4 $\mu\text{g g}^{-1}$ pour une consommation hebdomadaire de poissons à 11,6 $\mu\text{g g}^{-1}$ pour une consommation quotidienne. Dans les populations amazoniennes, les valeurs publiées se situent à $\sim 10 \mu\text{g g}^{-1}$ et plus.

Cependant, il est à noter que les techniques de préparation des échantillons de cheveux avant analyses, c'est-à-dire lavage et minéralisation, ne s'avèrent pas efficaces à 100%, et que ces méthodes concernent presque toutes les valeurs des communautés amazoniennes publiées dans des revues internationales. En effet, le lavage des cheveux à l'EDTA n'est pas très efficace et la minéralisation acide, souvent incomplète.

Dans le cadre de la thèse de Laure Laffont, au LMTG, nous avons analysé cette année, les mêmes échantillons de cheveux des communautés indigènes et des populations de mineurs que nous avons analysés en 1998 à l'UFRJ (à Rio de Janeiro) par spectrométrie d'absorption atomique (SAA) après lavage et attaque acide à chaud. Avec le nouvel appareil (DMA 80), l'échantillon est placé brut dans l'appareil et brûlé intégralement avant analyse par SAA. Les résultats sont probants (Fig. 10) mais également encore plus préoccupants :

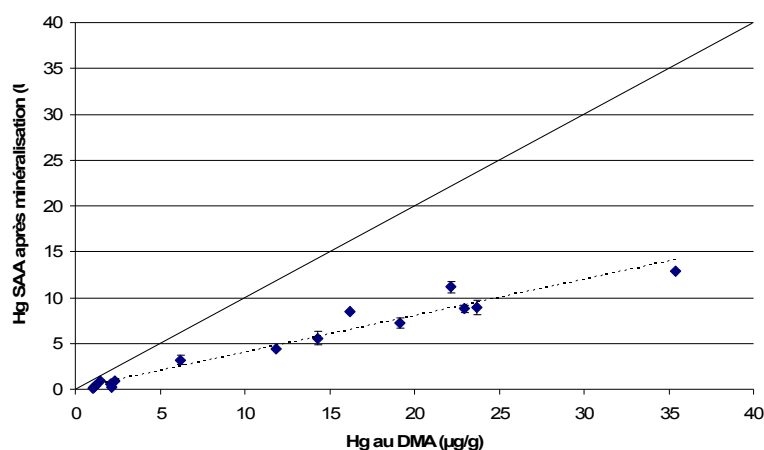


Figure 10. Comparaison des analyses de Hg total dans les cheveux de mineurs et de communautés indigènes (Bolivie) par SAA après lavage à l'EDTA et minéralisation (à l'UFRJ, Brésil) et directement après brûlage complet (DMA au LMTG).

Le risque de contamination dépend à la fois des doses ingérées ou inhalées et du temps d'exposition (Mergler et Lebel, 2001). La contamination au méthylmercure affecte le système neurologique dont les conséquences peuvent être irréversibles, et ses effets sont d'autant plus préoccupants que cette exposition commence *in utero*. En effet, dans de nombreuses populations amazoniennes, des effets notoires sur la coordination des membres, ou le développement mental ont été mis en évidence chez les individus exposés *in utero*. Des anomalies de développement psychomoteur de l'enfant ont été associées à l'exposition au Hg de la mère pendant la grossesse, sans que celle-ci présente des symptômes d'intoxication. Le MeHg possède la propriété de traverser la barrière placentaire, de sorte qu'il contamine le fœtus et le nouveau-né. Les effets sont plus néfastes que chez l'adulte puisque leur barrière hémato-encéphalique est encore en formation (Cordier, 2001).

Le problème est que cet élément toxique atteint certaines populations autochtones déjà fragilisées par des conditions sanitaires précaires, aggravées par la présence de maladies endémiques telles que le paludisme ou la fièvre jaune, et des maladies induites par leurs conditions de vie précaire, telles que des parasitoses, hépatites, ou anémie (Bénéfice *et al.*, 2006).

Bien que l'impact du mercure sur la santé soit difficile à évaluer car il est impossible de discriminer les symptômes des maladies présentes et ceux des intoxications au Hg, il ne peut pour autant être négligé car il peut aussi affecter le système immunitaire.

QUE CHERCHE-T-ON À SAVOIR ET COMPRENDRE MAINTENANT ?

La première question à laquelle la communauté internationale essaie de répondre est :

Quelle est la part des activités humaines dans les concentrations en mercure des compartiments biotiques et abiotiques de notre planète ?

Un rapport de l'EPA (US EPA, 1997b) fait état de teneurs préoccupantes en Hg dans quasiment toutes les espèces animales évoluant tant l'hémisphère nord que dans l'hémisphère sud. Les oiseaux et mammifères marins, de par leur régime alimentaire, sont particulièrement exposés et font l'objet d'un suivi aux Etats-Unis (en particulier par le NIST et l'U.S. EPA).

Faut-il penser que plus de résultats sont publiés et plus de risques sont à craindre ?

Avant 1992, les concentrations en Hg publiées par les chercheurs n'étaient pas fiables car les échantillons étaient pour la plupart contaminés lors de leur prélèvement, leur stockage et leurs analyses. Depuis des protocoles 'ultra-propres' ont été mis en place et respectés, ce qui a permis de diviser par plus de 10 les concentrations initialement diffusées, surtout dans les eaux et l'atmosphère. Actuellement, la performance et la variété des outils analytiques à notre disposition permettent de réaliser des analyses de cet élément dans presque tous les compartiments biotiques et abiotiques de notre planète.

Si les premières études de contamination par Hg en Amazonie se sont focalisées sur les sites d'orpaillage (Malm, *et al.*, 1990, 1995 ; Pfeiffer *et al.*, 1993), en revanche, des études récentes, menées en particulier par des chercheurs de l'IRD (de l'UMR LMTG), ont montré l'importance des sources d'origine naturelle et antérieures aux activités humaines dans la région, par exemple, dans les concentrations élevées de Hg mesuré dans les sols tropicaux du bassin du Rio Tapajós (Roulet *et al.*, 1998a, 1998b). Le processus d'érosion des sols anciens mis à nu par certaines pratiques agricoles (Roulet *et al.*, 1999) ou de lessivage chimique de sols et roches de bassins du piémont andin, particulièrement important en saison des pluies (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000 et 2003b) constituent des facteurs clés dans la perturbation du cycle naturel de Hg en Amazonie.

Les 3 activités humaines principales à l'origine de la perturbation du cycle de Hg dans l'environnement et en particulier dans le bassin Amazonien, sont :

- les activités minières : la conséquence principale de ces activités est une accélération de l'érosion et un relargage dans l'hydrosystème de milliers de tonnes de sédiments plus ou moins contaminés, dont l'impact environnemental est plus important que le processus d'émission directe de Hg sous forme vapeur lors du brûlage de l'amalgame ou directement sur les sols des sites miniers.
- certaines pratiques agricoles, telles que la déforestation et la culture sur brûlis : elles sont responsables d'une importante érosion des surfaces terrestres ; l'érosion des oxisols par exemple, a été identifiée comme l'un des principaux processus d'enrichissement en Hg des plaines d'inondation (Roulet *et al.*, 1999). Le second processus entraînant la mobilisation de Hg dans l'hydrosystème correspond à un changement d'état du fer (réduction) et à son départ sous forme dissoute, dû à la

saturation en eau du sol au cours d'avverses prolongées, entraînant une dissolution des oxy-hydroxydes de fer et une mobilisation du mercure qui leur est associé (Grimaldi *et al.*, 2001).

- les barrages hydroélectriques : les modifications des conditions géochimiques liées à la mise en eau des barrages, notamment la disparition rapide de l'oxygène dans une partie de la colonne d'eau, couplées aux conditions thermiques élevées (dans la zone intertropicale) constituent des conditions propices à la méthylation de Hg par les bactéries (Coquery *et al.*, 2003). Les concentrations de Hg dans les poissons de réservoirs amazoniens sont presque toujours plus élevées que celles observées chez les mêmes espèces provenant des rivières et des plaines inondables naturelles.

Au cours du XX^{ème} siècle, on estime que les émissions anthropiques auraient triplé les concentrations de Hg dans l'atmosphère et les océans. Si la communauté scientifique s'accorde pour avoir mesuré, au cours du siècle dernier, une augmentation significative des concentrations en mercure dans de nombreuses espèces végétales et animales des deux hémisphères, l'état des connaissances actuel ne permet pas de déterminer la part des activités anthropiques dans ces teneurs. C'est une question clé à laquelle nous souhaitons apporter, grâce à l'utilisation de nouveaux outils géochimiques, comme la variation des rapports isotopiques de Hg, de nouveaux éléments de réponse.

La seconde question d'actualité est :

Quels sont les mécanismes naturels qui influencent la dynamique du mercure dans l'environnement ?

Dans l'atmosphère, différentes réactions de transformation entre les espèces de Hg ont lieu en phases gazeuse et aqueuse. Ce sont :

- des réactions d'oxydation de Hg^0 en Hg^{2+} , en présence de O_3 ou de $\text{H}_2\text{O}_2 + \text{H}^+$
- des réactions de réduction de Hg^{2+} en Hg^0 , par l'action combinée de H_2O_2 et de OH^- , ou encore
- des transformations de Hg en HgSO_3 au contact de SO_2 , suivies d'une décomposition photochimique du produit formé en Hg^0 .

Dans l'hydrosystème, et dans les eaux de surface du bassin Amazonien en particulier, le mercure est principalement transporté sous forme particulaire ; les processus de transport, transfert, dépôt et spéciation sont largement développés dans l'article de Maurice-Bourgoin *et al.* (2001).

Les principaux mécanismes naturels qui influencent la dynamique de Hg dans l'hydrosystème sont :

- l'altération et le lessivage des roches, en particulier le lessivage des schistes noirs. L'analyse de ces schistes a permis de mettre en évidence la présence de composés sulfurés, tels que la pyrite. Les fortes précipitations et les processus d'érosion et de lessivage sont à l'origine d'une grande partie des éboulements ou glissements de terrain observés le long des vallées andines, notamment sur les terrains ayant été exploités par l'homme (cultures essentiellement). Ces zones

constituent alors des lieux privilégiés d'altération des roches et de source de mercure. Lors de l'oxydation des composés sulfurés, le mercure peut être mobilisé et donc introduit dans les milieux aquatiques sous forme dissoute mais principalement sous forme particulaire.

Mais aucune étude quantitative des flux de mercure apporté aux hydrosystèmes par lessivage des roches (acides en particulier) n'a été publiée ; nous travaillons plus particulièrement sur cette question depuis 1 an au LMTG en collaboration avec P. Behra (Professeur au LCA, ENSIACET). Par ailleurs, en collaboration avec l'Université de Washington et le Water Research Stroud Centre, et des partenaires universitaires du Sud, nous étudions plus précisément l'importance des crues dans le processus d'érosion physique et d'altération chimique des vallées andines du Pérou et de la Bolivie.

- l'érosion des sols : Hg(II) est la forme prédominante dans les sols, complexée à la matière organique, ou adsorbé aux oxy-hydroxydes de fer, de manganèse ou d'aluminium. Le mercure s'adsorbe sur les charges superficielles négatives des argiles, alors qu'il s'agit d'une liaison plus forte par remplacement de protons à la surface des oxy-hydroxydes. Le lessivage des sols par ruissellement superficiel et subsuperficiel entraîne donc le départ du mercure, principalement associé aux particules organo-minérales fines, vers les milieux aquatiques. Ces transferts de matière sont considérablement amplifiés sur les sols dénudés après déforestation et contribuent à l'augmentation des concentrations de mercure dans les eaux de surface de sous-bassins versants amazoniens non affectés par les activités d'orpaillage.

Cependant, aucune étude quantitative globale, à l'échelle des grands bassins versants, n'a permis de présenter des valeurs de relargage de cet élément dans l'hydrosystème due aux actions de déforestation. Un facteur d'émission moyen de Hg° dans l'atmosphère dû au déboisement de 273 g Hg.km⁻² a été proposé par Roulet *et al.* (1999) sur le bassin du Tapajós, ce qui permet d'évaluer un taux d'émission de Hg dans l'atmosphère dû à la déforestation en Amazonie brésilienne de 3 à 8 t Hg.an⁻¹; mais peu d'informations sur les conséquences de l'érosion physique due à la déforestation sont disponibles et à des échelles régionales souvent réduites. C'est un sujet de recherche développée dans le cadre de notre équipe de l'UR154 (IRD) du LMTG, à l'échelle régionale du bassin amazonien, grâce en particulier aux données du réseau ORE-Hybam.

- Le transfert dans les lacs de plaine d'inondation à l'origine de la méthylation du mercure : le mercure sorbé sur les particules fines (fraction argileuse en particulier) transféré au fleuve Amazone et ses affluents ne présente pas de risque direct pour la santé humaine. En revanche, après transformation des espèces inorganiques de Hg en espèces organiques, cet élément devient particulièrement toxique. Les sols amazoniens disposent de réserves de ce métal qui dépassent largement celles qui sont attribuées à l'activité d'orpaillage. Ces réserves peuvent être également à l'origine de la production de méthylmercure (CH₃-Hg⁺). Les plaines d'inondation du bassin amazonien renferment de multiples sites à méthylation : lacs d'eaux libres, forêts inondées, prairies à macrophytes, lacs de méandres. Ces zones présentent des taux de méthylation qui sont en moyenne trente fois supérieurs à ceux mesurés dans les sédiments sous-jacents ; principalement au niveau des racines adventives de certaines plantes aquatiques (Guimarães *et al.*, 2000).

Cependant, la diversité biogéochimique et les conditions hydrodynamiques des

lacs d'inondation du bassin amazonien ne permettent pas de généraliser ce risque. Nos études dans des lacs d'inondation d'eaux blanches et d'eaux noires le long du fleuve Amazone mettent en évidence une hétérogénéité du potentiel de méthylation suivant les caractéristiques géochimiques des lacs et le rôle limitant du manganèse, en particulier dans les lacs d'eaux blanches fortement poissonneux, et non limités en oxygène, ni en sulfates, ni en matière organique (Dutra Maia *et al.*, en prép.).

- Cette espèce chimique, CH_3Hg^+ , peut alors être incorporée directement dans la chaîne alimentaire aquatique et s'accumuler dans les différents maillons par les processus de bioaccumulation et bioamplification, pouvant atteindre dans les espèces de fin de chaîne trophique (poissons carnivores et piscivores) des teneurs élevées, souvent supérieures à la norme de consommation de $0,5 \mu\text{g Hg kg}^{-1}$ de poids frais (Roulet *et al.*, 2000 ; Dolbec *et al.*, 2001 ; Frery *et al.*, 2001 ; Beucher *et al.*, 2002 ; Maurice Bourgoïn *et al.*, 2002 ; Coquery *et al.*, 2003 ; Boudou *et al.*, 2005). Or les poissons amazoniens constituent une des principales sources protéiniques des populations de la région.

La complexité du cycle du mercure dans l'environnement naturel et dans les zones à forte activité humaine, et l'intérêt récent pour les problèmes liant santé et environnement, font que de nombreuses questions notamment sur les flux globaux à l'échelle des grands bassins et des océans, sur la biodisponibilité de cet élément, sur les facteurs favorisant sa méthylation ainsi que sur les risques au niveau des populations locales sont encore à l'ordre du jour.

Une autre question, plus vaste et plus délicate mais qui intéresse un plus large public, est de savoir en combien de temps un système complexe, après arrêt des apports en contaminants et en Hg en particulier d'origine anthropique dans l'atmosphère ou dans l'hydrosystème, retrouverait ses concentrations naturelles.

Cette question est vaste car elle dépend de la taille du système affecté, de la ou des formes chimiques rejetées, des concentrations émises, des compartiments affectés, du temps d'exposition de ces compartiments, etc... Les impacts pouvant être locaux, régionaux et globaux.

Les questions actuelles sont évidemment nombreuses et de plus en plus complexes et font heureusement, l'originalité et la finalité de nos recherches.

QUELS NOUVEAUX OUTILS POUR DE NOUVELLES REPONSES ?

Même si les premiers essais de détection d'une variation isotopique naturelle du mercure liquide datent de 1922 (Brönsted and von Hevesy, 1922), ce n'est que depuis les années 90 qu'une technique assez précise pour mesurer cette faible variation dans des échantillons naturels est développée. La spectrométrie de masse à collecteurs multiples a été couplée pour la première fois à un générateur d'hydrures, avec introduction de Hg en phase gazeuse, à l'Université de Michigan (Lauretta *et al.*, 2001).

Les premiers résultats de variation isotopique de Hg mesuré par "génération de vapeur froide – MC/ICPMS" sont récents et documentée dans la littérature de rang A (Lauretta *et al.*, 2001 ; Hintelmann et Lu, 2003 ; Jackson, 2004 ; Foucher and Hintelmann, 2006). Les variations mesurées, en notation delta (δ), exprimant la déviation du rapport $^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}$ par rapport à un standard, actuellement le CRM NIST 3133 (qui a remplacé le NIST 1641d).

$$\delta^{202}\text{Hg} = 1000 \times ([^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}]_{\text{éch.}} - [^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}]_{\text{standard}}) / [^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}]_{\text{standard}}$$

Les gammes de variation isotopiques observées pour un type de matrice ou de processus font émerger trois remarques majeures; on peut en effet observer:

- Une variation totale de 4 à 6‰ pour les mesures du rapport $^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}$ dans des échantillons biologiques, par rapport à une précision attendue de 0.2‰.
- Un enrichissement des isotopes légers pour le Hg industriel dont le Hg liquide et les solutions de Hg^{2+} ionique dérivées de Hg liquide (Figure 12).
- Un fractionnement isotopique au cours des processus de distillation (production de Hg liquide), de méthylation et d'oxydation/réduction (notamment réduction bactérienne).

Dans la compréhension du cycle du mercure en Amazonie, ces nouvelles observations sur le fractionnement des isotopes de Hg par des processus naturels et industriels ouvrent une nouvelle voie de recherche dans l'étude du transfert de cet élément. Contrairement à l'élément Pb dont la forte variation isotopique due aux processus radiogéniques permet de l'utiliser comme traceur géochronologique, les faibles variations isotopiques de Hg nous permettent de le considérer comme un traceur au comportement relativement simple. Le scénario qui consiste à tracer une signature isotopique « légère » de Hg liquide, venant de l'orpaillage, et une signature « lourde », représentant le mercure (II) naturel, sous forme ionique, dans les compartiments sols, sédiments, eaux, et chaîne trophique peut être compliqué par des changements des signatures dues aux transformations biogéochimiques de Hg. Il faut donc absolument qu'une étude de traçage isotopique des sources de Hg d'origines "naturelle" et "anthropique" inclue une quantification des fractionnements isotopiques au cours des principaux processus de spéciation de cet élément, comme l'oxydation/réduction, la méthylation, et la vaporisation/condensation ou encore les transferts "biotopes/organismes" et "proies/prédateurs", dans l'écosystème étudié. La caractérisation du fractionnement isotopique de Hg par des processus physico-chimiques nécessite des études à la fois sur le terrain et expérimentales, en laboratoire, avec un accent fort sur la spéciation et les conditions qui contrôlent cette spéciation (conditions rédox, concentration en sulfures, contenu en matière organique, etc...).

C'est un domaine de recherche nouveau, et donc actuellement en pleine évolution sur le plan international et dans lequel seulement quelques laboratoires dans le monde ont investi ; un laboratoire aux Etats-Unis, un autre au Canada (Université de Trent, Dept. of Chemistry) et en France, l'unique laboratoire à développer ce nouvel outil est le LMTG à Toulouse, grâce à l'équipe que nous avons pu monter à mon arrivée. Une bourse de thèse nous a d'ailleurs été accordée en 2006 sur ce sujet.

C'est un domaine pour lequel le LMTG apporte une contribution notable grâce:

- Aux équipements analytiques de haut niveau disponibles (en particulier grâce au MC-ICP/MS, Neptune) et à acquérir (pour les analyses de Hg total dans des matrices faiblement concentrées, et de Hg organique)
- Aux laboratoires d'expérimentation
- Aux compétences déjà acquises au LMTG dans ce domaine
- Aux grands programmes de recherche pluridisciplinaires permettant l'interprétation des fractionnements isotopiques observés dans un cadre global

Cette initiative scientifique a fait l'objet d'un financement CNRS fin 2006, dans le cadre de l'appel d'offre EC2CO (CYTRIX), sous le nom du programme RIMES *"L'étude du fractionnement isotopique de Hg dans les principaux compartiments du bassin amazonien (roches, sols, eau, sédiments, poissons, cheveux) peut-elle répondre au traçage des sources d'origines naturelle et anthropique de cet élément"* dont j'assume la coordination. Il commence déjà à porter ses fruits grâce en particulier à l'investissement d'une étudiante en thèse de doctorat, d'un jeune chercheur et de la collaboration avec l'équipe du LCABIE de Pau. Les premiers résultats obtenus au cours des premiers mois du projet sont très prometteurs.

L'objectif technologique spécifique de la première phase, à savoir développer et valider des méthodes analytiques fines pour la détermination des rapports isotopiques du mercure, extrêmement précis (0.1 à 0.3‰ RSD), pour les espèces mercure inorganique (Hg^{2+}) et méthylHg (MeHg^+) a été atteint.

Les 1^{ers} résultats des mesures isotopiques de Hg obtenus sur des échantillons naturels (prélevés en Bolivie lors de campagnes antérieures au projet) **se révèlent très prometteurs** puisque nous observons des rapports isotopiques significativement différents, notamment dans les cheveux des communautés indigènes qui se distinguent de tous les autres compartiments par des rapports positifs, enrichis en isotopes lourds (Fig. 11).

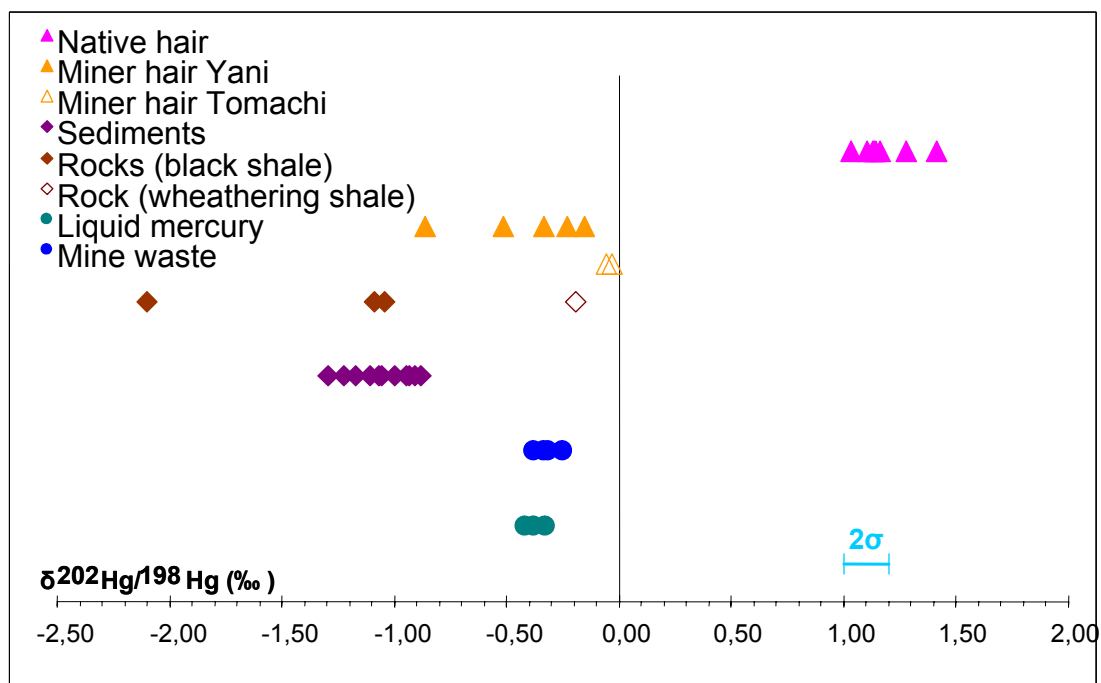


Figure 11. Rapports $\delta^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}$ exprimés en déviation standard corrigée % NIST-3133 (‰) mesurés dans des échantillons de Hg liquide, de roches, sédiments et cheveux de populations de mineurs et indigènes riveraines du Rio Beni (Esse Ejas) du bassin Amazonien Bolivien. La précision externe de la mesure, calculée à partir de 2σ , déterminée à partir de répliqués sur le matériel de référence MESS 3 pour les sédiments, est de 0,3 ‰ ; celle des cheveux, déterminée à partir du CRM IAEA 085, est de 0,2 ‰.

Nos premiers résultats sont en accord avec les premiers résultats publiés sur des échantillons naturels de roches et de sédiments mais sont caractérisées par de meilleures précisions (Fig. 12).

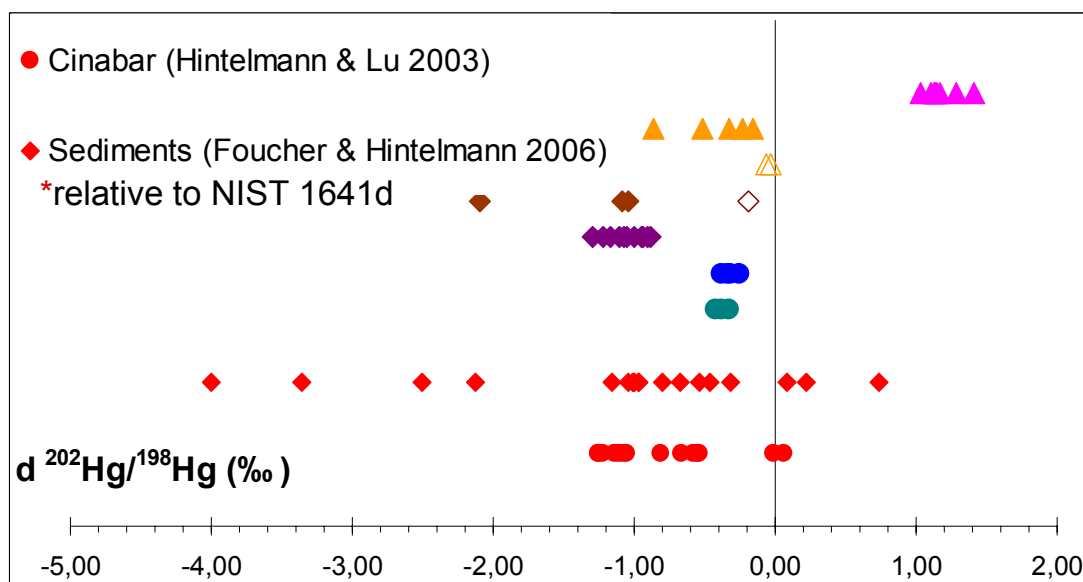


Figure 12. Comparaison avec d'autres auteurs (Hintelman and Lu, 2003 ; Foucher and Hintelman, 2006) des rapports $\delta^{202}\text{Hg}/^{198}\text{Hg}$ exprimés en déviation standard corrigée % CRM NIST-3133 ou 1641d (‰) mesurés dans des échantillons de cinabre et de sédiments.

Par ailleurs, un fractionnement *indépendant* de la masse a été observé sur tous les échantillons naturels, sur les isotopes 199 et 201. L'écart observé entre les mesures et la valeur théorique calculée à partir du fractionnement dépendant de la masse nous permet de calculer une nouvelle variable : l'anomalie.

Calcul des anomalies $\Delta^{x/y}\text{Hg}$ (selon Young and Galy, 2004) :

$$\Delta^{x/y}\text{Hg} = \delta'^x\text{Hg} - \beta\delta'^z/y\text{Hg}$$

avec :

$$\delta' = 1000 \cdot \ln\left(\frac{\delta + 1000}{1000}\right)$$

et :

$\beta = 0,254$ pour le rapport 199/198 sur 202/198

$\beta = 0,505$ pour le rapport 200/198 sur 202/198

$\beta = 0,754$ pour le rapport 201/198 sur 202/198

Des anomalies jusqu'à 1.16 et 0.98 ‰ sur les $\Delta^{199}\text{Hg}$ et $\Delta^{201}\text{Hg}$ ont été mesurées sur les échantillons de cheveux (Fig. 13); les valeurs maximales ayant été observées dans les populations de mineurs (plus hétérogènes au niveau alimentaire et origines ethniques). Ce résultat ouvre de nouvelles questions scientifiques pour la communauté internationale.

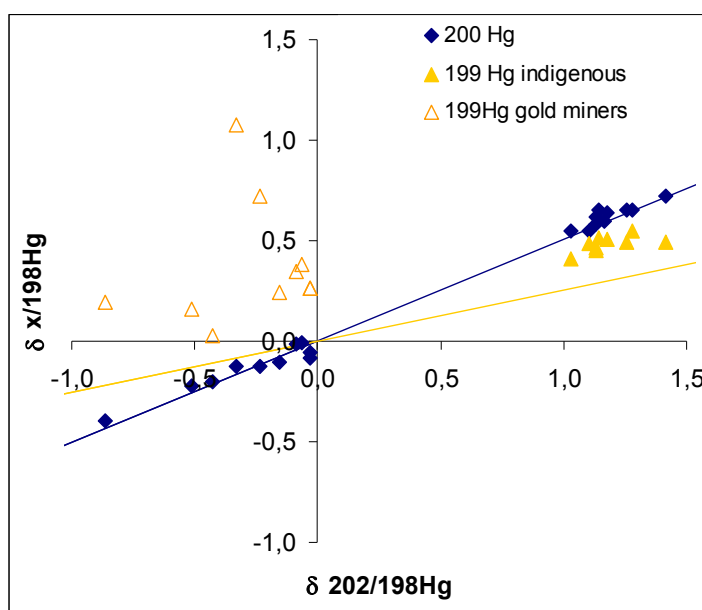


Figure 13. Diagramme tri-isotopique qui trace la variation des $\delta^{199/198}\text{Hg}$ et $\delta^{200/198}\text{Hg}$ (‰) en fonction du $\delta^{202/198}\text{Hg}$ dans les échantillons de cheveux. Les droites représentent les lignes de fractionnement dépendant de la masse.

L'observation d'un fractionnement isotopique *indépendant* de la masse, prévu par des théoriciens, est d'une valeur scientifique exceptionnelle. Son étude au cours du projet va peut-être permettre d'identifier les réactions élémentaires responsables des transferts de Hg entre les différents compartiments du système étudié, et placer **l'équipe RIMES au premier rang international**. Trois communications sur les résultats novateurs du projet seront présentées à la prochaine Goldschmidt Conference à Cologne (en août 2007).

PERSPECTIVES

L'année 2006-2007 est une année particulièrement importante puisque l'axe de recherche que je souhaitais développer en collaboration non seulement avec des chercheurs du LMTG, en France, mais aussi d'autres laboratoires aux compétences complémentaires, se voit doté d'un budget pour 3 ans. Ce cap signifie l'ouverture de nouvelles collaborations, un nouvel encadrement de thèse, et le montage d'un projet de recherche innovant avec des équipes françaises tout en maintenant un partenariat fort avec nos collègues d'Amérique Latine (de Bolivie et du Brésil).

Mes principales perspectives scientifiques dans le cadre de l'UR 154 (IRD) et de l'UMR LMTG, sont les suivantes:

- Une détermination plus précise de la part des sources naturelle et anthropique dans la distribution spatiale et la variabilité temporelle du mercure dans le bassin amazonien; l'idée étant d'utiliser le fractionnement isotopique de Hg dans différents compartiments clés pour tracer les origines de cet élément. Cet axe de recherche fait l'objet d'un financement dans le cadre du programme EC2CO-CYTRIX.

Pour répondre aux autres objectifs du projet, nous prévoyons en 2007 :

- Une étude plus fine du fractionnement indépendant de la masse sur un autre isotope (^{204}Hg) et sur un nombre plus large d'échantillons naturels.
 - Une étude des processus qui peuvent induire un fractionnement : volatilisation du mercure liquide par les orpailleurs, lixiviation-dissolution des minéraux, méthylation bactérienne, bioaccumulation dans la chaîne trophique, lyophilisation des échantillons de poissons, etc...
 - D'étudier les mécanismes d'altération et de libération du mercure de schistes altérés et non altérés collectés dans le bassin Amazonien Bolivien, et les quantifier, en tenant compte de la présence de minéraux soufrés, ce qui nécessitera des précautions particulières pour contrôler leur oxydation potentielle. Le but est de pouvoir estimer les flux de mercure issus de ces processus et les comparer aux estimations issues des mesures de terrain.
- La poursuite de l'étude de l'historique de la contamination par le mercure à l'échelle séculaire et également à l'échelle géologique, par l'analyse de carottes de sédiments dans des lacs d'inondation du cours moyen de l'Amazonie; une campagne de carottages profonds dans des lacs d'inondation du cours de l'Amazonie (à Curuai) a été réalisée en août 2004 en collaboration avec l'UR055 (IRD).

A plus long terme,

- L'étude des processus biogéochimiques de transformation et de spéciation du mercure dans l'estuaire de l'Amazonie – Quantification des apports à l'Océan (projet AMANDES auquel

je participe également mais dont les campagnes spécifiques aux éléments trace ne débiteront qu'en 2008).

- L'estimation des apports en Hg issus des sous-bassins andins péruviens. A l'heure actuelle, aucune donnée d'apports en Hg dissous et particulaire des rivières qui forment le Rio Solimões n'est disponible alors que ce tributaire draine 65% de la partie andine du bassin amazonien ($\sim 0,7.10^6$ km²) et constitue avec le Madeira la principale source de sédiments au fleuve Amazone et à ses plaines d'inondation. C'est une lacune importante à l'échelle du bassin amazonien ce d'autant que plusieurs rivières du piémont péruvien font l'objet d'exploitation aurifère intensive et sans grande précaution environnementale, ni sociale.
- L'étude de nouvelles plaines d'inondation au Pérou, et de nouveaux systèmes de piégeages sédimentaires. Quantification de ces piégeages, rôle de la tectonique et importance de ces zones dans les flux de mercure apportés au Rio Solimões. A ce jour, aucune information précise tant sur les bilans sédimentaires que sur les bilans en Hg n'est disponible malgré l'importance de ce tributaire.

Références bibliographiques

- Ahlers W.W., Reid M.R., Kim J.P., and Hunter K.A., 1990. Contamination-free sample collection and handling protocols for Trace elements in natural fresh waters. *Aust. J. Mar. Freshwater Res.*, 41:713-720.
- Akagi H., Kinjo Y., Branches F., Malm O., Harada M., Pfeiffer W. C., and Kato H., 1994. Methylmercury pollution in Tapajos River basin, Amazon *Environmental Sciences*, 3(1): 25-32.
- Albarède, F., Telouk, P., Blichert-Toft, J., Boyet, M., Agranier, A., Nelson, B. Precise and accurate isotopic measurements using multiple-collector ICPMS *Geochimica et Cosmochimica Acta* 2004, 68, 2725-2744.
- Bénéfice E., Monroy S.L., Jimenez S. and López R., 2006. Nutritional status of Amerindian children from the Beni River (lowland Bolivia) as related to environmental, maternal and dietary factors. *Public Health Nutrition*, 9(3): 327-335.
- Beucher C., P. Wong-Wah-Chung, C. Richard, G. Mailhot, M. Bolte and D. Cossa, 2002. Dissolved gaseous mercury formation under UV irradiation of unamended tropical waters from French Guyana, *Science of the Total Environment* 290(1-3), 131-138.
- Boudou, A., Maury-Brachet, R., Coquery, M., Durrieu, G. and Cossa, D., 2005. Synergic effect of gold mining and damming on mercury contamination in fish. *Environmental Science & Technology* 39 : 2448-2454.
- Boudou A., 2004. Lettre CNRS du Programme Mercure en Guyane.
- Brönsted, I.N. and von Hevesy, G., 1922. Das Atomgewicht von Quecksilber verschiedener Herkunft. *Z. Anorg. Allg. Chem.*, 124: 22-24.
- Carli M., 2003. Apports en mercure du piémont andin dans les eaux de surface du bassin amazonien. Contrôle hydrologique et impact des activités humaines. *Rapport de stage d'ingénieur* (3^e année) Ecole Polytechnique (Palaiseau, France).
- CITEPA, 1999. Inventaire des émissions dans l'air en France. Publication *Centre Interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique* (CITEPA, France).
- Cordier S., 2001. Effets de l'exposition au mercure sur le développement de l'enfant. In : *Le mercure en Amazonie : Rôle de l'homme et de l'environnement*, (Carmouze J.P., Lucotte M. and Boudou A., Eds.) IRD Publications (Expertise Collégiale), pp :391-400.
- Coquery, M., Cossa, D., Azemard, S., Peretyazhko, T., Charlet, L. 2003. Methylmercury formation in the anoxic waters of the Petit-Saut reservoir (French Guiana) and its spreading in the adjacent Sinnamary river. *Journal de Physique IV*, 107, 327-331.
- Cossa D., Coquery M., Gobeil C., and Martin J.-M., 1996. Mercury fluxes at the ocean margins. In Bayens W. *et al.* (Eds.): *Global and regional mercury cycles: sources, fluxes and mass balances*, Dordrecht, Kluwer Academic Publishers: 229-247.
- Coudrain-Ribstein A., Hérail G., Bergeron M. y Martinez J., 1992. Analisis multi-elemental de agua : una herramienta para exploracion de oro. *Revista Boliviana de Quimica*, 11(1): 47-54.
- Dolbec J. and Fréry N. , 2001. Contamination de poissons et exposition au méthylmercure des populations amazoniennes. In : *Le mercure en Amazonie : Rôle de l'homme et de l'environnement*, (Carmouze J.P., Lucotte M. and Boudou A., Eds.) IRD Publications (Expertise Collégiale), pp :321-345.
- Dunne T., Mertes L.A.K., Meade R.H., Richey J.E. and Forsberg B.R., 1998. Exchanges of sediment between the flood plain and channel of the Amazon River in Brazil. *GSA Bull.*, 110(4): 450-467.
- Elbaz-Poulichet F., Garnier J. M., Guan D. M., Martin J. M. and Thomas A. J., 1996. The Conservative Behaviour of Trace Metals (Cd, Cu, Ni and Pb) and As in the Surface Plume of Stratified Estuaries : Example of the Rhône River (France). *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 42:289-310.
- Eyrolle F., Fevrier D., and Benaim J.Y., 1993. Etude par DPASV de l'aptitude de la matière organique colloïdale à fixer et transporter les métaux : exemples de bassins versants en zone tropicale. *Environmental Technol.*, 14: 707-717.
- Evans, R.D., Hintelmann, H., Dillon, P.J., 2001. Measurement of high precision isotope ratios for mercury from coals using transient signals. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, Vol 16, p.1064-1069.

- Filizola N. 2003. Transfert sédimentaire actuel par les fleuves amazoniens. Thèse de doctorat, Université P. Sabatier, Toulouse. 292 pages.
- Foucher, D. and H. Hintelmann, 2006. High-precision measurement of mercury isotope ratios in sediments using cold-vapor generation multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry. *Analytical and Bioanalytical Chemistry* 384(7-8): 1470-1478.
- Frery N., R. Maury-Brachet, E. Maillot, M. Deheeger, B. de Merona and A. Boudou, 2001. Gold-mining activities and mercury contamination of native Amerindian communities in French Guiana: Key role of fish in dietary uptake, *Environmental Health Perspectives* 109(5), 449-456.
- Fry, B., 1991. Stable isotope diagrams of freshwater food webs. *Ecology*, 72: 2293-2297.
- Gaillardet, 1995. Géochimie comparée de deux grands systèmes fluviaux tropicaux : le Congo et l'Amazonie. Géochimie isotopique du bore dans les coraux. Erosion des continents et pH de l'océan. *PhD dissertation* Université Denis Diderot Paris 7 (France).
- Gaudet C., Lingard S., Cureton P., Keenleyside K., Smith S et Raju G., 1995. Canadian environmental quality guidelines for mercury. *Water, Air and Soil Pollution*, 80:1149-1159.
- Grace J. and Malhi Y., 2002. Carbone dioxide goes with the flow. *Nature*, 416:594-595.
- Grimaldi M., Gaudet J.P., Grimaldi C., Mélières M.A., and Spadini L., 2001. Sources, stocks et transfert de mercure dans les sols et sédiments. In : Programme Mercure en Guyane, *Rapport CNRS*, pp : 4-16.
- Guimarães J.R.D., Meili M., Malm O. and Sousa Brito, 1998. Mercury methylation in sediments and floating meadows of a tropical lake in Pantanal, Brazil. *Sci. Tot. Environ.*, 213: 165-176.
- Guimarães J.R., Meili M., Hylander L.D., Castro e Silva E., Roulet M., Mauro J.B.N and Lemos R.A., 2000. Net mercury methylation in five tropical floodplain regions of Brazil: high in the root zone of floating macrophyte mats but low in surface sediments and flooded soils. *Sci. of Total Environment*, 261(1-3): 99-107.
- Guyot, J. L., 1993. Hydrogéochimie des Fleuves de l'Amazonie Bolivienne. *PhD Dissertation*. Eds. IRD (ORSTOM), Paris, France, 261 pages.
- Guyot J.L., Quintanilla J., Cortes J., and Filizola N. 1995. Les flux de matières dissoutes et particulaires des Andes de Bolivie vers le Rio Madeira en Amazonie brésilienne. *Bulletin de l'Institut Français des Etudes Andines*, 24(3) : 415-423.
- Guyot, J. L., Jouanneau, J. M., and Wasson, J. G., 1999. Characterisation of river bed and suspended sediments in the Rio Madeira drainage basin (Bolivian Amazonia). *J. S. Am. Earth Sci.* 12, 401-410.
- Guyot J.L., J.M. Jouanneau, L. Soares, G.R. Boaventura, N. Maillet and C. Lagane, 2007. Clay mineral composition of river sediments in the Amazon Basin. *Catena*, in press <http://dx.doi.org/10.1016/j.catena.2007.02.002>.
- Hérail G., Argollo J., Fornari M., Laubacher G., and Viscarra G., 1986. El distrito de Tipuani, geología e historia. *Khrysos*, 2: 9-15.
- Hérail G., Fornari M., Viscarra G., Ruiz J.A., PozzoL., and Dumont J.F., 1991. Les placers d'or de Bolivie: milieux de formation et structure géologique. In: *Gisements alluviaux d'or* (Hérail G. and Fornari M., Eds), Orstom (IRD) Editions, *Actes du Symposium Int. sur les gisements d'or en Bolivie*, La Paz, 3-5 juin 1991.
- Hintelmann, H. and Lu, S. Y. 2003. High precision isotope ratio measurements of mercury isotopes in cinnabar ores using multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry *The Analyst* 128: 635-639.
- Irion, G., Junk, W.J. and de Mello, J.A.S.N., 1997. The large Central Amazonian River floodplains near Manaus: Geological, Climatological, Hydrological, and Geomorphological Aspects. In: *The central Amazon floodplain* (Junk, W.J., Ed.), Springer Verlag, 525 p.
- Jackson, T.A 2001. Variations in the isotope composition of mercury in a freshwater sediment sequence and food web. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.* 58 : 185-196.
- Jackson T. A., Muir D. G., and Vincent W. F. (2004) Historical Variations in the Stable Isotope Composition of Mercury in Arctic Lake Sediments. *Environmental Science and Technology* 38, 2813-2821.
- Junk W.J., 1985. The Amazon floodplain: a sink or source for organic carbon? In *Transport of Carbon and Minerals in Major World Rivers*, Pt3. SCOPE/UNEP (Ed), 267-283.

- Junk W.J. and Furch K., 1985. The physical and chemical properties of Amazonian waters and their relationships with the biota. In: *Amazonia Key environments* 1, (G.T. Prance & T.E. Lovejoy, Eds), Pergamon Press, New York, USA, pp: 3-17.
- Junk W.J., Bayley P.B., and Sparks R.E. 1989. The flood pulse concept in river floodplain systems, 110-127. In: *International Large River Symposium*, Dodge D.P. (Ed.). Can. Spec. Publ. Fish. Aquat. Sci., 106.
- Junk, W.J., and Piedade, M.T.F. 1993. Biomass and primary production of herbaceous plant communities in the Amazon floodplain. *Hydrobiologia*, 263:155-162.
- Junk W.J., 1997. The central Amazon floodplain: ecology of a pulsing system, Springer Berlin (Junk W.J., Ed.), Heidelberg, New York.
- Kosuth P., 2002. Hydrological dynamics of the varzea of Lago Grande de Curuai. In *2nd LBA (Large Scale Biosphere Atmosphere) Scientific Conference*, Manaus, Brazil.
- Kritee K., Blum J.D., Johnson M.W., Bergquist B.A. and Barkay T., 2007. Mercury stable isotope fractionation during reduction of Hg(II) to Hg(0) by mercury resistant microorganisms. *Environ. Sci. Technol.*, 41: 1889-1895.
- Krupp, E.M. and Donard O.F.X., 2005. Isotope ratios on transient signals with GC-MC/ICP-MS. *Int. J. Mass Spectrom.*, 242, 233-242.
- Lacerda L. D., and Salomons W., 1998. Mercury from gold and silver mining: a chemical time bomb? (Springer-Verlag Ed.), Berlin.
- Lacerda L.D., Pfeiffer W.C., Ott A.T. and Silveira E.G., 1989. Mercury contamination in the Madeira river, Amazon - Hg inputs to the environment. *Biotrop.*, 21(1): 91-93.
- Laraque A., Filizola N. and Guyot J.L., 2005. Variations spatio-temporelles du bilan sédimentaire dans le bassin amazonien brésilien, à partir d'un échantillonnage décadaire. In: "Sediment budgets 1&2" (D. E. Walling and A. J. Horowitz, Eds), *IAHS Publ.*, 291: 250-258.
- Lauretta D. S., Klaue B., Blum J. D., and Buseck P. R., 2001. Mercury abundances and isotopic compositions in the Murchison (CM) and Allende (CV) carbonaceous chondrites. *Geochimica et Cosmochimica Acta.*, 65: 2807-2818.
- Lebel, J., Mergler, D., Branches, F., Lucotte, M., Amorim, M., Larribe, F. and Dolbec, J., 1998. Neurotoxic effects of low-level mercury contamination in the Amazonian basin. *Environmental Research*, A79:20-32.
- LIDEMA (Liga de Defensa del Medio Ambiente), 1993. Estudio de impacto ambiental por la explotación de oro en la region de Nueva Esperanza, Araras, del departamento de Pando, La Paz, Bolivia. 175 pages + annexes.
- Lindberg S., Bullock R., Ebinghaus R., Engstrom D., Feng X., Fitzgerald W., Pirrone N., Prestbo E., and Seigneur C., 2007. A synthesis of progress and uncertainties in attributing the sources of mercury in deposition. *Ambio*, 36(1): 19-32.
- Malm O., Pfeiffer W.C., Souza C.M.M. and Reuther R., 1990. Mercury pollution due to gold mining in the Madeira river basin, Brazil. *Ambio*, 19(1): 11-15.
- Martin J.M. and Meybeck, 1979. Elemental mass balance of material carried by major world rivers. *Mar. Chem.*, 7: 173-206.
- Martinelli L.A., Ferreira J.R., Forsberg B.R. and Victoria R.L., 1988. Mercury contamination in the Amazon: A gold rush consequence. *Ambio*, 17: 252-254.
- Mason R. P. and Sheu G.-R., 2002. Role of the ocean in the global mercury cycle. *Global Biogeochem. Cycles*, 16 (4):40/1-40/14 doi:10.1029/2001GB001440.
- Meade, R.H., Dunne, T., Richey, J.E., Santos, U.M. and Salati, E., 1985. Storage and Remobilization of suspended Sediment in the lower Amazon River of Brazil. *Science* 228, 488-490.
- Mellack, J.M., 1984. Amazon floodplain lakes: shape, fetch and stratification. *Ver. Internat. Verein. Limnol.*, 22:1278-1282.
- Melack, JM and Forsberg, BR, 2001. Biogeochemistry of Amazon floodplain lakes and associated wetlands. In: *The biogeochemistry of the Amazon basin* (McClain, ME, Victoria, RL & Richey, JE, Eds), Oxford University Press, New York, pp. 235-274.
- Mergler D. and Lebel J., 2001. Les effets de l'exposition au méthylmercure chez les adultes. In : *Le mercure en Amazonie : Rôle de l'homme et de l'environnement*, (Carmouze J.P., Lucotte M. and Boudou A., Eds.) IRD Publications (Expertise Collégiale), pp :373-389.

- Mertes L.A.K., 1994. Rates of floodplain sedimentation on the central Amazon River. *Geology*, 22: 171-174.
- Mertes L.A.K., Dunne T., and Martinelli L.A. 1996. Channel floodplain geomorphology along the Solimões-Amazon river, Brazil. *Geological Society of America Bulletin*, 108(9): 1089-1107.
- Miquel G., 2001. Rapport sur les effets des métaux lourds sur l'environnement et la santé. *Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques* (Assemblée Nationale, Ed.), 365 pages.
- Mitchell S. 1999. The natural and anthropogenic fractionation of mercury isotopes. *M.Sc. thesis*, Florida State University.
- Moreira-Turcq, P.F., Seyler, P., Guyot, J.L., and Etcheber, H., 2003. Exportation of organic carbon from the Amazon River and its main tributaries. *Hydrological Processes*, 17 : 1329-1344.
- Moreira-Turcq P., Jouanneau J.M., Turcq B., Seyler P., Weber O., and Guyot J.L. 2004. Carbon sedimentation at Lago Grande de Curuai, a floodplain lake in the low Amazon region: insights into sedimentation rates. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 214(1-2) : 27-40.
- Nriagu, J. O. and Pacyna, J. M., 1988. Quantitative Assessment of Worldwide Contamination of Air, Water and Soils By Trace-Metals. *Nature* 333, 134-139.
- Nriagu, J.O., Pfeiffer, W.C., Malm, O., Souza, C.M.M. and Mierle, G., 1992. Mercury pollution in Brazil. *Nature* (London), 356-389.
- Nolting R.F. and de Jong J.T.M., 1994. Sampling and analytical methods for the determination of trace metals in surface seawaters. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, 57: 189-196.
- Nriagu, J.O., 1994. Mercury pollution from the past mining of gold and silver in the America. *Sci. Total Environ.*, 149: 167-181.
- Palheta D. et Taylor A., 1995. Mercury in environmental and biological samples from a gold mining area in the Amazon region of Brazil. *Sci. Total Environ.*, 168: 63-69.
- Pfeiffer W.C., Lacerda L.D., Salomons W. and Malm O., 1993. Environmental fate of mercury from gold mining in the Brazilian Amazon. *Environ. Rev.*, 1: 26-37.
- Pyle, D. M. and Mather, T. A., 2003. The importance of volcanic emissions for the global atmospheric mercury cycle. *Atmos. Environ.* 37, 5115-5124.
- Quay, P.D., Wilbur, D.O., Richey, J.E., Hedges, J.I., Devol, A.H., and Victoria, R., 1992. Carbon cycling in the Amazon river: implication from the ¹³C compositions of particles and solutes. *Limnol. and Oceanogr.*, 37(4): 857-871.
- Richey J.E., Devol A.H., Wosfy S.C., Victoria R., and Ribeiro M.N.G., 1988. Biogenic gases and the oxidation and reduction of carbon in Amazon River and floodplain waters. *Limnol. Oceanogr.*, 33:551-561.
- Richey, JE, Mertes, LAK, Dunne, T., Victoria, R., Forsberg, BR, Tancredi, ACFNS, and Oliveira, E. 1989. Source and routing of the Amazon river flood wave. *Global biogeochemical cycles*, 3:191-204.
- Richey J.E., Melack J.M., Aufdenkampe A.K., Ballester V.M. and Hess L., 2002. Outgassing from Amazonian rivers and wetlands as a large tropical source of atmospheric CO₂. *Nature*, 416:617-620
- Richey, J.E., Hedges, J.I., Devol, A.H., Quay, P.D., Victoria, R., Martinelli, L. and Forsberg, B.R., 1990. Biochemistry of Carbon in the Amazon River. *Limnology and Oceanography*, 35(2): 352-371.
- Roulet, M.; Lucotte, M.; Canuel, R.; Rheault, I.; Tran, S.; Gog, Y. G. D.; Farella, N.; do Vale, R. S.; Passos, C. J. S.; da Silva, E. D.; Mergler, D.; and Amorim, M, 1998. Distribution and partition of total mercury in waters of the Tapajós river basin, Brazilian Amazon. *Sci. Total Environ.*, 231 : 203-211.
- Roulet, M.; Lucotte, M.; Farella, N.; Serique, G.; Coelho, H.; Passos, C. J. S.; da Silva, E. D.; de Andrade, P. S.; Mergler, D.; Guimaraes, J. R. D.; and Amorim, M., 1999. Effects of recent human colonization on the presence of mercury in Amazonian ecosystems. *Water Air Soil Pollut.*, 112 : 297-313.
- Sarin M.M. and Krishnaswami S., 1984. Major ion chemistry of the Ganga-Brahmaputra river systems, India. *Nature*, 312: 538-541.
- Seyler P., and Elbaz-Poulichet F., 1995. Biogeochemical control on the temporal variability of trace element concentrations in the Oubangui river (Central African Republic). *Journal of Hydrology*, 180: 319-332.

- Seyler P., and Boaventura G., 2003. Distribution and partition of trace metals in the Amazon Basin. *Hydrological Processes*, 17: 1345-1361.
- Schumm S.A., 1977. The fluvial system (Eds. J. Wiley & Sons), New York, 338 p.
- Shiller A.M. and Boyle E.A., 1987. Variability of dissolved trace metals in the Mississippi River. *Geoch. Cosmoch. Acta*, 51: 3273-3277.
- Sioli H. 1975. Amazon Tributaries and Drainage Basins. In *Coupling of Land and Water Systems*, A.D. Hasler (Ed.), Springer Verlag, New York, pp:199-213.
- Sippel S.J., Hamilton S.K. and Melak J.M., 1991. Inundation area and morphometry of lakes on the Amazon River floodplain, Brazil. *Arch. Hydrobiol.* 123: 385-400.
- Sonke, J.E., Maurice-Bourgoin, L., Roulet, M., and Dupré, B., 2005. The potential of Hg isotope ratios to fingerprint natural and anthropogenic Hg sources in the Amazon ecosystem. 13th *International Conference on Heavy Metals in the Environment*, Rio de Janeiro, Brazil.
- Schumm S.A., 1977. *The fluvial system*. J. Wiley & Sons (Eds), New York, 338 p.
- Stumm, W., and Morgan, J.J., 1996. *Aquatic Chemistry*. Wiley, New York.
- Telmer K., Costa M., Araujo E.S., Angelica R.S. and Maurice Y., 1999. Mercury in the Tapajós river basin – The significance of suspended sediments from alluvial gold-mining, Pará, Brazilian Amazon. In : *Manaus 99 – Hydrological and Geochemical Processes in Large-scale River Basins* (HiBAM Project, Guyot J.L. Ed.), Manaus, Brazil (CD-ROM).
- UNEP ; United Nations Environmental Programme - Chemicals: Geneva, 2002, pp 1-270.
- U.S. EPA (Environmental Protection Agency), 1997a. Office of Air Quality Planning and Standards and Office of Research and Development, Washington, DC.
- U. S. EPA (Environmental Protection Agency), 1997b. Mercury Study Report to Congress. EPA-452-R-97-003-009.
- Veiga M.M., Meech J.A., and Opaté N., 1994. Mercury pollution from deforestation. *Nature*, 368: 816-817.
- Veiga M.M., 1997. Introducing new technologies for abatement of global mercury pollution in Latin America. Rio de Janeiro. *UNIDO/OBC/CETEM/CNPq Report*, 94 p.
- Victoria RL, Martinelli LA, Forsberg BR, Richey JE, and Devol AH., 1989. Spatial and Temporal Variations in the Chemistry of Várzea Sediments of the Amazon Basin. *GeoJournal*, 19(1): 45-52.
- Vinson D.S., Bonzongo J.C., Lyons W.B., Lechler P., Miller J. and Lacerda L.D., 1997. Gold-mining and mercury pollution in the Amazon river system, Brazil : Hg level in surface waters of the Madeira rivers from Porto Velho to the confluence with the Amazon river. EOS Transactions, *American Geophysical Union*, 1997 Fall meeting, Vol. 78(46): F199
- Young E.D. and Galy A. 2004. The Isotope Geochemistry and Cosmochemistry of Magnesium. In : *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 55 : 197-230.
- Yoon S.J., Diener L.M., Bloom P.R., Nater E.A., and Bleam W.F., 2005. X-Ray absorption studies of CH₃Hg⁺-binding sites in humic substances. *Geochim. et Cosmochim. Acta*, 69(5):1111-1121.
- Zeidemann V.K., 1998. A geoquímica de mercúrio em solos da bacia do rio Negro e sua influência no ciclo regional do mercúrio. *Dissertação de Mestre em Ciências Biológicas*, INPA-UA, Manaus, 75 pages.

Curriculum Vitae

Laurence MAURICE BOURGOIN

Docteur en Physique et Chimie de l'Environnement

Chargée de Recherche 1^{ère} classe à l'IRD,

UR 154 – UMR LMTG

Spécialité : Hydrologie - Biogéochimie des eaux continentales

Née le 5 septembre 1965, à Paris - 1 enfant

Formation

1989-93 Thèse de Doctorat (INPT)

IFREMER Centre de Toulon

Modélisation du cycle de dégradation bactérienne de la matière organique.
Application à la zone de turbidité maximale de l'estuaire de la Loire.

1989 DEA "Physique et Chimie de l'Environnement" à l'Institut National Polytechnique de Toulouse

Mise en oeuvre d'un modèle numérique de dispersion de polluants chimiques déversés accidentellement en mer.

1987-89 Ingénieur ENSEEIHT (École Nationale Supérieure d'Electronique, Electrotechnique, Informatique et Hydraulique de Toulouse), **filière Hydraulique, option Sciences de l'eau.**

1985-87 Maîtrise Sciences et Techniques de la Mer

Université de Toulon et du Var

Expériences professionnelles et stages de formation

Août 2004 – actuel

LMTG – Toulouse (France)

Rattachement à l'équipe du LMTG, à Toulouse, sous la direction de Bernard Dupré puis de Jean-Marc Montel.

Encadrement d'une étudiante brésilienne en thèse de doctorat en accueil pendant 3 ans (déc. 2004 – déc. 2007) au LMTG (bourse de la CE, Programme Alban) sur: *"le rôle des échanges entre le fleuve Amazone et la plaine d'inondation dans les processus de transport, de transfert et de spéciation du mercure"*.

Encadrement d'une étudiante française en thèse de doctorat pendant 3 ans (oct. 2006 – sept. 2009) au LMTG (bourse BQR de site) sur: *" Etude du comportement du mercure dans les principaux compartiments du bassin Amazonien : utilisation des rapports isotopiques de Hg dans la détermination des sources d'origine anthropique et naturelle "*

Encadrement de 2 étudiants Master 1 et de 3 étudiants Master 2 de l'Université de Toulouse - Master "Hydrologie, Hydrochimie, Sols et Environnement".

Montage et coordination d'un projet de recherche intitulé: *"L'étude du fractionnement isotopique de Hg dans les principaux compartiments du bassin amazonien (roches, sols, eau, sédiments, poissons, cheveux) peut-elle répondre au traçage des sources d'origines naturelle et anthropique de cet élément ?"*; financement et encadrement d'une bourse de thèse de doctorat (3 ans) et du projet de recherche par le CNRS (programme EC2CO – CYTRIX). Participation de 3 laboratoires/équipes françaises (LMTG, LCABIE et LCAI), d'un laboratoire Canadien (Dept. of Chemistry, U. Trent) et de l'Universidad Mayor de San Andrés (La Paz, Bolivia).

Juin 2001 – Août 2004

IRD – Brésil (Brasilia)

Coordination du programme de recherche HyBAm au Brésil

Rattachée à l'UR 069 "Hydrogéodynamique actuelle du bassin amazonien" HyBAm, coordonné par Jean-Loup Guyot, et en charge pendant 3 ans, de la coordination française de ce programme de Recherche au Brésil.

Mes activités se sont réparties entre les activités de recherche, les actions en partenariat et la formation:

Activités de recherche:

Elles se sont principalement orientées sur l'étude du rôle des plaines d'inondation dans les dynamiques hydrologique, sédimentaire et géochimique des eaux de surface de l'Amazone.

- Mise en place dès 2001 d'un réseau de suivi de la qualité des eaux dans une zone pilote ("várzea de Curuai") déjà suivie sur le plan hydrologique et sédimentologique depuis fin 1999.

- Suivi et compréhension de la dynamique hydrologique et sédimentaire d'une plaine d'inondation pilote

- Étude plus spécifique du rôle des plaines d'inondation du cours moyen de l'Amazone dans les processus de dépôt, spéciation et transfert du mercure.

- Organisation et réalisation de 8 campagnes de mesures et prélèvements dans le bassin amazonien brésilien en partenariat avec des institutions et universités brésiliennes et françaises.

Projets de recherche réalisés et financés (dont certains sont encore en cours):

- Projet ATI U2SIS (IRD): " Mobilité des métaux d'origine lithogénique dans les sols et les sédiments (Amazonie et Cerrados) – Incidence des activités anthropogéniques sur cette mobilité"

✓ Étude des cycles bio-géochimiques des ETM dans le système eau/sol/sédiment, dans des milieux naturels faiblement anthropisés et des relations qui existent entre l'organisation des couvertures pédologiques et la dynamique des ETM.

✓ Étude de l'incidence des cycles d'inondation dans la remobilisation / immobilisation des ETM dans des sols et sédiments.

- *Projet Reliefs de la Terre: "Lois de transports solides dans les grands fleuves et fractionnements géochimiques associés"*

✓ Étude des formes de transfert ou de dispersion des produits solides de l'érosion, en fonction des caractéristiques des écoulements hydriques (comparaison Amazone avec Gange/Brahmapoutre)

✓ Étude de l'altération chimique des particules au cours de leur transport dans le système fluvial du cours moyen de l'Amazone, *in situ*, et ceci pour différents types et tailles de grains

- *Projet AIEA (coordination): "Hydrological control of the spatial and temporal variability of the water isotopes in the Amazon basin – Part of the varzeas in the evaporation process"*

✓ Étude de la dynamique hydrologique d'une plaine d'inondation de l'Amazone à partir des isotopes stables de l'eau

- *Projet NSF (coord. Par Stroud Water Research Center and U. of Washington): "Episodic, ENSO-Orchestrated Carbon Sequestration in Amazonian River Basins by Erosion-Sedimentation Processes"*

✓ Étude de l'importance des crues dans les processus d'érosion, de lessivage et de relargage des métaux lourds (de Hg en particulier) associés aux sédiments fins sur les crues exceptionnelles des tributaires andins en Bolivie

Actions de partenariat:

- Renouvellement du projet de recherche HIBAM dans le cadre de l'accord de coopération bi-latéral IRD/CNPq

- Proposition d'un nouveau projet de recherche au CNPq (orienté sur l'étude des plaines d'inondation)

- Poursuite du partenariat avec l'UFRJ, le CENA et l'USP

- Mise en place d'un nouveau partenariat avec l'IBAMA et de nouveaux laboratoires de l'UnB (IE et LQA)

- Rédaction de 2 rapports d'évaluation et de 8 rapports de campagne détaillés

- Ouverture officielle du site web WHYBAM développé par G. Cochonneau, et permettant l'accès à toutes les données des campagnes réalisées dans le cadre du projet depuis 1995.

Actions de formation:

- Encadrement d'1 étudiant brésilien en initiation scientifique, et de 2 en mestrado, et de 2 étudiants français en DEA

- Suivi de 4 étudiants brésiliens et de 2 étudiants français en thèse de doctorat

- Cours à l'Université de Brasilia (Départements de Géochimie et de Médecine), niveau "Pos-Graduação".

Avril 1995 – Juin 2001

IRD (ex-Orstom) – Bolivie (La Paz)

Coordination du programme de recherche HyBAm en Bolivie

Rattachée à l'UR 069 "Hydrogéochimie du bassin amazonien" HyBAm, coordonné par Jean-Loup Guyot et responsable pendant 6 ans, de la coordination des activités de ce programme de Recherche en Bolivie.

L'objectif principal de ce programme consiste à suivre, interpréter et comprendre l'évolution spatio-temporelle des éléments chimiques majeurs et métalliques en trace dans les eaux de surface du bassin amazonien, depuis leurs sources andines jusqu'à l'Amazonie.

Connaissant l'importance de la problématique en Amazonie, j'ai développé dès 1996, un volet plus spécifiquement consacré à l'étude de la contamination du système aquatique par le **mercure**, largement utilisé dans les activités d'exploitation aurifère.

Étant donné le large intérêt actuel pour les problèmes d'environnement, cet axe de recherche a fait l'objet non seulement d'importants financements extérieurs (Banque Mondiale, Coopération espagnole) mais également d'accord de coopération avec l'UMSA (La Paz), l'UFR (Rio de Janeiro), le LPCM (URA CNRS de Villefranche /Mer) et l'UQAM (Montréal) ainsi que de publications communes.

Ce volet m'a permis d'organiser différentes sessions de cours à l'Université de La Paz, et de spécialiser le Laboratoire de Qualité Environnementale de l'UMSA en optimisant une ligne analytique fournie par la Coopération allemande (GTZ) et permettant d'analyser le mercure total dans des matrices solides (sédiments, sols, poissons et cheveux).

Plusieurs études d'expertise ont également été réalisées :

Maurice-Bourgoin L., 1996. Evaluation de l'impact du forage YARIAPO sur la qualité des eaux des rivières Arana, Tuichi et Béni (Bolivie). Rapport I : Etat zéro de la qualité des eaux - Rapport II : Impact des opérations de forage sur les eaux du bassin du Béni à Rurrenabaque - Rapport III : Impact après fermeture du puits. *Contrat GIE ORSTOM-EDF - TOTAL*.

Maurice-Bourgoin L., and Alanoca L., 2000. Estudio de la contaminación por mercurio de la cuenca del río Tuichi. *Informe IRD/UMSA para Conservación Internacional*.

Maurice-Bourgoin L., 1999 et 2000. Informes técnicos 1, 2, 3 y 4 del avance del proyecto FONAMA/UMSA/IRD « Contaminación por mercurio en la cuenca del Río Beni ».

Octobre 1994 – Avril 1995

Orstom – France (Montpellier)

Chercheur - Stagiaire

Recrutement en qualité de Chargée de Recherche au Département des Eaux Continentales, dans l'Unité de Recherche 22 « Dynamiques, enjeux et usages des hydro-systèmes régionaux », animée par Jean-Marie Fritsch.

Prises de contact avec l'équipe et mise à jour des connaissances sur l'hydrologie, la sédimentologie et la géochimie des eaux de surface du bassin amazonien.

Préparation des activités de recherche à développer dans la partie bolivienne du bassin amazonien (Andes et piémont).

Décembre 1993 - Août 1994

SEPIA CONSEILS, Paris

Société d'Ingénierie Conseils en gestion de l'Eau

Expertise et assistance technique dans le domaine de la gestion qualitative et quantitative des eaux. Relations avec des partenaires publics et privés. Coordination et réalisation, pour le Ministère de l'Environnement, d'une étude concernant l'effacement d'un

barrage hydroélectrique (de Maisons Rouges) et ses implications sur les plans hydrauliques, géomorphologiques, ainsi que sur la qualité et les usages de l'eau de la retenue.

Mai - août 1993

IFREMER, Centre de Toulon

Institut Français de Recherche et d'Exploitation pour la MER

Recueil et traitement de données des paramètres physico-chimiques, chimiques, biologiques et microbiologiques relevés dans le système estuarien Gironde/Garonne/Dordogne.

Rédaction du "livre blanc de la qualité de l'eau de l'estuaire de la Gironde". Contrat engagé auprès de l'Agence de l'Eau Adour-Garonne.

Janvier - Mars 1993

Laboratoire Physique et Chimie Marine, Jussieu Paris VI

Campagne océanographique réalisée entre l'Afrique du Sud et l'Antarctique ; réalisation d'analyses de CO₂. Participation au programme scientifique international WOCE.

Octobre 1989 - 1992

IFREMER, Centre de Toulon

Thèse de doctorat

Mise en oeuvre d'un modèle numérique simulant les processus de dégradation de la matière organique en environnement estuarien. Modélisation du cycle du carbone, de l'azote et de l'oxygène avec prise en considération des biomasses bactériennes nitrifiantes et hétérotrophes.

Organisation de campagnes de prélèvements en estuaire; analyses et traitements des échantillons; mise au point d'une méthodologie de comptage bactérien en milieu fortement chargé en particules.

Outil de simulation destiné à répondre au problème de l'anoxie observé dans la zone turbide de l'estuaire de la Loire en période estivale.

Avril - Septembre 1989

LHF, Grenoble

Laboratoire Hydraulique de France

Stage de DEA

Mise en oeuvre d'un modèle numérique de dispersion de polluants chimiques déversés accidentellement en mer.

Simulation de l'advection, de la diffusion et de 10 comportements - types de polluants à risques.

Logiciel rapide d'estimation de la dérive horizontale et verticale, en courbes d'isoconcentrations, du polluant déversé.

Juillet - Septembre 1988

HYDRO - QUEBEC, Montréal

Optimisation d'un modèle de simulation de débits de crue en amont de barrages.

Simulations mathématiques de la gestion énergétique d'un projet de complexe hydroélectrique.

Calcul du réhaussement d'un barrage placé en conditions climatiques extrêmes.

Juillet - Août 1987

CGE, Toulouse

Compagnie Générale des Eaux

Etude visant à la réhabilitation de l'usine de traitement d'eau potable de la commune de Muret (Haute-Garonne); optimisation d'une des étapes du "process", la floculation.

Avril - Juin 1987

Agence de Bassin RMC, Lyon

CETE, Aix-en-Provence

Centre d'Etudes Techniques de l'Équipement

Mise en oeuvre d'un modèle mathématique de calcul de la dilution en mer Méditerranée ; validation, à partir de suivis aériens de simulations de rejets (rhodamine et fluorescéine).

Liste de publications, ouvrages et communications

Articles acceptés ou *in press*

- Martinez J.M., **Maurice-Bourgoin L.**, Moreira-Turcq P. and Seyler F., *in press*. Monitoring Of Water Quality In The Amazon Floodplain Using Meris Data. Accepted by *Int. J. of Remote Sensing* (April, 2005).
- Ronchail J., G. Cochonneau, L. Bourrel, **L. Maurice-Bourgoin**, N. Filizola, P. Vauchel, J.L. Guyot, E. de Oliveira and V. Guimarães. Space-time variability of the SST-discharge relationships in the southern Amazon basin (Madeira - Tapajós - Xingu). Submitted to *Hydrological Processes* (February 2004).

Articles soumis ou en préparation

- Maurice Bourgoin L.**, Gaillardet J., Guyot J.L., Dosseto A., Chincheros J. and Vauchel P., *in prep.* The chemical weathering rate of shales under high physical erosion regime in Bolivian Andes. For *Geochimica and Cosmochimica Acta*.
- Maurice-Bourgoin L.**, Aalto R., Rhéault I. and Guyot J.L., *in prep.* Century-scale mercury contamination history and importance of floodplain accumulation within a major Amazon tributary. For *Chemical Geology*.
- Maurice-Bourgoin L.**, Aalto R., Kosuth P., Martinez J.M., Boaventura G. and Filizola N., *in prep.* Geomorphological control in the transport and storage of mercury in the Amazon Basin: Comparison between upstream foreland basins and mid-Amazon floodplains. For *The Science of Total Environment*.
- Dutra Maia P., **Maurice-Bourgoin L.**, Tessier E., Cossa D., Amouroux D., Pérez M., Turcq P., and Rhéault I., en révision. Distribution and speciation of mercury in the Curuai floodplain lakes and role of the water exchanges with the Amazon River, Brazil. *The Science of Total Environment*.
- Souza Nogueira I., Nabout J.C. Rodrigues M.S. and **Maurice Bourgoin L.**, en révision. Species richness and phytoplankton beta diversity in the Curuai floodplain, Amazon Basin, Brazil. For *Aquatic Conservation: Marine and Freshwater Ecosystems*.
- Aalto, R., Dunne, T., **Maurice-Bourgoin, L.**, and Montgomery, D.R. (*in press*). Fluvial Transport and Deposition of Sediment Across Pristine Tropical Forested Floodplains Spanning a Foreland Basin, Northern Bolivia. Submitted to *GSA bulletin*.

Articles publiés dans revues à comité de lecture de rang A

- Epov, V.; Rodriguez-Gonzalez, P.; Sonke, J.; Tessier, E.; Amouroux, D.; **Maurice Bourgoin, L.**; Donard, O., 2008. Simultaneous determination of species-specific isotopic fractionation of Hg by Gas Chromatography coupled to Multicollector ICP-MS. *Analytical Chemistry*.
- Bonnet M.P., Barroux G., Martinez J.M., Seyler F., Moreira Turcq P., Cochonneau G., Melack J., Boaventura G., **Maurice-Bourgoin L.**, Leon J.G., Roux E., Calmant S., Kosuth P., Guyot J.L., and Seyler P., 2008. Floodplain hydrology in an Amazon floodplain lake (Lago Grande de Curuai). *J. of Hydrology*, 349 : 18-30.

- Maurice-Bourgoin L.**, Bonnet M.P., Martinez J.M., Kosuth P., Cochonneau G., Moreira Turcq P., Guyot J.L., Vauchel P., Filizola N. and Seyler P., 2007. Temporal dynamics of water and sediment exchanges between the Curuaí floodplain and the Amazon River main stream, Brazil. *J. of Hydrology*, 335: 140-156.
- Dosseto A., Bourdon B., Gaillardet J., **Maurice-Bourgoin L.** and Allègre C. J., 2006. Weathering and transport of sediments in the Bolivian Andes: time constraints from uranium-series isotopes. *EPSL*, N° 248(3-4): 759-771.
- Aalto R., **Maurice-Bourgoin L.**, Dunne T., Montgomery, D.R., Nitttrouer C. and Guyot J.L., 2003. Episodic sediment accumulation on Amazonian floodplains influenced by El Niño/Southern Oscillation. *Nature*, 425: 493-497.
- Maurice-Bourgoin L.**, Quémerais B., Moreira-Turcq P., and Seyler P., 2003. Transport, distribution and speciation of mercury in the Amazon River at the confluence of black and white waters of the Negro and Solimões rivers. *Hydrological Processes*, 17: 1405-1417.
- Ferrari C., Clotteau T., Thompson L., Barbante C., Cozzi P., Cescon P., Hong S., **Maurice-Bourgoin L.**, Francou B. and Boutron C.F., 2001. Heavy metals in ancient tropical ice : initial results. *Atmospheric Environment*, 35 : 5809-5815.
- Maurice-Bourgoin L.**, Quiroga I., Chincheros J. and Courau P., 2000. Mercury distribution in waters and fishes of the Upper Madeira rivers and mercury exposure in riparian Amazonian populations. *The Science of the Total Environment*, 260: 73-86.
- Hedges J.I., Mayorga E., Tsamakis E., McClain M.E., Aufdenkampe A., Quay P., Richey J.E., Benner R., Opshal S., Black B., Pimentel T., **Maurice-Bourgoin L.**, Quintanilla J., 2000. Organic matter in Bolivian tributaries of the Amazon river : a comparison to the lower mainstream. *Limnology and Oceanography*, 45(7): 1449-1466.
- Maurice-Bourgoin L.**, Quiroga I., Guyot J.L. and Malm O., 1999a. Mercury pollution in the upper Beni River basin, Bolivia. *AMBIO*, Vol. 28(4): 302-306.
- Elbaz-Poulichet F., Seyler P., **Maurice-Bourgoin L.**, Guyot J.L., Dupuy C. 1999c. Trace element geochemistry in the upper Amazon drainage basin (Bolivia). *Chemical Geology*, 157 : 319-334.

Chapitres d'ouvrage

- Melack J., Novo E., **Maurice Bourgoin L.**, Forsberg B., Costa M., 2007. Floodplain Ecosystem Processes. In : *LBA Synthesis Volume – Amazonia and Global Change*.
- Maurice-Bourgoin L.** and Quiroga I., 2002. Total mercury distribution and importance of the biomagnification process in rivers of the Bolivian Amazon. In: *The Ecohydrology of South American Rivers and Wetlands* (McClain M., Ed.), IAHS Special Publication n°. 6, pp. 49-66.
- Maurice-Bourgoin L.**, 2001. Le mercure dans les eaux de surface du bassin amazonien – Transfert du mercure des sols aux milieux aquatiques – Spéciation, transport et sédimentation dans les rivières et plaines d'inondation. In : *Le mercure en Amazonie : Rôle de l'homme et de l'environnement*, (Carmouze J.P., Lucotte M. and Boudou A., Eds.) IRD Publications (Expertise Collégiale), pp :167-201.

Ouvrages

- Maurice-Bourgoin L.**, 2001. El mercurio en la Amazonia Boliviana – Síntesis del conocimiento sobre la distribución del mercurio en las aguas, los sedimentos y los peces – Impacto sobre la salud humana. IRD Publications, (L. Maurice-Bourgoin, Ed.), 80 p.

Articles publiés dans revues à comité de lecture de rang B ou non indexées CC

- Maurice-Bourgoin L.**, Martinez J.M., Grélaud J., Filizola N. and Boaventura G.R., 2005. The role of flood plains in the hydrology and sediment dynamics of the Amazon River, Brazil, in "Sediment budgets 1&2" (D. E. Walling and A. J. Horowitz, Eds), *IAHS Publ.* N° 291, 310-322.
- Moreira-Turcq P., Barroux G., Bernardes M., Bonnet M.P., **Maurice-Bourgoin L.**, Perez M. and Seyler P., 2005. Dynamics of organic carbon between the Amazon R. and floodplain lakes. In "Dynamics and Biogeochemistry of River corridors and Wetlands" (Heathwaite L., Webb B., Rosenberry D., Weaver D. and Hayachi M., Eds), *IAHS Publ.* N° 294, 19-28.
- Maurice-Bourgoin L.**, Alanoca L., Fraizy P. and Vauchel P., 2003. Sources of mercury in surface waters of the upper Madeira erosive basins. *J. Phys. IV France*, **107**:855-858.
- Maurice Bourgoin L.**, Kosuth, P., Chaffaut I., Martinelli L.A. and Ometto J.P., 2003. Isotope tracing of the hydrological dynamics of an Amazonian floodplain. In : *IV South American Symposium on Isotope Geology*, Vol.II : 453-456.
- Maurice-Bourgoin L.**, Aalto R., Rhéault I. and Guyot J.L., 2003. Use of ^{210}Pb geochronology to explore the century-scale mercury contamination history and the importance of floodplain accumulation in Andean tributaries of the Amazon River. In : *IV South American Symposium on Isotope Geology*, Vol.II: 449-452.
- Maurice-Bourgoin L.**, Aalto R. and Guyot J.L., 2002. Sediment-Associated Mercury Distribution within a Major Amazon Tributary: Century-Scale Contamination History and Importance of the flood plain accumulation, in "The structure, Function and management Implications of Fluvial Sedimentary systems" (Dyer F., Thoms M.C. and Olley J.M., Eds), *IAHS Publ.* N° 276, 161-168.
- Aalto, R., Dunne, T., Nitttrouer C., **Maurice-Bourgoin, L.**, and Montgomery, D., 2002. Fluvial Transport of Sediment Across a Pristine Foreland basin : Channel-Flood plain Interaction and episodic flood plain deposition. "The structure, Function and management Implications of Fluvial Sedimentary systems" (Dyer F., Thoms M.C. and Olley J.M., Eds), *IAHS Publ.* N° 276, 339-344.
- Maurice-Bourgoin L.**, Quiroga I., Alanoca L., Chincheros J., and Quintanilla J., 2001. Distribución del mercurio en la cuenca amazónica boliviana (Rio Beni) - Impacto sobre las poblaciones ribereñas. *Revista Boliviana de Química*, Vol.18 (1) :16-27.
- Maurice-Bourgoin L.**, Quiroga I., Malm O., and Chincheros J., 1999b. Contaminación por mercurio en agua, peces y cabellos humanos en la cuenca Amazónica Boliviana. *Revista Boliviana de Ecología y de Conservación Ambiental* (Fund. Patiño Ed.), N° 6, pp. 239-245.
- Seyler P., Guyot J.L., **Maurice-Bourgoin L.**, Sondag F., Elbaz-Poulichet F., Etcheber H., Quintanilla J., 1999d. Origin of trace elements in the Bolivian Amazonian drainage basin. In: *Hydrology in the Humid Tropic Environment*, *IAHS Publications* n° 253, pp:47-58.
- Elbaz-Poulichet F., Seyler P., **Maurice-Bourgoin L.**, Guyot J.L., Dupuy C., 1998. Trace element geochemistry in the upper Amazon drainage basin (Bolivia). *Mineralogical Magazine*, 62A : 423.
- Maurice-Bourgoin L.**, Courau P., and Quintanilla J., 1997. Analisis del mercurio por Fluorescencia Atomica en los principales rios de la cuenca amazonica boliviana. *Revista Boliviana de Química*, Vol.14 (1):42-51.
- Quiroga I., **Maurice-Bourgoin L.**, and Malm O., 1997. Contaminación por mercurio de los rios Chairó y Huarinilla en el Parque nacional y Area natural de manejo integrado Cotapata, Dept. de La Paz. *Revista Boliviana de Química*, Vol. 14 (1):68-80.

Communications à des conférences internationales de 1999 à 2007

2008

- Dutra Maia P., Maurice L., Cossa D., Andraus Portugal R., Etcheber H., Rodrigues de Souza J., Mendes Guimarães E. and Boaventura G.R., 2008. Is the Curuai floodplain (Middle Amazon, Brazil) an efficient trap for particulate mercury? In : *EGU 2008 General*

Assembly, Vienna, Austria.

Sonke, J.E., Point, D., Laffont, L., Day, R., Foucher, D., Hintelmann, H., Donard, O.F.X., Becker, P.B., Behra, P. and Maurice, L., 2008. Mass independent mercury isotope fractionation in tropical, and Arctic food webs. In : *EGU 2008 General Assembly*, Vienna, Austria.

Epov, V.; Rodriguez-Gonzalez, P.; Sonke, J.; Tessier, E.; Amouroux, D.; Maurice, L.; Estrade N., Carignan J. and Donard, O.F.X., 2008. Measurement of Hg isotopic ratios on molecular level using GC-MC-ICP-MS hyphenation. In : *EGU 2008 General Assembly*, Vienna, Austria.

Laffont L, Sonke J.E., Maurice-Bourgoin L., Foucher D., Hintelmann H., Behra P., 2008. Fractionnement indépendant de la masse des isotopes stables du mercure dans des échantillons biologiques par MC-ICP-MS à vapeur froide. Dans : *Réunion des Sciences de la Terre*, Nancy, France.

2007

Dutra Maia P., Maurice Bourgoin L., Tessier E., Cossa D., Amouroux D., Perez M. and Moreira Turcq P., 2007. Distribution and speciation of mercury in the Curuai floodplain lakes and role of the water exchanges with the Amazon River (Brazil). In : *Goldschmidt 2007 Symposia*, Cologne, Germany.

Dutra Maia P., Maurice Bourgoin L., Tessier E., Cossa D., Amouroux D., Perez M. and Moreira Turcq P., 2007. Which hydrological and geochemical factors control the distribution and the speciation of mercury in Amazonian floodplain lakes (Curuai), Pará, Brazil? In : *Congresso Brasileiro de Geoquímica, 2007*, Atibaia, Brazil.

Epov V.N., Rodriguez-Gonzalez P., Sonke J., Tessier E., Amouroux D., Maurice Bourgoin L., Estrade N., Carignan J. and Donard O.F.X., 2007. Development of the high precision measurement of mercury species isotopic ratios by GC-MC/ICP-MS and its validation with two other analytical approaches. In : *Goldschmidt 2007 Symposia*, Cologne, Germany.

Laffont L., Sonke J., Foucher D., Hintelmann H., Behra P. and Maurice Bourgoin L., 2007. Mercury stable isotope variations in a Bolivian watershed: evidence for mass-independent fractionation. In : *Goldschmidt 2007 Symposia*, Cologne, Germany.

2006

Gaillardet J., Maurice-Bourgoin L., Guyot J.L. and Dossetto A., 2006. The role of the Beni floodplain on the chemical weathering fluxes in the upper Madeira basin, Bolivia. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, Volume 70, Issue 18, Supplement 1, August-September 2006, Page A189.

Maurice Bourgoin L., Dutra Maia P., Tessier E., Amouroux D., Moreira Turcq P. and Rhéault I., 2006. Role of the floodplain-river exchanges in the transport, transfer and speciation of Hg in the Middle Amazon (Brazil). In : *8th Int. Conference on Mercury as a global pollutant*, Madison, US.

2005

Maurice-Bourgoin L., Martinez J.M., Grélaud J., Filizola N. and Boaventura G.R., 2005. Role of floodplains in the hydrology and sediment dynamics of the Amazon River, Brazil. In "The Sediment Budget I" (Proceedings of symposium S1 held during the 7th IAHS Scientific Assembly at Foz do Iguaçu, Brazil, April 2005), *IAHS Publ.* N° 291, 310-322.

Moreira-Turcq P., Barroux G., Bernardes M., Bonnet M.P., Maurice-Bourgoin L., Perez M. and Seyler P., 2005. Dynamics of organic carbon between the Amazon R. and floodplain lakes. In "Dynamics and Biogeochemistry of River corridors and Wetlands" (Heathwaite L., Webb B., Rosenberry D., Weaver D. and Hayachi M., Eds), *IAHS Publ.* N° 294, 19-28.

Maurice-Bourgoin L., Dutra M.P., Andraus P.R., Moreira-Turcq P., Lagane, C. and Perez, M., 2005. Importance of the hydrological dynamics in the distribution of mercury in floodplain lakes of the Middle Amazon. *XIIIth Int. Conf. On Heavy Metals in the Environment*, Rio de Janeiro, Brazil, June 2005.

- Maurice-Bourgoin L., 2005. Eau et Santé en Amazonie. In : *Forum Science et Société*, Année Brésil, Brésils. MNHN, Paris, France, Nov. 2005.
- Sonke, J.E., Maurice-Bourgoin, L., Roulet, M., Dupré, B., 2005. The potential of Hg isotope ratios to fingerprint natural and anthropogenic Hg sources in the Amazon ecosystem. In : *13th International Conference on Heavy Metals in the Environment*, Rio de Janeiro, Brazil.
- Souza Nogueira I., Rodrigues M.S. and Maurice Bourgoin L., 2005. Riqueza de espécies e β -diversidade do fitoplâncton da várzea do Curuai, Bacia Amazônica. *X Congresso da Sociedade Brasileira de Limnologia*, July 24-29th, Ilhéus, BA, (Brasil).
- Campos A.B., Boaventura R.G., Maurice-Bourgoin L. and Seyler P., 2005. Estudo da distribuição dos elementos dissolvidos na varzea do Lago Grande de Curuai – Bacia Amazônica. In: *X Congresso Brasileiro de Geoquímica*, Oct. 29th – 05th Nov., Pto de Galinhas, PE, Brazil.

2004

- Maurice-Bourgoin L., Aalto R., Kosuth P., Martinez J.M., Guyot J.L. and Oliveira E., 2004. Role of Floodplains in the Transport and Storage of Mercury in the Amazon Basin. In : *7th Int. Conference on Mercury as a global pollutant*, Lubjana, Slovenia.
- Maurice Bourgoin L., Andraus Portugal R., and Boaventura G., 2004. Importance of the water biogeochemistry in the mercury and other metals distribution in bottom sediments of Amazonian floodplain lakes. In: *4th International Symposium Environmental Geochemistry in Tropical Countries*, Buzios, Brazil.
- Maurice Bourgoin L., Grelaud J., Kosuth P., Martinez J.M., Oliveira E., 2004. Sedimentary dynamics monitoring of the Curuai varzea. In: *3rd Scientific Meeting of the LBA Experiment*, Brasília, Brazil.
- Martinez J.M., Maurice-Bourgoin L., P. Turcq, J.L. Guyot, 2004. Use of MODIS and MERIS data for the water quality monitoring of Amazonian rivers and floodplain lakes. In: *3rd Scientific Meeting of the LBA Experiment*, Brasília, Brazil.
- Ronchail J., G. Cochonneau, D. Labat, L. Bourrel, L. Maurice-Bourgoin, N. Filizola, J. Calde, J.L. Guyot, and E. de Oliveira, 2004. Regionalisation of the discharge-Sea Surface Temperature relationships in the Amazon basin. In: *3rd Scientific Meeting of the LBA Experiment*, Brasília, Brazil.

2003

- Gaillardet J., Métivier F., Dosseto A., Guyot J.L., Maurice-Bourgoin L. 2003. River geochemistry and hydrodynamics: lessons from the Amazon basin. *Geochemical Earth Reference Model Conf.*, Lyon, May 2003.
- Ibañez. M.S.R., Nogueira, I. de S., and M. Bourgoin, L., 2003. Composição da comunidade fitoplanctônica da várzea do Curuai, Amazonas. *IX Congresso da Sociedade Brasileira de Limnologia*, July 20-25th, Juiz de Fora, MG (Brasil).
- Maurice Bourgoin L., Portugal R.A., Boaventura G.R., Barroux G. & Seyler P., 2003. Estudo do papel das várzeas na distribuição de metais nos sedimentos da bacia Amazônica. In : *IX Congresso Brasileiro de Geoquímica*, November 2-9th, Belem (Brazil).
- Maurice Bourgoin L., Kosuth, P., Chaffaut I., Martinelli L.A. and Ometto J.P., 2003. Isotope tracing of the hydrological dynamics of an Amazonian floodplain. In : *IV South American Symposium on Isotope Geology*, August 25-27th, Salvador (Brazil).
- Maurice-Bourgoin L., Aalto R., Rhéault I. and Guyot J.L., 2003. Use of ²¹⁰Pb geochronology to explore the century-scale mercury contamination history and the importance of floodplain accumulation in Andean tributaries of the Amazon River. In : *IV South American Symposium on Isotope Geology*, August 25-27th, Salvador (Brazil).
- Maurice-Bourgoin L., J. Ronchail, P. Vauchel, R. Aalto and J.L. Guyot 2003. Climate controls (ENSO) on the flooding of the Beni River, a large Andean tributary of the Amazon. *EGS-AGU-EUG Joint Assembly 2003*, A-09895, April 6-11, 2003, Nice (France).
- Maurice-Bourgoin L., Alanoca L., Fraizy P. and Vauchel P., 2003. Sources of mercury in surface waters of the upper Madeira erosive basins. *XII Conf. On Heavy Metals in the Environment*, May 26-30, 2003, Grenoble.
- Maurice-Bourgoin L., G. R. Boaventura, P. Seyler, P. Kosuth, J.M. Martinez, P. M. Turcq, R. A. Portugal, 2003. Papel das zonas de enchente na geoquímica das águas de superfície do Rio

- Amazonas – estudo de uma várzea piloto. *II^{ndo} Encontro de Química Ambiental 2003*, March 17-19 2003, Brasília (Brasil).
- Martinez J.M., L. Maurice-Bourgoin, P. Kosuth, F. Seyler and J.L. Guyot. 2003a. Analysis of multitemporal MODIS and Landsat 7 images acquired over Amazonian floodplain lakes for suspended sediment concentrations retrieval, *Proceedings of IGARSS*, Toulouse, France, 21 - 25 Juillet 2003.
- Martinez J.M., P. Kosuth, G. Cochonneau, J.L. Guyot, F. Seyler, L. Bourrel and L. Maurice-Bourgoin. 2003b. Application of remote sensing data for the quantification of an Amazon floodplain extension, dynamic and river water storage.. *EGS-AGU-EUG Joint Assembly*, Nice, April, 2003, France.
- Nogueira, I. de S., Ibañez. M.S.R., and M. Bourgoin, L., 2003. Algas planctônicas da várzea de Curuaí, bacia amazônica, nos períodos de cheia de 2002 e 2003. *X Reunião da Sociedade Brasileira de Ficologia*, July 25-29th, Bahia, (Brasil).
- Ronchail J., L. Bourrel, L. Maurice-Bourgoin, Ph. Vauchel, G. Cochonneau, J.L. Guyot, 2003. Hydrology and climate in the southwestern Amazon basin (Madeira basin). *EGS-AGU-EUG Joint Assembly 2003*, A-10982, April 6-11 2003, Nice (France).
- Ronchail J., Bourrel L., Maurice-Bourgoin L., Cochonneau G., Vauchel P., de Oliveira E., Guyot J.L., Phillips L., Castro A. 2003. Clima e hidrologia na região sudoeste da bacia amazônica: Variabilidade no tempo e no espaço das relações entre TSO e vazões. *I Simpósio ABRH de Recursos Hídricos da Amazônia*, Manaus 27-29 agosto 2003.

2002

- Maurice-Bourgoin L., Aalto R. and Guyot J.L., 2002. Sediment-Associated Mercury Distribution within a Major Amazon Tributary: Century-Scale Contamination History and Importance of the flood plain accumulation. In : *Int. Symposium on The structure, Function and Management Implications of Fluvial Sedimentary systems*, IAHS Symposium, Alice Springs, Australia.

2001

- Maurice-Bourgoin L., Aalto R., Fraizy P., Barnaud V. and Guyot J.L., 2001. Modulation of Mercury Transport through Fluvial Systems by Channel-Floodplain Interaction: A Case Study for the Beni River, Bolivian Amazonia. In : *6th Int. Conference on Mercury as a global pollutant*, Minamata, Japan.

2000

- Maurice-Bourgoin L., Fraizy P., Alanoca L., Seyler P., and Guyot J.L., 2000a. Hydrological control on the temporal variability of mercury in surface waters of the Upper Madeira basin, Bolivia. In: *25th Int. Conference on Heavy Metals in the Environment* (J. Nriagu, Editor), Contribution #1282, University of Michigan, School of Public Health, Ann Arbor, MI (CD-ROM).
- Maurice-Bourgoin L., Quémerais B. and Guyot J.L., 2000b. Mass balance of mercury in the Amazon river : role of the organic matter in the transport and the transformation processes of mercury at the confluence of black and white waters. In : *First Scientific Conference for LBA – Topics : River biogeochemistry*, Belem, Brazil,
http://tucupi.cptec.inpe.br/lba/conferencia/LBA_Conferencep.html.
- Maurice-Bourgoin L., I. Quiroga, L. Alanoca, J. Chincheros, and O. Malm, 2000c. Distribución del mercurio en la cuenca Amazónica Boliviana. Importancia del proceso de biomagnificación en la cadena trófica acuática. In : *Seminario de restitución BIOBAB*, La Paz (Academia de Ciencias), Bolivia
- Maurice-Bourgoin L., L. Alanoca, I. Quiroga, J. Chincheros, and P. Fraizy, 2000d. Influencia de las actividades humanas sobre el hidrosistema Amazónico y sus implicaciones sobre la salud humana. Caso de la contaminación por mercurio en Bolivia : Conocimientos científicos y recomendaciones. In : *Seminario Cambios Globales – Tema 10 : Mecanismo de Desarrollo limpio*, La Paz (Academia de Ciencias), Bolivia, pp : 152-158.

1999

- Maurice-Bourgoin L., I. Quiroga, O. Malm, and J.L. Guyot, 1999a. - Mercury pollution in the Bolivian Amazonian basin – In : *5th International Conference on Hg as a global pollutant* (Barbosa J.P., Melamed R. and Villas Bôas R., Eds), Rio de Janeiro, RJ, Brazil, pp : 152.
- Maurice-Bourgoin L., I. Quiroga, O. Malm, P. Courau, 1999b. - Total mercury distribution in the Bolivian tributaries of the Madeira River. Importance of the biomagnification process in the aquatic food-chain. In : *Manaus 99 – Hydrological and Geochemical Processes in Large-scale River Basins* (HiBAM Project, Guyot J.L. Ed.), Manaus, Brazil (CD-ROM).
- Maurice-Bourgoin L., B. Quémerais, J.L. Guyot, P. Seyler and A. Laraque, 1999c. Transport and behaviour of total mercury in the Amazon River at the confluence of black and white waters. In : *Manaus 99 – Hydrological and Geochemical Processes in Large-scale River Basins* (HiBAM Project, Guyot J.L. Ed.), Manaus, Brazil (CD-ROM).
- Maurice-Bourgoin L., P. Seyler and Elbaz-Poulichet F., 1999d. Trace elements geochemistry in the Andean sub-basins of the Madeira river : role of the weathering processes in the freshwaters characterisation In : *Manaus 99 – Hydrological and Geochemical Processes in Large-scale River Basins* (HiBAM Project, Guyot J.L. Ed.), Manaus, Brazil (CD-ROM).

Articles dans journaux et revues de vulgarisation scientifique

- Roddaz M., Baby P., Antoine P.O., Hérail G. and **Maurice-Bourgoin L.**, 2006. Une mer intérieure en Amazonie au Miocène ? *Pour La Science*, n°345, p. 21.
- Galus C. **Maurice-Bourgoin L.** and Ronchail J., 2005. L'Amazone en dramatique manque d'eau. *Le Monde* (21.10.2005). <http://www.lemonde.fr/web/article/0,1-0,36-701524,0.html>
- Lopes R.J., Aalto R. and **Maurice-Bourgoin L.**, 2003. Estudo questiona datação por sedimentos. Amazônia. *Folha de São Paulo* (02 de outubro de 2003), Folha Ciência, pp. A15-A16. <http://www1.folha.uol.com.br/folha/ciencia/ult306u10218.shtml>.
- Falcão V. and **Maurice-Bourgoin L.**, 2003. Os numeros da pesquisa. *Jornal do Comercio* (Pernambuco, 02 de outubro de 2003), Ciência e Meio Ambiente. <http://jc.uol.com.br/jornal/>.
- Maurice-Bourgoin L.**, Quiroga I. and Quintanilla J., 2001. Contaminación por mercurio en la cuenca del rio Beni. *El Diario* (28 de enero de 2001), Ciencia y computación, p.3.
- Crabb C. and **Maurice-Bourgoin L.**, 1999. Mercury effluent threatens Bolivian waterways. *Chemical Engineering*, Oct. 1999, Vol. 106(11), p.64.
- Nguyen-Thanh A.C. and **Maurice-Bourgoin L.**, 1999. Bolivie : La fièvre du mercure. *L'Autre Voyage*, n° 8, p.79.
- De Brem P. and **Maurice-Bourgoin L.**, 1997. Bolivie : Les risques du mercure. *Eurêka*, 20:40-45.

Emissions, reportages de vulgarisation scientifique

- CNN en español**, juin 2001. ECOLO/GICA, émission de 30 minutes consacrée aux problèmes environnementaux – Interview de 10 minutes sur le problème de la contamination par le mercure et de la déforestation en Bolivie.
- E=M6 Découvertes, 90 minutes**, 12 juin 2001. Reportage sur la « planète en danger » entièrement consacré aux problèmes environnementaux rencontrés en Bolivie.

Articles publiés par l'IRD

- Vidéos Thema « Canal IRD », 2007. Le mercure en Bolivie. <http://www.canal.ird.fr/sommaires/thema18.htm>

- Rapport annuel d'activités de l'IRD, 2007. Priorité « Contrat d'objectifs » : Mercure et bassin Amazonien.
- Rapport annuel d'activités de l'IRD, 2003. Chercher, Former, Valoriser – Étudier les milieux et l'Environnement tropical - Des sédiments sous l'influence de la Niña, p11.
http://www.ird.fr/fr/institut/rapport/2003/chercher/ra2003_chapitre1_dme.pdf
- Fiche Actualité Scientifique n° 184, octobre 2003. Bassin Amazonien - Des sédiments sous l'influence de la Niña.
<http://www.ird.fr/fr/actualités/fiches/2003/fiche184.htm>.
- Fiche Actualité Scientifique n° 95, juin 1999. Des cours d'eau Boliviens contaminés par le mercure.
<http://www.ird.fr/fr/actualités/fiches/1999>.
- Sciences au Sud – Le journal de l'IRD, n°1, 1999. Des chercheurs sur le plus grand fleuve de la planète. Sept/oct. 99, pp 8-9.

Rapports divers

- Maurice L., 1995. Livre Blanc de la qualité des eaux de l'estuaire de la Gironde. Rapport IFREMER (Ed).
- HIGEOCAB, 1994-1996. *Rapport interne* coopération technique ORSTOM - UMSA, IIQ.
- Thouvenin B., Le Hir P., Maurice L., et Romaña L.A., 1995. Synthèse des études relatives à la modélisation de l'oxygène dissous dans l'estuaire de la Loire. *Rapport IFREMER DEL / 95.01 / TOULON*.
- Maurice-Bourgoin L., 1996. Evaluation de l'impact du forage Yariapo sur la qualité géochimique des eaux - Bassin du rio Béni à Rurrenabaque. *Rapports GIE - ORSTOM - TOTAL*.
 Rapport I : Etat zéro de la qualité des eaux
 Rapport II: Impact des opérations de forage sur les eaux du bassin du béni à Rurrenabaque
 Rapport III : Impact après fermeture du puits.
- Maurice-Bourgoin L. *et al.*, 2002. Projeto conjunto de pesquisa HIBAM – periodo 2001-2003. Convênio CNPq-IRD, 41 pages.
- Maurice-Bourgoin L. *et al.*, 2003. Relatório técnico-científico final do Projeto HIBAM – periodo 2001-2003. Convênio CNPq-IRD, 51 pages.
- Maurice-Bourgoin L. *et al.*, 2004. Proposta de projeto “Dinamicas hidrologicas e geoquimicas da bacia Amazônica – Papel das varzeas e da zona estuarina” periodo 2004-2006. Convênio CNPq-IRD, 48 pages.
- Sans compter les nombreux comptes-rendus de missions organisées en Bolivie entre 1995 et 2001, puis au Brésil entre 2001 et 2004. Tous ces comptes-rendus sont consultables sur le site : <http://www.mpl.ird.fr/hybam>.

Encadrement d'étudiants

Sont présentés ci-après tous les étudiants pour lesquels j'ai été nommée «Tuteur principale » :

UMSA – Universidad Mayor de San Andrés

Étudiants Boliviens

Février 1996 - octobre 1996

Irma QUIROGA
Etudiante UMSA-IIQ, La Paz
'Tesis de maestria'

Contamination par le mercure des rivières Chairó et Huarinilla dans le Parc National de Cotapata

Février 1996 - octobre 1996

Evelyn TAUCER MONRROY
Etudiante UMSA-Inst. Ecologie, La Paz
'Tesis de maestria'

Etude de l'impact des perturbations mécaniques dues aux activités d'exploitation aurifère dans les rivières Tipuani, Mapiri, Challana et Coroico

Octobre 1998 - Juin 2001

Lucia ALANOCA
Etudiante UMSA-IIQ, La Paz
'Tesis de licenciatura'

Contamination par le mercure de l'écosystème aquatique du bassin du Rio Béni et impacts sur la santé humaine (Amazonie Bolivienne)

Juin 2000 – Mars 2001

Liszhet FLORES
Etudiante UMSA-IIQ, La Paz
'Tesis de licenciatura'

Distribution du mercure dans les sédiments de surface du bassin du Rio Béni depuis les tributaires andins jusqu'à la plaine amazonienne

Juin 2000 – Mars 2001

Vania Wendy GARCIA
Etudiante UMSA-IIQ, La Paz
'Tesis de licenciatura' non achevée avant mon départ de Bolivie

Détermination du niveau de contamination par le mercure dans les poissons des principales rivières et lagunes du système Guapore - Mamore non affectés directement par les activités d'orpaillage

Étudiants Français

Juillet 1997 - décembre 1997

Florent GASC
Etudiant ISTOM (France) 3ème année

*Etude des facteurs environnementaux, hydrologie et géologie, dans la signature
géochimique des formateurs andins du Madeira.
Couplage des informations obtenues par l'utilisation d'un SIG et par analyses
statistiques.*

Novembre 1998 - mai 1999

Cécile LEFEVRE et Aurélie PASQUET
Etudiantes Univ. Montpellier 2 (Maîtrise Géologie)

*Etude de la contamination par le mercure du bassin du rio Béni.
Importance des compartiments biotiques de l'écosystème aquatique
dans le cycle biogéochimique du mercure*

Juillet 2000 - décembre 2000

Vincent BARNAUD
Etudiant ISTOM (France) 3ème année

*Distribution du mercure dans les eaux de surface et les sédiments du bassin du rio Béni.
Rôle de la plaine d'inondation dans les processus de stockage et relargage de cet
élément - Amazonie Bolivienne*

UnB – Universidade de Brasilia

En août 2002, j'ai été nommée par le « Decanato de Pesquisa e Pós-Graduação » de l'UnB comme chercheur associée autorisée officiellement à encadrer des étudiants dans le Programme de « Mestrado e Doutorado » en Géologie.

Étudiants Brésiliens

Février 2002 – Février 2004

Rafaela ANDRAUS PORTUGAL
Etudiante UnB, Inst. Géosciences, Brasília
'Iniciação científica'

*Etude du rôle des várzeas du bassin amazonien dans le cycle de certains métaux (Al, Fe, Mn,
Hg)*

Février 2003 – Août 2005

Andrea BRANDAO DE SOUZA CAMPOS
Etudiante UnB, Inst. Géosciences, Brasília
'Tésis de mestrado'

Rôle des zones humides dans la signature géochimique en éléments majeurs de l'Amazonie

Étudiants Français

Avril 2003 – Juillet 2003

Marion CARLI
Étudiante POLYTECHNIQUE, 3^{ème} année
'Diplôme d'ingénieur'

*Apports en mercure du piémont andin dans les eaux de surface du bassin amazonien
Contrôle hydrologique et impact des activités humaines*

Mars 2004 – Juillet 2004

Julien GRELAUD
Étudiant ENSEEIHT, 3^{ème} année
'Diplôme d'ingénieur hydraulicien'

*Dynamique et caractérisation des sédiments et matières en suspension dans les zones
d'inondation du cours moyen de l'Amazone*

LMTG – OMP, Toulouse

Doctorants

Octobre 2004 – Octobre 2007

Poliana DUTRA MAIA
Bourse de la Communauté Européenne (Prog. Alban)
'Thèse de Doctorat'

*Le rôle des échanges entre le fleuve Amazone et la plaine d'inondation dans les
processus de transport, de transfert et de spéciation du mercure*

Octobre 2006 – Octobre 2009

Laure LAFFONT
Bourse du Ministère de la Recherche (France)
'Thèse de Doctorat'

*Etude du comportement du mercure dans les principaux compartiments du bassin
amazonien : identification des sources naturelles et anthropiques de cet élément par traçage
isotopique*

Masters

Janvier 2005 – Juin 2005

Natacha ARLIE
Master Recherche Hydrologie Hydrochimie Sols Environnement
'M2: filière hydrologie'

*Dynamique des éléments majeurs et en trace dans les sols d'une plaine d'inondation
amazonienne (Brésil)*

Janvier 2005 – Juin 2005

Martin CRETINON
Master Recherche Hydrologie Hydrochimie Sols Environnement
'M1'

Géochimie des sédiments de lacs d'une plaine d'inondation amazonienne (Brésil)

Janvier 2006 – Juin 2006

Christelle BOCAGE

Master Recherche Hydrologie Hydrochimie Sols Environnement

'M2: filière géochimie'

*Processus de transfert du mercure dans des lacs d'inondation du Fleuve Amazone (Curuaí) :
Rôle des argiles et des oxy-hydroxydes (Fe, Al, Mn)*

Janvier 2007 – Juin 2007

Guillaume MILESI

Master Recherche Hydrologie Hydrochimie Sols Environnement

'M1'

Etude de l'importance des crues dans l'altération chimique du haut Beni (Bolivie)

Janvier 2007 – Juin 2007

Yannick PAJANY

Master Recherche Hydrologie Hydrochimie Sols Environnement

'M2: filière géochimie'

*Etude de l'altération des schistes noirs dans le relargage de Hg et des éléments chimiques associés
dans l'hydrosystème (bassin du haut Beni, Bolivie)*

Participation à des jurys de thèse

Doctorats :

Mars 2000 – Mars 2004

Simone MARIA COSTA LIMA GIOIA
Etudiant UnB, Inst. Géosciences, Brasília
‘Tésis de Doutorado’

Etude de la variation isotopique du Pb dans le District Fédéral appliquée à la Géologie Environnementale

Février 2001 – Février 2004

Marcelo PINELLI
Etudiant UnB, Inst. Géosciences, Brasília
‘Tésis de Doutorado’

Géochimie des eaux dans les zones humides de l’Amazonie

Février 1999 – Juillet 2002

Henrique LLACER ROIG
Etudiante UnB, Inst. Géosciences, Brasília
‘Tésis de Doutorado’

Modélisation et application des données à l’analyse des processus érosifs et sédimentaires – Etude du cas du bassin du Rio Paraíba do Sul, Brésil

Maîtrises :

Août 2000 – Novembre 2001

Marceleia SILVA DO CARMO
Etudiante UnB, Inst. Géosciences, Brasília
‘Tésis de mestrado’

Géochimie des eaux de surface et des sédiments des rivières du bassin hydrographique du Rio Descoberto, D.F., Brésil

Août 2001 – Août 2003

Poliana DUTRA MAIA
Etudiante UnB, Inst. Géosciences, Brasília
‘Tésis de mestrado’

Détermination du mercure et d’autres métaux trace dans les sédiments du Lac Paranoa, D.F., Brésil

Août 2001 – Août 2003

Aldenice DOMEDROSKI SANTOS
Etudiante UnB, Inst. Géosciences, Brasília
‘Tésis de mestrado’

Détermination du mercure et d’autres métaux trace dans les sédiments du Lac Descoberto, D.F., Brésil

Activités d'enseignement

Mes modestes activités d'enseignement réalisées à l'UMSA (La Paz, Bolivie), à l'Université de Brasilia (Brésil) et en France, sont résumées dans le tableau suivant :

Thème	Niveau	Lieu	Etablissement	Nb heures
« Le rôle des métaux lourds dans les écosystèmes aquatiques » Connaissances générales et techniques analytiques	3 ^{ème} cycle et professionnels de l'eau	La Paz - Bolivie	UMSA – Inst. de Chimie	Mars 1997 32 h.
Techniques de prélèvement et d'analyse de Hg total par Spectrométrie d'Absorption Atomique (dans cheveux, poissons et sédiments) Cours magistraux et pratiques en laboratoire	3 ^{ème} cycle et professionnels de l'eau	La Paz - Bolivie	UMSA – Inst. d'Ecologie Laboratorio de Calidad Ambiental	Juillet 1999 40 h.
Conférence : « Le mercure en Amazonie » Présentation du programme HYBAM	3 ^{ème} cycle	Brasilia - Brésil	UnB – Dept Géochimie	Janvier 2002 2 h.
Cours magistraux sur la 'Géologie Environnementale' « Cycle global du mercure – Le mercure en Amazonie »	3 ^{ème} cycle	Brasilia - Brésil	UnB– Dept Géochimie	Août 2002 8 h.
Conférence : « Le mercure en Amazonie »	3 ^{ème} cycle	Brasilia - Brésil	UnB – Dept Médecine	Avril 2004 4 h.
Cours magistraux sur la 'Géologie Environnementale' " Géochimie des eaux de surface du bassin amazonien" "Cycle global du mercure – Le mercure en Amazonie"	3 ^{ème} cycle	Brasilia - Brésil	UnB – Dept Géologie	Juin 2004 8 h.
Cours en anglais sur le thème des « Métaux, Environnement et Santé – cas du mercure » Master Professionnel	3 ^{ème} cycle	Toulouse, France	ENSAT	4 h.

Programmes de recherche actuels

Nom du programme (période)	Rôle	% de temps consacré
RIMES (2006 – 2009)	Coordination du programme de recherche intitulé: "<i>L'étude du fractionnement isotopique de Hg dans les principaux compartiments du bassin amazonien (roches, sols, eau, sédiments, poissons, cheveux) peut-elle répondre au traçage des sources d'origines naturelle et anthropique de cet élément ?</i>" (programme EC2CO – CYTRIX). Encadrement d'une étudiante en thèse de doctorat (3 ans) Participation de 3 laboratoires/équipes françaises (LMTG, LCABIE et LCAI), d'un laboratoire Canadien (Dept. of Chemistry, U. Trent) et de l'Universidad Mayor de San Andrés (La Paz, Bolivia).	40
AIEA – Design Criteria for a network to monitor isotope composition of runoff in large Rivers (F3.20.03) (2003 – 2006)	Coordination du programme de recherche " Hydrological control of the spatial and temporal variability of the water isotopes in the Amazon basin – Part of the floodplain in the evaporation process " Développé en partenariat avec le CENA (Brésil) et l'AIEA (Autriche) Contrat de recherche signé entre l'IRD (DME) et l'AIEA.	5
BIOBAM (2004 – 2007)	Chercheur associée affectée en France et participant au programme de recherche intitulé "Biogéochimie des lacs d'inondation du bassin amazonien" (12 participants français -5 CR, 2 IR, 2 VI, 3 doctorants- et 23 participants brésiliens dont 12 chercheurs) Dans le cadre de la convention IRD / CNPq.	20
ORE – HYBAM (2003 – 2013)	Chercheur associée au suivi des stations situées au Brésil, en Bolivie et au Pérou	5
ENVISAT	Chercheur associée (co-PI) au Projet: "Study of the hydrological and biogeochemical dynamics of an Amazonian floodplain with ENVISAT – Implications on the sediment budget and trace metals distribution"	5
ATI – U2SIS (2003 – 2006)	Chercheur associée au Projet 1: "Mobilité des métaux d'origine lithogénique dans les sols et les sédiments (Amazonie et Cerrados) – Incidence des activités anthropogéniques sur cette mobilité"	5
ECCO – PNRH (2003 – 2006)	Chercheur associée au Projet : "Dynamique hydrologique et fonctionnement biogéochimique d'un écosystème de plaine d'inondation en milieu tropical humide: Étude et modélisation de la várzea de Curuai en Amazonie" coordonné par Patrick Seyler	10
Relief de la Terre (2003 – 2006) Renouvelé 2007 - 09	Chercheur associée au Projet : "Lois de transport solide dans les grands fleuves et fractionnements géochimiques associés", coordonné par Jérôme Gaillardet (IPGP) Hydrologie et géochimie de l'Amazonie	5
NSF (2004 – 2007)	Chercheur associée au Projet: "Episodic, ENSO-Orchestrated Carbon Sequestration in Amazonian River Basins by Erosion - Sedimentation Processes"	5

ANNEXE

5 PUBLICATIONS MAJEURES

Aalto R., Maurice-Bourgoin L., Dunne T., Montgomery, D.R., Nitttrouer C. and Guyot J.L., 2003. Episodic sediment accumulation on Amazonian floodplains influenced by El Niño/Southern Oscillation. *Nature*, 425: 493-497.

letters to nature

was compared for the electrochemical oxidation of uncomplexed (*S,S*)- and (*R,R*)-tartrate. CuO has been shown by other workers to be a potent electrocatalyst for the oxidation of carbohydrates, amino acids, simple alcohols, aliphatic diols, and alkyl polyethoxy alcohol detergents³⁰. Chiral recognition by CuO has not, to our knowledge, been demonstrated previously. Linear sweep voltammograms are shown in Fig. 4 for the oxidation of (*S,S*)- and (*R,R*)-tartrate on CuO electrodes that were deposited from Cu(II)(*S,S*)-tartrate (Fig. 4a) and Cu(II)(*R,R*)-tartrate (Fig. 4b). The (*S*)-CuO film grown in (*S,S*)-tartrate is more active for the oxidation of the (*S,S*)-tartrate, and the (*R*)-CuO film grown in (*R,R*)-tartrate is more active for the oxidation of the (*R,R*)-tartrate. A control film shown in Fig. 4c (which was deposited from a racemic mixture of the (*S,S*)- and (*R,R*)-tartrates) shows no selectivity for the oxidation of the enantiomers.

We believe that our approach should be quite general for the deposition of other enantiospecific catalysts, because it does not require that the materials crystallize in a chiral space group. One attractive potential application of such catalysts would be their use as post-chromatographic chiral electrochemical sensors, which would no longer require chiral separation before chemical detection. □

Methods

Solutions, sample preparation, and electrochemistry

The CuO films were deposited to a thickness of approximately 300 nm at 30 °C onto a polished and H₂-flame-annealed Au(001) single crystal at an anodic current density of 1 mA cm⁻² from a solution of 0.2 M Cu(II), 0.2 M tartrate ion, and 3 M NaOH. Chiral recognition was demonstrated using uncomplexed tartrate ion as the target molecule. The linear sweep voltammograms in Fig. 4 were run at room temperature in unstirred solutions of 5 mM (*S,S*)- and (*R,R*)-tartrate in 0.1 M NaOH at a sweep rate of 10 mV s⁻¹.

X-ray diffraction

X-ray diffraction measurements were done on a high-resolution Philips X'Pert MRD diffractometer. For the Bragg-Brentano scan, the primary optics module was a combination Göttinger mirror and a two-crystal Ge(220) two-bounce hybrid monochromator, and the secondary optics module was a 0.18° parallel plate collimator. The hybrid monochromator produces pure CuK α_1 radiation ($\lambda = 0.1540562$ nm) with a divergence of 25 arcsec. Pole figures were obtained in point-focus mode using a crossed-slit collimator as the primary optics, and a 0.27° parallel plate collimator and flat graphite monochromator as the secondary optics. A 2θ value of 38.742° was used to probe the (111) reflection of CuO. Enantiomeric excesses were determined from CuO(111) azimuthal scans at $2\theta = 38.742^\circ$ and $\chi = 63^\circ$ by integrating the area under the (111) and (111) peaks due to the *R* and *S* forms of CuO, respectively.

Received 11 May; accepted 11 August 2003; doi:10.1038/nature01990.

1. Srinivasan, S. C. Chiral pharmacokinetics. *Chem. Rev.* 79, 79–97 (2000).
2. Loomis, M. O., Baddley, C. J., Murray, C. & Raval, R. Bonded surface chirality from a supramolecular assembly of adsorbed chiral molecules. *Nature* 404, 376–379 (2000).
3. Hunkeler, V., Haq, S., Murray, C., Holle, W. A. & Raval, R. From local adsorption sites to chiral surfaces: (*R,R*)-tartrate adsorption on Ni(100). *J. Am. Chem. Soc.* 124, 503–510 (2002).
4. Kibrik, A., Linderoth, T. R., Hammer, B. & Benmouni, T. Chiral recognition in dissociation of adsorbed cytosine observed by scanning tunnelling microscopy. *Nature* 415, 891–893 (2002).
5. Izumi, Y. In *Advances in Catalysis* Vol. 32, 215–271 (Academic, New York, 1983).
6. Lefroid, C., Wang, J., Liu, J., Andrieu, A. T. & Sun, Y.-K. Highly enantioselective heterogeneously catalyzed hydrogenation of α -ketones under mild conditions. *J. Am. Chem. Soc.* 121, 4930–4931 (1999).
7. McGoldrick, C. E., Connor, R. S. & Gillman, A. J. Adsorption of chiral alcohols on 'chiral' metal surfaces. *Langmuir* 12, 3463–3467 (1996).
8. Horvath, J. D. & Gillman, A. J. Enantiospecific desorption of *R*- and *S*-propylene oxide from a chiral Cu(640) surface. *J. Am. Chem. Soc.* 123, 7953–7954 (2001).
9. Horvath, J. D. & Gillman, A. J. Enantiospecific desorption of chiral compounds from chiral Cu(640) and chiral Cu(111) surfaces. *J. Am. Chem. Soc.* 124, 2384–2392 (2002).
10. Almazan, A., Amador, G., Peña, J. & Rodas, A. Surface reactivity at 'chiral' platinum surfaces. *Langmuir* 15, 3430–3436 (1999).
11. Amador, G. A. *et al.* Temporal effects in the enantioselective electro-oxidation of D- and L-glucose on Pt(640). *J. Phys. Chem. B* 105, 1381–1385 (1999).
12. Amador, G. A. Electrochemical studies of enantioselectivity of chiral metal surfaces. *J. Phys. Chem. B* 105, 3158–3167 (2001).
13. Sholl, D. S., Auzan, A. & Pinner, T. D. Neutrally chiral metal surfaces as enantiospecific adsorbents. *J. Phys. Chem. B* 105, 4771–4782 (2001).
14. Orme, C. A. *et al.* Formation of chiral morphology through selective binding of amino acids to calcite surface steps. *Nature* 411, 775–779 (2001).
15. Addicks, L. & Weiner, S. Crystals, asymmetry and life. *Nature* 411, 775–779 (2001).
16. Tang, H. H., Dose, P. M., Orme, C. A. & D'Arcy, J. J. Thermodynamics of calcite growth: baseline for understanding biomineral formation. *Science* 282, 724–727 (1998).
17. Cody, A. M. & Cody, R. D. Chiral habit modifications of gypsum from epitaxial-like adsorption of enantiospecific growth inhibitors. *J. Cryst. Growth* 115, 508–519 (1991).
18. Panoptic, M. & Schlögl, M. *Fundamentals of Electrochemical Deposition* 167–186 (Wiley-Interscience, New York, 1998).

19. Josell, D., Wheeler, D., Haber, W. H. & Moffie, T. P. Surface preformation of dislocation features. *Phys. Rev. Lett.* 87, 016102 (2001).
20. Vashay, V. V. & Mandelstey, Ya. S. A 'memory' effect in formic and oxalic acid oxidation at gold electrodes. *Sov. Electrochem.* 16, 1445–1447 (1980).
21. Switzer, J. A., Shamsky, M. G. & Bohanan, E. W. Electrodeposited ceramic single crystals. *Science* 284, 293–296 (1999).
22. Bohanan, E. W., Shamsky, M. G. & Switzer, J. A. Epitaxial electrodeposition of copper (I) oxide on single-crystal Au(100). *Chem. Mater.* 11, 2289–2294 (1999).
23. Soriano, T. A., Morton, S. A., Winkler, G. D. & Switzer, J. A. Epitaxial electrodeposition of Fe₂O₃ thin films on the low-index planes of gold. *J. Am. Chem. Soc.* 124, 7004–7009 (2002).
24. Switzer, J. A., Kibrik, H. M. & Bohanan, E. W. Thermodynamic kinetic transition in epitaxial electro-deposition. *J. Phys. Chem. B* 106, 4027–4031 (2002).
25. Switzer, J. A., Liu, R., Bohanan, E. W. & Soriano, T. Epitaxial electrodeposition of a crystalline metal oxide onto single-crystalline silicon. *J. Phys. Chem. B* 106, 12349–12372 (2002).
26. Paoletti, P., Huang, C.-J., Nikiforov, M. P., Bohanan, E. W. & Soriano, T. A. An electrochemical method for Cu(II) thin film deposition from aqueous solution. *Electrochem. Solid-State Lett.* 6, C21–C25 (2003).
27. Carano, A., Lozano, J.-R., Park, S. M. & Schaller, R. E. Local epitaxial growth of copper monoxide films on magnetite oxide. *Phys. Rev. B* 46, 15477–15483 (1992).
28. Misra, R. J., Bedford, R. L. & Paul, L. C. Crystal and molecular structure of tetraammonium dicopper(II)-4-tartrate decahydrate. *J. Coord. Chem.* 3, 145–157 (1972).
29. Hama, R. M., Wiley, T. R. & Goodfriend, G. A. Selective adsorption of L- and D-amino acids on calcite: Implications for biochemical homochirality. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 98, 5487–5490 (2001).
30. Xia, Y. & Hulse, C. O. Electroanalysis and amperometric detection using an electrode made of copper oxide and carbon paste. *Anal. Chem.* 63, 1714–1719 (1991).

Acknowledgements This work was supported by the National Science Foundation and the University of Missouri Research Board.

Competing interests statement The authors declare that they have no competing financial interests.

Correspondence and requests for materials should be addressed to J.A.S. (jswitzer@umz.edu).

Episodic sediment accumulation on Amazonian flood plains influenced by El Niño/Southern Oscillation

Rolf Aalto^{1,2}, Laurence Maurice-Bourgoin³, Thomas Dunne⁴, David R. Montgomery^{1,2}, Charles A. Nitttrouer² & Jean-Loup Guyot⁵

¹Quaternary Research Center and ²Department of Earth and Space Sciences, University of Washington, Seattle, Washington 98195, USA

³Institut de Recherche pour le Développement, UMR Laboratoire des Mécanismes de Transfert en Géologie, CP 7091 Lago Sul, CEP 71619-970, Brasília, DF, Brazil

⁴Donald Bren School of Environmental Science and Management and Department of Geological Sciences, University of California, Santa Barbara, California 93106, USA

⁵IRD, UMR LMTG, CNRS/IRD Paul Sabatier University, F-31400 Toulouse, France

Continental-scale rivers with a sandy bed sequester a significant proportion of their sediment load in flood plains. The spatial extent and depths of such deposits have been described^{1,2}, and flood-plain accumulation has been determined at decadal time-scales^{3–5}, but it has not been possible to identify discrete events or to resolve deposition on near-annual timescales. Here we analyse ²¹⁰Pb activity profiles from sediment cores taken in the pristine Beni and Mamore river basins, which together comprise 720,000 km² of the Amazon basin, to investigate sediment accumulation patterns in the Andean–Amazonian foreland. We find that in most locations, sediment stratigraphy is dominated by discrete packages of sediments of uniform age, which are typically 20–80 cm thick, with system-wide recurrence intervals of about 8 yr, indicating relatively rare episodic deposition events. Ocean temperature and stream flow records link these episodic events to rapidly rising floods associated with La Niña events, which debouch extraordinary volumes of sediments from the Andes. We conclude that transient processes driven by the El

letters to nature

Niño/Southern Oscillation cycle control the formation of the Bolivian flood plains and modulate downstream delivery of sediments as well as associated carbon, nutrients and pollutants to the Amazon main stem.

Studies of modern flood-plain accumulation have described the spatial extent and depth of deposits^{1,2}, estimated flood-plain deposition using numerical models and surveys of grain size³⁻⁶, or used a variety of mapping, field sampling and computations of the diffuse and channelized over-bank advection of turbid water⁷. Recent studies have measured flood-plain accumulation using geochronology sufficient to resolve these rates on decadal timescales⁸⁻¹¹. However, no previous study has resolved the spatial and temporal distribution of individual accumulation events across large, dynamic fluvial dispersal systems. It is now possible to identify discrete events and measure the accumulation from such processes with near-annual resolution^{12,13}. Our measurements along two rivers at a variety of distances from the channel reveal previously undocumented spatial and temporal patterns that reflect the hydraulics of sedimentation and the occurrence of flooding and sediment delivery forced by global atmospheric processes.

The Beni and Mamore rivers (Fig. 1) transport sediment from the

rapidly eroding Bolivian Andes¹⁴ across the flood plains of a large foreland basin^{15,16}. Flood plains and channels are essentially pristine, without artificial levees, dams, dredging, roads, significant deforestation or cultivation, or other anthropogenic complications. The Beni drains 70,000 km² of the northern Bolivian Andes into the lowland Amazon basin and then through an additional 50,000 km² of forested flood plain, depositing approximately 100 Mt yr⁻¹ of sediment as it traverses the foreland basin^{15,17,18}. The adjacent Mamore drains a 600,000-km² basin. These basins are representative of the vast expanse of Andean-Amazonian foreland basins to the north.

Sampling was conducted at locations representing a variety of channel-flood-plain geometries, during August and September of 1999 and 2000 (ref. 13). A total of 276 sediment cores 65–160-cm deep were extracted (153 from Beni and 123 from Mamore) from surveyed transects at distances of 50–1,200 m from the channel, predominantly from the higher, mature flood plain on the cut-bank side of the river. Such spatial coverage allows resolution of discrete deposition events across transects traversing hundreds of metres of flood plain, with cores typically spaced every 50 m, as well as measurement of sedimentation along thousands of kilometres of river.

Cores were X-rayed to evaluate sedimentary structures and potential post-deposition disturbance. After imaging, 115 of the cores (80 from Beni and 35 from Mamore) were cut, processed, and clay-normalized ²¹⁰Pb activity profiles were measured with methods described and calibrated elsewhere^{12,19}, which allow the identification of individual sediment packages and their dating with annual resolution. The CIRCAUS (constant initial reach clay activity, unknown sedimentation) procedure²¹ for flood-plain geochronology accounts for the basin-wide variation in the ²¹⁰Pb activity of river-borne sediment and relies on only a few assumptions, each of which is testable.

More than 95% of the Beni and Mamore cores depict episodic sediment accumulation best described by the CIRCAUS model²¹. In most flood-plain locations, sediment arrives as discrete packages of uniform age across an observed depth range (Fig. 2). Granulometry and X-ray radiographs indicate that this sediment is silt-sized and is deposited as coherent packages in a low-energy environment. Fine horizontal laminations and other submillimetre-scale structures show that the flood-plain sediment has not been significantly disturbed since deposition and that bioturbation is negligible at most locations. Cross-bedding and other evidence for higher-energy deposition environments are rare on the cut-bank side of the flood plain, and are found mainly in point bar deposits close to the edge of the vegetation. Sediment packages are typically 20–80 cm thick, and vertical profiles from 6-m-high cut-bank outcrops indicate that the layers do not exceed 2 m in thickness. Hiatuses of decades occur between layers in cores with several events. Furthermore, the sediment at the flood-plain surface (after accounting for the meteoric cap) is often decades old, and in such cases is not blanketed by fresh sediment with higher ²¹⁰Pb activity from recent sedimentation events. Although Beni and Mamore flood-plain sediment arrives as discrete pulses, any particular flood-plain location receives sediment infrequently. Hence, episodic sedimentation is the predominant mechanism for flood-plain accumulation.

Averaged over these events, the accumulation rate varies with flood-plain distance from the active river channel (Fig. 3). High, variable rates proximal (<300 m) to the channel represent local processes that construct natural levees through frequent decanting of sediment over bank during annual floods—the few cores exhibiting constant sedimentation were located within this zone. Farther from the channel, lower, spatially uniform, temporally episodic rates reflect the extensive processes that convey most sediment onto the distal flood plain.

When accumulation dates from all cores are compiled (Fig. 4a), a basin-wide pattern emerges: distinct sedimentation pulses are

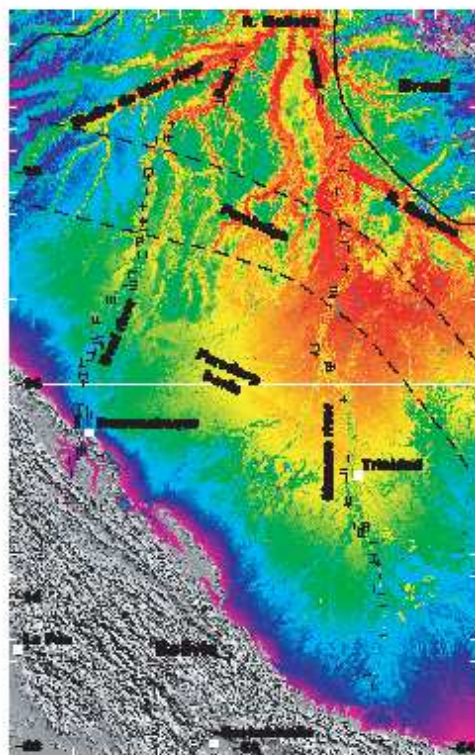


Figure 1 The Beni and Mamore river flood plains within the Utiel, northern Bolivia. The Beni and Mamore rivers are the principal sediment and water sources for the Madeira River¹⁷, the largest sediment source for the Amazon¹⁸. Elevations >300 m are depicted as grey shaded relief; lower elevations as a rainbow equal-area stretch. Flood-plain transects are denoted with squares, whereas in-channel samples are denoted with crosses. Approximate location of the foredeep and forebulge were determined with GPS surveys of longitudinal river gradient. One-degree latitude is approximately 110 km.

separated by years to decades. This century-long geochronological record spans the entire foreland, suggesting that floods needed to facilitate widespread accumulation occur approximately every 8 yr (11 events in 90 yr). This is a separate phenomenon from the previous observation that many decades may pass between sedimentation events at a specific flood-plain location. Because younger events bury older ones and most of the cores are about 1-m deep, our record is biased towards recent events and densely sampled river reaches. Therefore, only the dates of the peak centres should be considered, not the relative heights.

To interpret this temporal pattern, we investigated climatic variability. Eastern Bolivia experiences high rainfall in the Andes during cold-phase El Niño/Southern Oscillation (ENSO) events (La Niña)²⁰, causing the Beni river to flood²¹. We used a sea temperature index (STI) appropriate for the Beni river (Fig. 4a). Over the last century, the nine La Niña years match the sediment accumulation record. Two

exceptions, 1983 and 1998, are minor cold-phase ENSO years that follow intense warm-phase ENSO years. Sediment accumulation correlates well with such transitional cold-phase years (1975 is non-transitional La Niña, and 1977 the only exception).

The Mamore flood plain spans a transitional region of climate response to ENSO²², which seems to have migrated in the early 1970s: before 1970, rainfall was high during La Niña; after 1970, rainfall was lower during La Niña and higher or unaffected during El Niño²³. However, the rainfall response in the Andean tributaries of the Mamore has remained the same; that is, elevated La Niña rainfall. After 1970, Mamore flood-plain runoff was no longer synchronous with Andean sources, thus affecting flooding hydrology. For locations spanning the Mamore foredeep, no sediment has accumulated since 1974. This suggests a hiatus in significant flooding following a change in rainfall response to ENSO.

To explore the mechanisms governing flood-plain accumulation, we examined water discharge at Rurrenabaque (Fig. 4b). Sediment accumulation consistently occurs whenever discharge rises more than $8,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ over a few days. These rapid-rise years also correspond to peak discharges $>12,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$. However, there are four slow-rise years with maximum discharges above that threshold, although these events are not recorded in our cores. As a result, the record of maximum flooding does not correlate to La Niña as well as does our flood-plain accumulation record.

Beni flood-plain topographic surveys indicate that flood-plain inundation begins when discharges exceed $6,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, a value exceeded annually¹⁸. However, distal flood plains do not exhibit chronic accumulation. Sedimentation is episodic in several specific ways: (1) events correspond only to large, rapid-rise floods; (2) neighbouring cores (within 1 km) typically record the same event, but there is little synchrony between locations tens of kilometres apart; and (3) at any specific location, sediment accumulates only during some floods, with a hiatus of decades typically separating sediment pulses 20–80 cm in thickness. The environment of deposition is low energy and silt rich. Suspended sediment in the Beni river is dominated by fine silts, whereas the bed is composed of sand^{13,24}, so source material for flood-plain sedimentation is derived from high in the water column. Inundation of the entire flood plain by sediment-laden water slowly decanted over levees during annual floods—the local mechanism that constructs the levees—would result in chronic, thin, synchronous sediment accumulation.

Instead, the thick episodic deposits are probably relatively small crevasse splay; delta-shaped deposits formed during levee failure. The banks are composed of loamy deposits susceptible to incision of

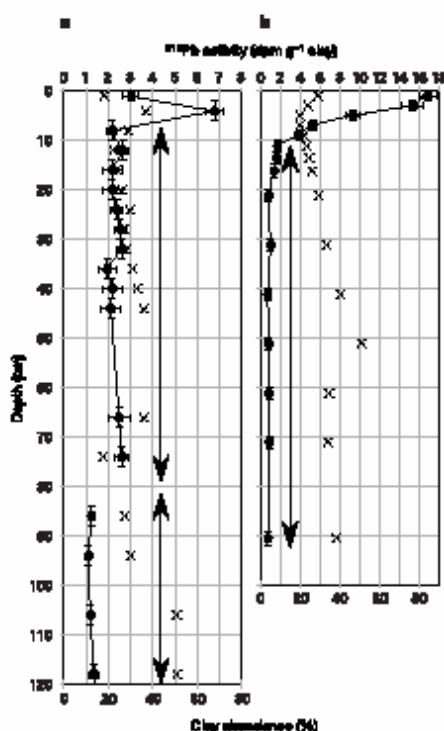


Figure 2 Unsupported ^{210}Pb activity profiles (circles) and clay abundance (crosses) from representative flood-plain cores. Accumulation events (denoted with vertical arrows) are dated with CIRCAUS geochronology^{25,26}. Increases within the top 10 cm represent meteoric fallout. a, Beni river site located 2,000 m and 2,900 m from the channel when the sediment was deposited in 1974 (± 1.8 yr) and 1951 (± 1.9 yr). The meteoric cap is incomplete. X-radiographs depict fine laminations throughout the upper core, with minor cross-bedding below 80 cm depth. b, Mamore river site located 175 m from the river when sediment was deposited in 1944 (± 2.0 yr). The cap date is 1945. X-radiographs depict fine laminations throughout the core. These examples portray typical episodic accumulation events, without chronic sedimentation. Nearby sites along flood-plain transects record similar events, a characteristic result that suggests that such sediment packages blanket regions hundreds to thousands of metres in width and length. dpm, disintegrations per minute.

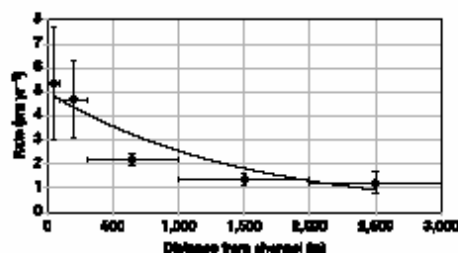


Figure 3 Spatial distribution of Beni flood-plain accumulation rates, averaged for five distance ranges, with best exponential fit ($r^2 = 0.82$). Because many flood-plain cores do not resolve the lower bound of accumulation events, rates are conservative. Owing to rapid channel migration across the flood plain, many of the core sites lay farther from the river during the most recent recorded deposition—concurrent river distances were measured from images (Landsat or aerial) bracketing the recorded date of each accumulation event. Projected across the flood plains of the Beni foreland basin¹⁸, this relationship provides for an estimated average net sediment loss of about 100 Mt yr^{-1} .

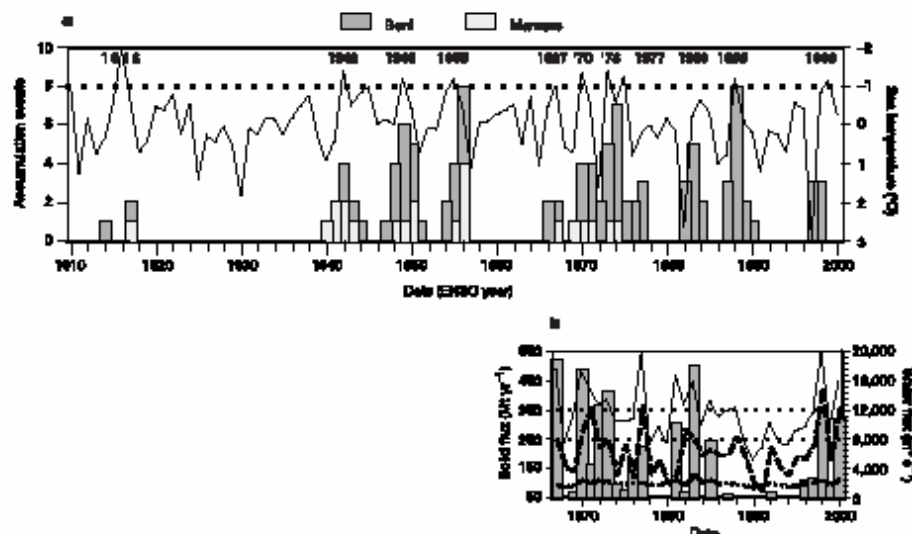


Figure 4 Temporal distribution of fluvial processes. **a**, Flood-plain accumulation events. STI is the average sea surface temperature anomaly in the eastern equatorial Pacific (150–80 W, 4 N–4 S) from November to February (the early rainy season months for Bolivia; temperatures are derived from a standard century-scale oceanographic record²⁶). Marked years exhibit either STI < -1°C (a Niña, threshold marked) or the flood-plain accumulation of sediment (CIRCAUS geochronology cannot discriminate events 1 yr apart). ENSO, sediment and water years run from October to September. **b**, Maximum (solid curve) and mean annual (dotted curve) water discharge, and rise to flood peak (dashed, 2–3-day increase in discharge) discharged from the Andes (Peri river at

Burienabaque). The lower threshold shows both the minimum rapid flood rise (about 8,000 m³ s⁻¹) associated with flood-plain accumulation and the mean annual sediment flux (about 250 Mt). The upper threshold represents the minimum discharge associated with flood-plain accumulation (approximately 12,000 m³ s⁻¹). Also plotted is total sediment discharge (bars) conveyed by transitory bank-full floods (>6,000 m³ s⁻¹)²⁸, which comprise >60% of the average efflux—therefore, floods supply most of the sediment to the fluvial dispersal system and exceptional floods far surpass the mean annual flux and also account for much of the sediment exchanged due to channel migration²⁸.

crevasse channels during rapid overtopping¹³. Floodwater, decanted from high in the water column, would diverge into the densely vegetated flood plain, depositing an extensive lens of fine sediment within this low-energy environment. Such deposits are similar to short-lived crevasse splay deposits described in the literature^{3,23}, including ancestral foredeep deposits preserved in the Andes²⁶. Crevasse failure is more likely when the surrounding flood plain is relatively low, because of the higher hydraulic head or slope²⁷. Conversely, a high flood plain is typically inundated by sediment-free water²⁸ from: (1) local rainfall and tributaries; (2) river water that enters the flood plain through distant crevasses but deposits its sediment as it traverses the inundated forest; and (3) water that slowly decants over bank, depositing its sediment as it crosses the vegetated levees. The prevalence of such 'black' water inhibits crevasse formation by reducing head. Hence, only a rapid-rise flood can engender the critical elevation differential between water in the channel and in the flood plain required to form crevasses.

Crevasse splays, triggered by large, rapid-rise ENSO floods, account for the preponderance of flood-plain sediment accumulation across the Bolivian Llanos (lowland plains), building stratigraphic sequences that are discontinuous in both time and space. Such critical floods also dominate sediment discharge from Andean tributaries across the foreland and into the large rivers of the Amazonian lowland (Fig. 4b), indicating considerable inter-annual variation of sediment supply and transport resulting from the interaction of Andean erosion and the dynamics of ENSO-driven climate. However, annual water discharge is relatively constant and previous studies have interpreted the fluxes along the Amazon main stem and the resulting sedimentation processes as following a regular annual cycle^{29,30}. This implies an intervening region of active

sediment storage, exchange and geomorphic complexity. Because sediment supply, transport, deposition and exchange within these major Andean tributaries are orchestrated by extreme climate, such an 'alluvial capacitor' located between the foreland basins and the main-stem Amazon may further modulate particle transport to provide a more regular supply to Earth's largest river. □

Received 27 March; accepted 15 August 2003; doi:10.1038/nature02002.

1. Kest, R. H., Yoda, T. G. & McGraw, D. J. An approximation of the sediment budget of the lower Mississippi River prior to major human modification. *Earth Surf. Process. Landforms* 17, 711–722 (1992).
2. Adair, A. & Austin, W. J. Evolution of the Holocene Mississippi River floodplain, Ferriday, Louisiana: insights of the origin of fine-grained floodplains. *J. Sedim. Res.* 69, 600–615 (1999).
3. Nicholas, A. P. & Walling, D. E. Investigating spatial patterns of medium-term overbank sedimentation on floodplains: a combined numerical modeling and radiocesium-based approach. *Geomorphology* 19, 133–150 (1997).
4. He, Q. & Walling, D. E. Use of fallout 7b-210 measurements to investigate longer-term rates and patterns of overbank sediment deposition on the floodplains of lowland rivers. *Earth Surf. Process. Landforms* 21, 141–156 (1996).
5. Goodford, S. L. Jr & Kaul, S. A. Floodplain processes in the Bengal Basin and the storage of Ganges-Brahmaputra river sediment: an accretion study using Cs-137 and 7b-210 geochronology. *Sediment. Geol.* 121, 239–258 (1998).
6. Mena, L. A. E. Rates of flood-plain sedimentation on the central Amazon River. *Geology* 22, 171–174 (1994).
7. Howard, A. D. in *Lowland Floodplain Rivers: Geomorphological Perspectives* (eds Carling, P. A. & Petts, G. E.) (Wiley and Sons, Chichester, UK, 1992).
8. Pomeroy, J. E. Sediment diffusion during overbank flows. *Sedimentology* 34, 301–317 (1987).
9. Jones, C. S. Sediment transfer to overbank sections. *J. Hydraul. Res.* 23, 435–452 (1985).
10. Dunne, T., Mena, L. A. E., Meade, R. H., Robey, J. E. & Fontberg, B. R. Exchange of sediment between the floodplain and channel of the Amazon River in Brazil. *Geol. Soc. Am. Bull.* 110, 450–467 (1998).
11. Aliou, M. A., Kest, R. H., Martin, T. C. & Hassan, A. Topography of flood-plain and incision for the river sediment budgets and nitrogen out input to the ocean: Insights from the Brahmaputra-Jamuna River. *Geology* 26, 175–178 (1998).
12. Aalto, R. & Nittrouer, C. A. Application of fallout ²³⁹Pu geochronology to river-floodplain systems. *Sediment. Geol.* (submitted).
13. Aalto, R. *Geomorphic Form and Process of Main River Within an Active Oregon: Development of the*

- Bolivian Andean Sediment Transport and Deposition Within the Coastal-Floodplain System of the Amazonian Forest.** 365 Thesis, Univ. Washington (2002).
14. Aalto, R., Dunne, T. & Guyot, J. L. Geomorphic control on Andean denudation rates. *J. Geol.* (in press).
 15. Horton, B. E. & DeCelle, G. L. The modern foreland basin system adjacent to the Central Andes. *Geology* 25, 895–898 (1997).
 16. Baby, P., Rochet, P., Mada, G. & Hérail, G. Neogene shortening contribution to crustal thickening in the backbone of the Central Andes. *Geology* 25, 889–892 (1997).
 17. Guyot, J. L. *Hydrogéologie des Rivières de l'Amazonie Bolivienne*. Collection Études & Thèses (CESTOM Ed.), Paris, (1993).
 18. Aalto, R., Dunne, T., Maurice-Bourgoin, L., Guyot, J. L. & Nieto-Falls, C. A. River morphology migration and sediment exchange between the river and its floodplain. *Geol. Soc. Am. Bull.* (submitted).
 19. Nie, Y., Sayre, J. B., Beninger, L. E. & Alberici, M. J. Modeling detailed sedimentary 110–20 and failure 29–340-20 profiles to allow glacial events: an application in Chesapeake Bay. *Limnol. Oceanogr.* 46, 1425–1437 (2001).
 20. Acosta, P. On the functioning of the Southern Oscillation in the South America Sector Part I: Surface climate. *Mon. Weath. Rev.* 116, 505–536 (1988).
 21. Maurice-Bourgoin, L., Ronchail, J., Vachet, R., Aalto, R. & Guyot, J. L. Climate controls (ENSO) on the flooding of the Beni River, a large Andean tributary of the Amazon. *ECS AGU Trans. Spring A-69095* (2003).
 22. Coelho, C. A. S., Uvo, C. B. & Arndt, T. Exploring the impacts of the tropical Pacific SST on the precipitation pattern over South America during ENSO periods. *Theor. Appl. Climatol.* 71, 185–197 (2002).
 23. Ronchail, J. Variabilité pluviométrique Bolivienne des phases extrêmes de l'oscillation australe du Pacifique (1950–1995). *Bull. Inst. Fr. Etud. Andines* 27, 687–698 (1996).
 24. Guyot, J. L., Jouanneau, J. M. & Whalen, J. G. Characterization of river bed and suspended sediments in the Rio Beni drainage basin (Bolivian Amazonia). *J. Soc. Am. Earth Sci.* 12, 401–410 (1999).
 25. Smith, N. D., Cross, T. A., Duffley, J. P. & Clough, S. R. Anatomy of an avulsion. *Sedimentology* 36, 1–23 (1989).
 26. Horton, B. E., Hampton, B. A. & Yliander, G. L. Paleogene synorogenic sedimentation in the Altiplano plateau and implications for tectonic mountain building in the central Andes. *Geol. Soc. Am. Bull.* 113, 1387–1400 (2001).
 27. Singarayer, R. L. & Smith, N. D. Necessary conditions for a meandering river avulsion. *Geology* 26, 435–438 (1998).
 28. Menez, L. A. E. Drainage as a significance of the peritrophic zone on inundated floodplains. *Wat. Resour. Res.* 33, 1769–1783 (1997).
 29. Rieley, J. R., Melick, J. M., Aufdenkampe, A. E., Ballman, V. M. & Hux, L. L. Outgassing from Amazonian rivers and wetlands: a large tropical source of atmospheric CO₂. *Nature* 416, 617–620 (2003).
 30. Meyen, S. D., Thiéba, R. & O'Brien, J. J. Reconstruction of monthly SST in the tropical Pacific Ocean during 1860–1995 using adaptive climate basis functions. *Mon. Weath. Rev.* 127, 1599–1612 (1999).

Acknowledgements This work was supported by an NSF research grant, a NASA Earth System Science Graduate Fellowship to R.A., and by the research collaboration (HYRAM Project) between IIG, SENAMHI (Bolivia), and the Universidad Mayor de San Andrés, Bolivia. Laboratory assistance was provided by: Baby, E. Saura, G. Smith, J. Nieto-Falls and C. Gaudin. Suggestions from C. Puela and A. Aráoz-Campa improved the manuscript.

Competing interests statement The authors declare that they have no competing financial interests.

Correspondence and requests for materials should be addressed to R.A. (aalto@geomorphology.com).

Boundary-layer mantle flow under the Dead Sea transform fault inferred from seismic anisotropy

Georg Rümpler^{1,2}, Trond Ryberg¹, Günter Bock¹ & Desert Seismology Group*

¹Geoforschungszentrum Potsdam, Telegrafenberg, 14473 Potsdam, Germany
*A complete list of authors appears at the end of the paper

Lithospheric-scale transform faults play an important role in the dynamics of global plate motion. Near-surface deformation fields for such faults are relatively well documented by satellite geodesy, strain measurements and earthquake source studies^{1–3}, and deeper crustal structure has been imaged by seismic profiling⁴. Relatively little is known, however, about deformation taking

place in the subcrustal lithosphere—that is, the width and depth of the region associated with the deformation, the transition between deformed and undeformed lithosphere and the interaction between lithospheric and asthenospheric mantle flow at the plate boundary. Here we present evidence for a narrow, approximately 20-km-wide, subcrustal anisotropic zone of fault-parallel mineral alignment beneath the Dead Sea transform, obtained from an inversion of shear-wave splitting observations along a dense receiver profile. The geometry of this zone and the contrast between distinct anisotropic domains suggest subhorizontal mantle flow within a vertical boundary layer that extends through the entire lithosphere and accommodates the transform motion between the African and Arabian plates within this relatively narrow zone.

At the southern end of the Dead Sea transform (DST), between the Dead Sea and the Red Sea, the Wadi Anava fault is the main active strike-slip fault^{5–7} trending approximately N20E. Near the

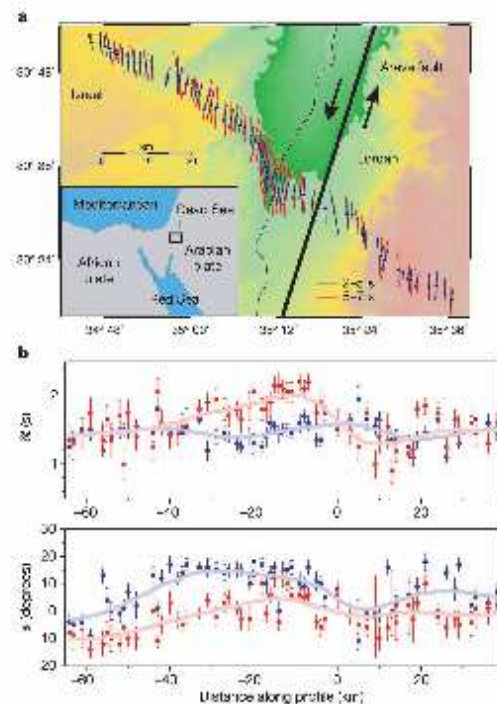


Figure 1 Study area and shear-wave splitting parameters. **a**, Map with topography and the locations of seismic stations for which the shear-wave splitting analysis was performed. The Anava fault (black line) strikes at approximately N20E. The bars indicate measured SKS splitting parameters for the period range of 2–5 s (blue) and 5–7 s (red). The orientation corresponds to the polarization direction of the fast shear wave (fast polarization ϕ) and the length is proportional to the delay time δt (s). **b**, Measured shear-wave splitting parameters (circles) along the profile (delay times and fast polarization directions) for the two period bands (2–5 and 5–7 s). The parameters are obtained by application of an inverse splitting operator to minimize the energy of the transverse SKS component¹⁷. A measure of error has been derived from the 95% confidence region as determined by the χ^2 distribution. For reasons of representation a factor of 0.4 is applied to the error scales used in this figure. The lines represent a smoothed version of the measurements, calculated by averaging the results within a sliding window.

Maurice-Bourgoin L., Bonnet M.P., Martinez J.M., Kosuth P., Cochonneau G., Moreira Turcq P., Guyot J.L., Vauchel P., Filizola N. and Seyler P., 2007. Temporal dynamics of water and sediment exchanges between the Curuaí floodplain and the Amazon River main stream, Brazil. *J. of Hydrology*, 335 : 140-156.

Journal of Hydrology (2007) 335, 140–156



available at www.sciencedirect.com



journal homepage: www.elsevier.com/locate/jhydrol



Temporal dynamics of water and sediment exchanges between the Curuaí floodplain and the Amazon River, Brazil

Laurence Maurice Bourgoin ^{a,*}, Marie-Paule Bonnet ^a,
Jean-Michel Martinez ^a, Pascal Kosuth ^b, Gerard Cochonneau ^c,
Patricia Moreira-Turcq ^d, Jean-Loup Guyot ^e, Philippe Vauchel ^e,
Naziano Filizola ^f, Patrick Seyler ^a

^a LMTG, UMR5563, CNRS/IRD/Université Toulouse 3, 14 Avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse, France

^b CEMAGREF, UMR TETIS, Maison de la Télédétection, 500 rue JF Breton, 34093 Montpellier, France

^c IRD, UR154-Hybam, Maison de la Télédétection, 500 rue JF Breton, 34093 Montpellier, France

^d IRD, UR154-Hybam, CP 7091 Lago Sul, CEP 71619-970, Brasília, DF, Brazil

^e IRD, UR154-Hybam, LMTG, IRD – Casilla 18 1209, Lima 18, Peru

^f UFAM, Universidade Federal do Amazonas, CT-HIDRO/CNPq/UFAM Program, Manaus, AM, Brazil

Received 21 November 2005; received in revised form 3 November 2006; accepted 13 November 2006

KEYWORDS

Amazon river;
Suspended solids;
Floodplain processes;
Sediment storage;
Monitoring network;
Modelling

Summary The fluvial transport and storage of sediments within channel–floodplain systems can act as important sinks of sediments.

In this study, we document the role of an Amazonian floodplain (Curuaí) for sediment storage. Located on the right bank of the Amazon River, 900 km upstream of the mouth, the complex system contains more than 30 interconnected lakes linked to the mainstream by permanent and temporary channels. With an open-water area varying between 600 km² and 2500 km², it represents ~13% of the total flooded area of the Amazon River, between Manaus and Óbidos. For the period 2000–2003, daily liquid and solid fluxes exchanged between the floodplain system and the Amazon River were determined using an hydrological model based on a network of gauging, meteorological and sediment monitoring stations and satellite data including radar altimetry data. Sediment accumulation occurs during the five months of the flood rise, from December to April. The export of sediments to the mainstream occurs during the low water stage while depositional processes in lakes and channels are disrupted by the wind induced re-suspension of sediments. The mean average sediment storage calculated varies between 558 and 828 × 10³ t yr⁻¹ correspond-

* Corresponding author. Tel.: +33 5 61 33 26 68; fax: +33 5 61 33 25 61.
E-mail address: maurice@lmtg.obs-mip.fr (L.M. Bourgoin).

ing to $5.4 (\pm 19\%) \times 10^3 \text{ t km}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ of sediment deposited along the 130 km reach between Juruti and Santarém. This annual storage represents between 41% and 53% of the annual flux of sediments entering this floodplain through the main channels. The associated mean specific sedimentation rate is $\sim 517 (\pm 23\%) \text{ t km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ leading to a sediment accretion rate of $1.6 \text{ mm yr}^{-1} \pm 23\%$.

© 2006 Elsevier B.V. All rights reserved.

Introduction

The floodplains extension associated to the Amazon River is expected to alter the transport of water from upland watersheds through river systems to the sea (Junk et al., 1989). They store water during the rising stage of the Amazon River and release it when the river level is decreasing. Richey et al. (1989) indirectly estimated that 30% of the Amazon River flow is routed through the floodplain along a 2010 km long reach between São Paulo de Olivença and Óbidos. Floodplains also play a major role in the storage of suspended solids transported from the Andes (Meade et al., 1985). Suspended solid fluxes along the river corridor suggest that more than 80% of the suspended solids entering the floodplains are deposited (Mertes et al., 1996) but the storage in the floodplain is temporary. Dume et al. (1998) estimated that, in the 2010 km reach, between São Paulo de Olivença and Óbidos, the amount of sediment transferred to bars was 380 Mt yr^{-1} and the amount of sediment transferred from the main channel to the floodplain was 460 Mt yr^{-1} by channelized flow, and 1230 Mt yr^{-1} , by diffuse overbank flow.

During residence in floodplains, floodwaters frequently undergo substantial biogeochemical modifications under the influence of processes such as sorption, redox processes and biota uptake which directly influence the chemistry of the Amazon river surface waters (Junk and Furch, 1985; Richey et al., 1990; Seyler and Boaventura, 2003).

However, both sediment and biogeochemical dynamics are constrained by the spatial and temporal patterns of hydrology which is, in turn, influenced by the topography, soils and vegetation in the floodplain (Mertes et al., 1995). Geomorphologically, the Amazon floodplain is complex (Mertes et al., 1996). Along the Solimões River, it is dominated by scroll-bar topography and hundreds of narrow lakes (Sippel et al., 1991). Downstream, to the confluence with the Madeira River, the floodplain is narrower. From the Madeira confluence to Óbidos, the relatively low and incomplete levee system, breached by large distributary channels, results in the inundation of a wide floodplain, containing hundreds of lakes of irregular outline that appear to be due to subsidence of compacting sediment (Dume et al., 1998).

There is therefore a great variety among floodplains along the Amazon River and tributaries and their influence on hydrology, sedimentary and biogeochemistry of the main streams is still not well understood. Due to the difficulties in acquiring *in situ* data for remote sites, few direct estimation of the fluxes exchanged between floodplains and rivers have been attempted. To our knowledge, direct water fluxes has only been measured for the Lake Calado (near Manacapuru) on the Solimões River (Lesack and Melack, 1995).

In this paper, we present the results of a study designed to measure and model sediment dynamics of a mid-Amazon floodplain lakes and channels system, the várzea (in Brazilian) of Lago Grande de Curuai. This floodplain formed by large lakes connected to the main stream by nine channels can be considered as representative of the floodplain systems located in the downstream part of the Amazon river valley.

For several years, in the framework of the HyBAm (Hydrology and Geochemistry of the Amazonian Basin, IRD-CNPq agreement www.mpl.ird.fr/hybam/) research program, *in situ* hydrological, sediment and geochemical data have been obtained (Kosuth, 2002; Maurice-Bourgoin et al., 2005; Moreira-Turcq et al., 2005). The dataset enables to undertake numerical modelling of this area (Kosuth, 2002; Maurice-Bourgoin et al., 2005; Bonnet et al., 2005). The first step was to propose an hydrological model of the floodplain system, representing it conceptually as a single large reservoir connected to the mainstream by six channels (Bonnet et al., 2005; Bonnet et al., submitted for publication). We chose to keep the model in a relatively simple form in order not only to ensure agreement between data requirements and data availability but also, because of its transportability. The model is mainly based on remotely sensed images and only has a slight requirement of *in situ* data in order to be applied to other similar systems. The resulting understanding of floodplain behaviour facilitates a more general assessment of the contemporary role of the mid-Amazon floodplain in the sediment storage and dynamics.

Study area

General data

The Amazon basin is the largest drainage basin in the world, covering about $6 \times 10^6 \text{ km}^2$ and discharging a mean annual flow of $163,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$, at Óbidos, $\sim 800 \text{ km}$ upstream of its mouth (Callède et al., 2002). The Óbidos gauging station ($01^\circ 56' \text{ S}$, $55^\circ 30' \text{ W}$) has a catchment area of $4,677,000 \text{ km}^2$, and is the only gauging station on the Amazon River, from Manaus to the mouth (Fig. 1), with reliable and long-term water level records (over 30 years) and regular discharge measurements. It is the gauging station on the River closest to the estuary and the tidal effect does not influence mean daily water level by more than 10 cm, during the low water stage (Callède et al., 2004), which corresponds to a standard deviation of the discharge measurements of only $\pm 2\%$.

At this location, the maximum rainfall is observed between February and April (Fig. 2) and the mean annual precipitation for the 1971–1998 period was 1820 mm. In this region, the rainfall is influenced by the activity and position

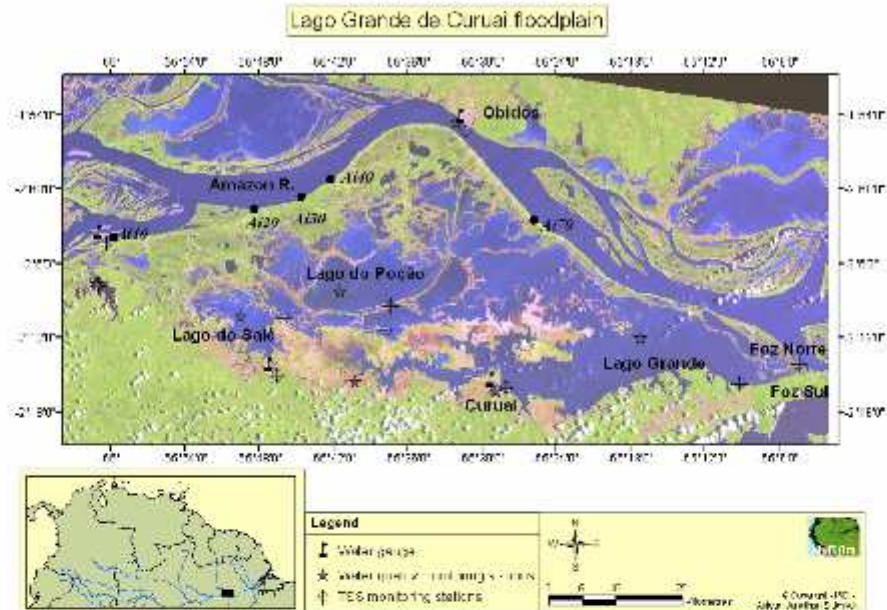


Figure 1 Locations of the Curuai floodplain on the Amazon River and of the gauging stations. Landsat image (Landsat 7-ETM, 10/28/2002) corresponding to an absolute water level at the Curuai gauge station of 4.74 m. Depicted are the four gauging stations (flags, daily record), the water quality monitoring stations (stars, monthly sampling), and the TSS monitoring stations (circles, sampled each 10 days).

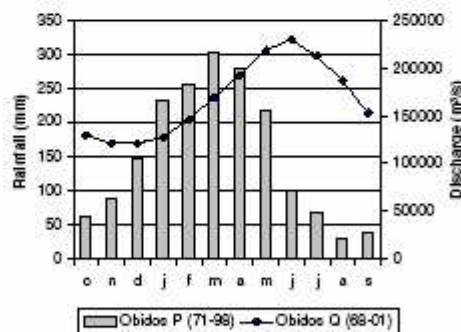


Figure 2 Mean monthly precipitation (P) and discharge (Q) at Obidos station on the Amazon River, for the 1971–1998 and 1968–2001 periods, respectively. (Data from the Brazilian Water Agency (ANA) and from the HyBam Project, in cooperation between France (IRD) and Brazil (CNPq)).

of the Inter Tropical Convergence Zone (ITCZ) over the tropical Atlantic Ocean (Ronchail et al., 2002). During the rising water stage, river floodwaters temporarily fill wetlands connected to the main channel of the river, inundating an estimated area of about 300,000 km² for the whole basin (Junk,

1982; Klinge et al., 1990). This surface has been recently confirmed by Hess et al. (2003) who obtained an inundated area of 300,900 km² in a quadrat extending 18° in longitude by 8° in latitude, corresponding to the central Amazon region and including the main tributaries of the Amazon River. The floodplains constitute a very heterogeneous system, composed of thousands of temporary or permanent lakes, forming hundreds of sub-systems of interconnected lakes. Lakes and river hydrology is characterized by large variations of the water level, which can be up to 15 m in the Manaus region.

In this study, we present an estimate of the relative importance of the Amazon floodplain in the transport and accumulation of sediment by studying one specific site (Fig. 1), the large "Lago Grande de Curuai" floodplain complex located on the right bank of the Amazon River, opposite the city of Obidos.

The "Lago Grande de Curuai" floodplain along the Amazon R

The "Lago Grande de Curuai" floodplain is a complex system of more than 30 interconnected lakes, linked to the Amazon River by several channels, two of them with permanent flow, *Foz Norte* and *Foz Sul*, located on the south-eastern side (Fig. 1). Located between 01°50'S–02°15'S and 55°00'W–56°05'W, its local drainage area reaches

3800 km²; it is bordered by *terra firme* to the south which is covered by dense forest that never floods. The banks delimiting the river from the lakes constitute the northern limit of the várzea and are characterized by large patches of young forests (trees <20 m height) and pioneer communities. The soils are mainly recent alluvial deposits and ferrallitic soils, and have mostly developed on the Alter do Chão formation (Lucas, 1989) since the Cenozoic period. The Obidos floodplain is typical of the eastern Amazon floodplains, being very extensive and flat and vegetated during the low water season by savannah, low vegetation, and alluvial forest (RADAMBRASIL, 1976).

The open-water area ranges from 575 km² and 2090 km² over a water level varying between 3.03 m and 9.61 m, the two extremes recorded in Curuai since 1982. However, the maximum flooded area or transition zone limited by the interface between local *terra firme* which is never flooded, is 2430 km², corresponding to a water level in Curuai of about 11.5 m and thus represents about 13% the total flooded area of the Amazon River, between Manaus and Obidos (Martinez and Le Toan, 2006; Hess et al., 2003). The difference in height of the water surface between the two extremities of the várzea (separated by 130 km along the Amazon river) in 2002, is 1.5 m during low water and 2.8 m during high water (Kosuth, 2002). Low water stage usually occurs in November and the water levels rise from December to May–June. The lowest and highest absolute water levels recorded at the Curuai gauging station during the 1982–2003 period are 3.03 m and 9.61 m, respectively, giving a maximum variation of 6.61 m.

The main lakes shown in Fig. 1 are perennial, but most of them are shallow during November and December, with depths of less than 50 cm. The floodplain is connected to the river corridor by a system of channels. The two channels located in the south-eastern extremity of the Lago Grande lake (Foz Norte and Foz Sul) are about 100 m wide, and 3 km long during the low water stage; their depth ranges between 6 m in low water, and 12 m in high stage, and they are also perennial. These channels are the only outflows channels from the floodplain into the mainstream. As the river level rises, several other channels progressively connect different parts of the floodplain to the river. Ground observations show that the floodplain lakes are fed by seven main channels. These are about 15–30 m wide and they vary significantly in length, with the longer channel, located at the western extremity of the system, extending over 40 km. On the eastern part of the system, floodplain channels are less sinuous, and not meandering like in the western part, which favours the sediment transport. Satellite image analysis and ground observations suggest that there is also important overbank spilling during the peak inundation phase on the western part of the floodplain.

Material and methods

The results presented were derived from hydrological data from the ANA (the Brazilian National Water Agency), a monitoring network operated between 1999 and 2003 in the Curuai floodplain in the framework of the Hybam (Hydrology and Geochemistry of the Amazonian Basin, www.mpl.ird.fr/hybam/) research program coordinated by

the IRD in cooperation with the Brazilian National Water Agency (ANA) and the UnB (University of Brasília), and from Total Suspended Solids (TSS) concentrations data acquired in Obidos (Filizola and Guyot, 2004; Guyot et al., 2005), during seven field campaigns undertaken between 2001 and 2003 (Fig. 3), and multi-temporal remote sensing images and radar altimetric data. This set of data enabled the development of a numerical model describing water fluxes exchanged between the Curuai floodplain and the Amazon River corridor (Bonnet et al., 2005; Bonnet et al., submitted for publication).

Available data

Hydrological data

Water levels were recorded daily in the main western upstream channel at Ponto Seguro (AI10, 02°44'16"S, 56°03'48"W) connecting the várzea with the Amazon River and in two locations inside the várzea, at Curuai (2°16'12"S, 55°28'84"W) and Tabatinga do Sale (2°15'52"S, 55°40'2"W) (Fig. 1). These records extend for 20 years at the Curuai gauge, located on the largest lake of the várzea, and 5 years for the gauges installed at Ponto Seguro and Tabatinga do Sale. Along the main stream, the daily water levels recorded at Parintins (2°37'31"S, 56°37'32"W), Obidos (1°54'08"S, 55°31'16"W) and Santarém (2°25'93"S, 54°41'45"W) were obtained from the ANA (Brazilian National Water Agency). As detailed in Bonnet et al. (submitted for publication), all the water level gauging stations were levelled with the help of satellite radar altimetry data (Topex/Poseidon, Envisat) and satellite laser altimetry (ICESat) leaving an absolute uncertainty of less than 0.75 m (Cauchope, 2004). Daily water levels at the mouth of the non-monitored channels were deduced by interpolation of the water level recorded at the Parintins, Obidos and Santarém gauging stations assuming a linear profile of the free water surface of the Amazon River mainstream along 2 river segments: Parintins-Obidos and Obidos-Santarém.

Discharge were measured by ADCP (Acoustic Doppler Current Profilers, RD Instruments) during field campaigns. For the period 2000–2003, seven field measurement campaigns were organized at various stages of the annual hydrological cycle (Fig. 3). Daily discharge were estimated in the main connecting channels between the Amazon River and the várzea.

Rainfall was recorded daily at 3 gauges, namely Curuai (2°16'07"S, 55°28'51"W), Orximina (01°45'37"S, 55°51'43"W) and Juruti (02°09'08"S, 56°05'15"W) with manually read gauges. These gauges have a 400 cm² orifice size with a total capacity of 5000 cm³ (125 mm of rain) and a resolution of 0.2 mm. Data for 2003 are available only from January through September at the Orximina and Juruti gauges. The rainfall distribution over the study area is heterogeneous, with differences in mean annual precipitation between the two main regions, the south (*terra firme* forest) and the north (lakes), of about 26% during the last 12 years. To take into account this heterogeneity and to distribute the daily precipitation over the study area (Fig. 3), it was computed using Thiessen polygons (ArcView extension, Ammon, G., Los Angeles Department of Water and Power). The comparison with long-term monthly records

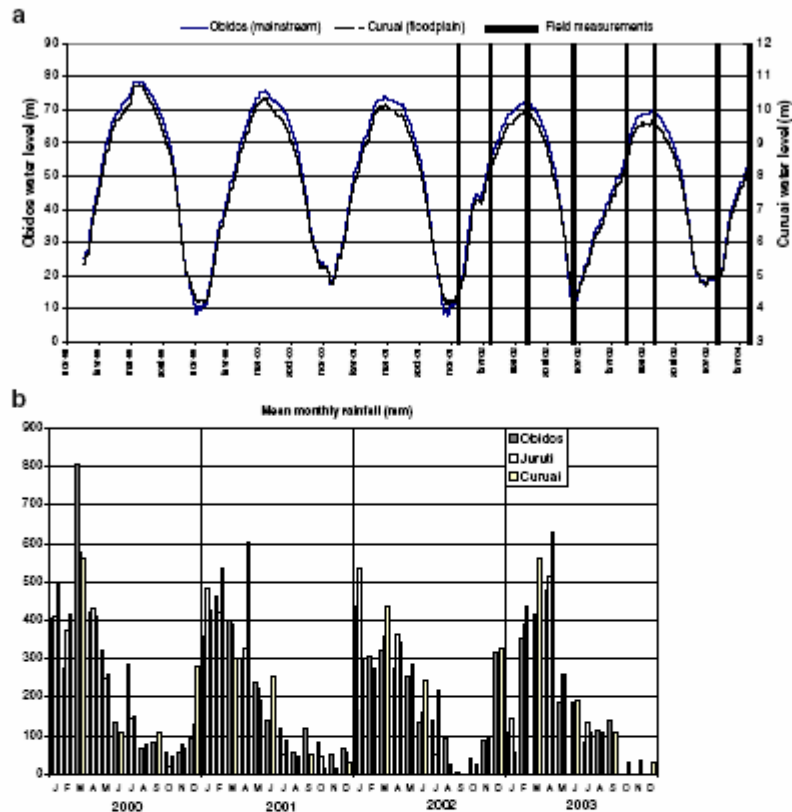


Figure 3 Hydrological variables used in the model developed on the Curuai floodplain, during the study period (1999–2003): (a) water levels measured along the mainstream (Obidos station) and in the main floodplain lake (Curuai station) and locations of the field campaigns and (b) mean monthly rainfall measured in three stations of the floodplain (Obidos, along the Amazon River, Juruti representative of the rainfall received by the lakes located at the furthest west of the system, and Curuai influenced by the orographic effect, at the south of the floodplain system).

(76 years of data) from Óbidos (01°54'05"S, 55°31'07"W) allowed us to conclude that 2000 can be considered as a wet year with a total rainfall amount of 3008 mm (about equivalent to a wet year with a 10 year return period) while years 2001, 2002 and 2003 can be considered as "normal" to somewhat "wet". The studied area has a wet tropic climate but there is a clear dryer period from June through November.

Monthly averaged maximum air temperatures were calculated from daily measurements at the Santarém meteorological station.

Evaporation was deduced from the empirical formula (Eq. (1)) proposed by Riou (1975) after having verified its good agreement with a mass transfer formula using the meteorological data acquired from March 2004 to March 2005 in particular wind speed, relative humidity and air temperature (Bonnet et al., 2000):

$$ETP = 0.3T_m - 5.9 \quad (1)$$

where ETP is the potential evapotranspiration (mm day^{-1}), T_m is the monthly averaged maximum temperature ($^{\circ}\text{C}$) for the stations located in the várzea. Evapotranspiration accounted for about 58% of the total rainfall during normal years (2001–2003) and for about 50% of the rainfall during 2000. Seasonal variations of evaporation were weak.

The Digital Elevation Model (DEM) of the várzea is derived from the merging of a JERS-SAR mosaic (Martinez and Le Toan, 2006) and SRTM data (Rabus et al., 2003). The twenty one J-ERS scenes available for the site from 1993 to 1997 enabled the classification of the várzea between never flooded, occasionally flooded or permanently flooded area. The delineation of the permanently flooded area, for an acquisition date near the minimum water level recorded at the gauging station, gave the contour line for

this altitude. Below the minimum water level recorded, bathymetry of lakes was extrapolated using bathymetric field data, in particular bathymetric profiles obtained with ADCP measurements.

The flooded area for a given water level measured in Curuai was retrieved from the DEM. The values obtained follow a linear relationship given as

$$S = (216 \pm 9.2)(Z - Z_0) + (551 \pm 46) \quad (2)$$

where S (km²) is the flooded area, Z (m) is the elevation of the lake surface, Z_0 (m) is the bottom elevation. The 90% confidence bands are reported.

Total suspended solids data

Between 1999 and 2003, surface water samples were collected every 10 days from 13 stations located in the major lakes for total suspended solids (TSS) analysis (Fig. 1) and at the HYBAM reference station of Óbidos. The Óbidos station is one of the 15 reference stations operated in the framework of the ORE-HYBAM (Research Observatory in Environment funded by the IRD, the INSU – National Institute of the Universe Sciences- and French Research Ministry; <http://www.ore-hybam.org>). During field campaigns, samples are taken from additional stations, about 40, in particular along the main channels from their confluence with the mainstream to the lakes. The TSS concentrations have been determined after filtration of a measured volume of the water samples on cellulose acetate membranes (porosity of 0.45 µm) pre-weighed and dried after filtration at 115 °C during 6 h.

Hydrological model

The model used to compute the water exchanged between the floodplain system and the Amazon River is described in details in Bonnet et al. (submitted for publication). In this model, the várzea is considered as formed by one homogeneous lake linked to the Amazon River with a system of six channels. At each time step, the water mass balance can be written as

$$\partial V_c = \left((P - E) + S + (P - E) + (S_w - S) + \sum_j Q_j \right) \partial t \quad (3)$$

where ∂V_c is the variation of the computed várzea volume (m³) during one time step ∂t , P and E are, respectively, the amount of precipitated and evaporated water (m s⁻¹) during the time step, S (km²) is the current flooded area while S_w (km²) is the area of the watershed (including the lake) located in the transition zone (e.g. the zone delimited at the north by the river banks and at the south by the *terra firme*). In this model, rainfall minus evaporation is simply converted into runoff without any loss or time-lag. This assumption is reasonable at the scale of the modelled lake watershed. Due to a lack of data, the part of the watershed located in the *terra firme* for which such an assumption does not apply is excluded from the model assuming that this term does not modify the sediment balance. Q_j (m³) the discharge in the channel j is deduced from the water slope using a Manning–Strickler-like equation $Q_j = K_{sj} L_j H_j^{5/3} \sqrt{p_j}$ where K_{sj} , L_j , H_j and p_j are the Strickler coefficient, the width (m), the mean depth (m) and the free

water surface slope (m m⁻¹) of the channel, respectively. At each time step, these slopes are determined from the computed lake elevations and the water level at the mouth of the channel. The sign of Q_j (positive for inflowing into the floodplain) depends on the sign of p . The resolution is done using an iterative scheme. The outputs of the model are daily averaged.

Solid flux modelling

Once the water fluxes are known in the different channels, TSS fluxes are deduced using an upstream scheme, meaning that inflowing water has the composition of the Amazon River at the connection locations while outflowing water has the Foz Norte and Foz Sul channels composition. The Hydracces software (<http://www.mpl.ird.fr/hybam/outils/hydracces>) was used to compute the solid fluxes, except in the Amazon River from the Óbidos station. Daily solid fluxes were computed using daily TSS concentrations calculated from the correlation between TSS data obtained each 10 days and the daily discharge data.

Inflowing TSS fluxes

As mentioned above, the monitoring of the TSS concentrations includes surface samples at the western channel entrance (AI10 in Fig. 1), surface samples at Óbidos, and surface TSS concentrations in the eastern channels (Foz Norte and Foz Sul in Fig. 1). Five scenarios were tested to check the sensitivity of the model to the TSS concentration data as summarized in Table 1. The sediment inputs through the western channel (AI10) were for all scenarios calculated by multiplying the modelled inflowing water fluxes at this location by the TSS concentrations measured in AI10. For the channels located upstream of Óbidos (namely AI20, AI30 and AI40 in Fig. 1), we multiplied the inflowing water fluxes by either the TSS concentrations measured at the AI10 station or by the TSS concentration measured at the Óbidos station (Fig. 4). For channels located downstream of Óbidos (namely AI70 and AI80), we multiplied the water influxes at these locations by either the surface TSS concentration or the estimated TSS concentration at 7 m of depth measured at the Óbidos station (Fig. 5). The cut-off at 7 m of depth is related to the depth of the channels which varies between 6 and 12 m for AI80 and less than 7 m for AI70. In addition, for the south eastern channel, we also computed the inputs from the surface TSS concentrations measured in the channel (scenario 5).

At Óbidos, daily TSS concentrations were calculated by linear interpolation of the TSS concentrations measured in the surface water every 10 days, calibrated for three distinct periods during each hydrological year (Fig. 4). These three periods were defined according to the variation of TSS with the water discharge measured at the same station, namely: (a) from November to February, during the rising water stage, characterised by a net increase in the TSS concentration with discharge, due to the Madeira and Solimões river floods; (b) from February to May, around the flood peak, characterised by decreasing TSS concentrations during the Amazon flood, due to the input of water with low TSS concentrations, during the Negro River flood; and (c) the low water stage, from June to October, with low TSS

Table 1 Calculations hypothesis for the five input scenarios tested to check the sensitivity of the model to the TSS concentration data

	TSS inputs				TSS output
	AI10	AI20 and AI30	AI70	Foz Norte and Foz Sul	Foz Norte and Foz Sul
Scenario 1	=TSS measured in the AI10 channel	=TSS measured in the AI10 channel	=Surface TSS measured in Óbidos	=Surface TSS measured in Óbidos	Solid outflux = $(1/3 Q_{out} \times TSS_{FS}) + (2/3 Q_{out} \times TSS_{FN})$
Scenario 2	=TSS measured in the AI10 channel	=Surface TSS measured in Óbidos	=Surface TSS measured in Óbidos	=Surface TSS measured in Óbidos	Solid outflux = $(1/3 Q_{out} \times TSS_{FS}) + (2/3 Q_{out} \times TSS_{FN})$
Scenario 3	=TSS measured in the AI10 channel	=Surface TSS measured in Óbidos	=TSS at 7 m depth measured in Óbidos	=TSS at 7 m depth measured in Óbidos	Solid outflux = $(1/3 Q_{out} \times TSS_{FS}) + (2/3 Q_{out} \times TSS_{FN})$
Scenario 4	=TSS measured in the AI10 channel	=Surface TSS measured in Óbidos	=TSS at 7 m depth measured in Óbidos	=TSS at 7 m depth measured in Óbidos	Solid outflux = $(average TSS_{FS} + TSS_{FN}) \times Q_{out}$
Scenario 5	=TSS measured in the AI10 channel	=Surface TSS measured in Óbidos	=TSS at 7 m depth measured in Óbidos	=average $(TSS_{FS} + TSS_{FN})$	Solid outflux = $(average TSS_{FS} + TSS_{FN}) \times Q_{out}$

With:

 Q_{out} : liquid discharge outflowing from the Curuzi flood plain ($m^3 s^{-1}$). TSS_{FS} : TSS concentrations measured in the Foz Sul channel ($mg l^{-1}$). TSS_{FN} : TSS concentrations measured in the Foz Norte channel ($mg l^{-1}$).

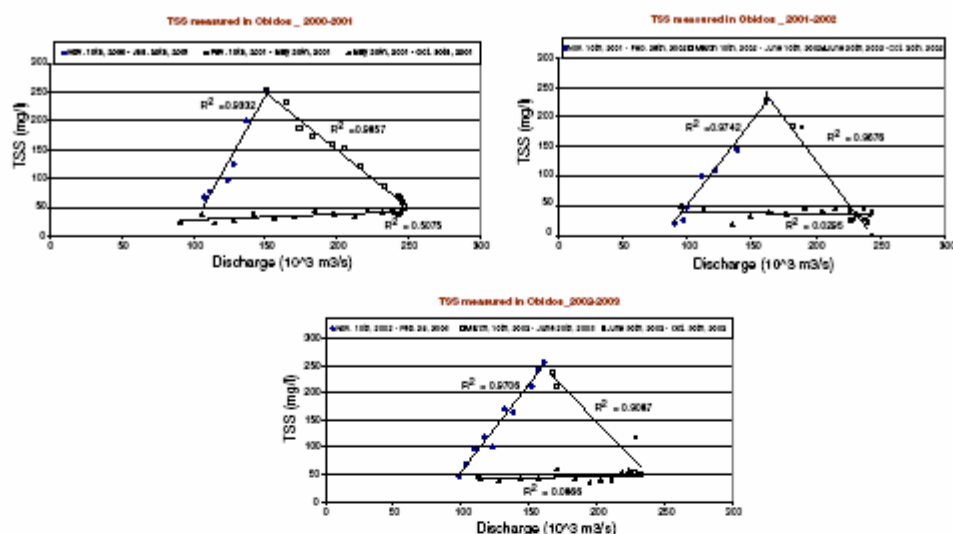


Figure 4 Time series of TSS concentrations measured in the surface waters of the Amazon R. at the Óbidos station (HyBam dataset for the 2000–2001, 2001–2002 and 2002–2003 hydrological years) showing clockwise hysteresis.

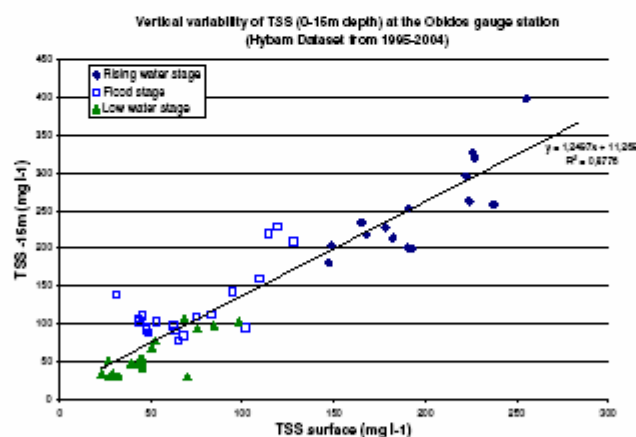


Figure 5 Correlation between TSS measured in surface waters and at 15 m depth, at the Óbidos station (for the 1995–2003 period).

concentrations. In Óbidos, to take into account of the vertical gradient of the TSS in the water column filling the floodplain, we calculated the TSS concentrations averaged over 15 m depth from the TSS measurements realised in the whole water column during the rising water stage campaigns organised in the frame of the HyBam program. During the rising water stage, at the Óbidos station, we observed an increase of the TSS concentrations in the first quarter of the water column and a good correlation between the TSS values at the surface and the TSS concentrations, at 15 m

depth (Fig. 5). In addition, no variation of the surface TSS concentrations has been observed in the cross section, from the left bank to the right one of the Amazon River at the Óbidos station.

Outflowing TSS fluxes

The TSS fluxes flowing out of the floodplain system were calculated by multiplying either (1) the total outflowing water fluxes by the surface TSS measured at *Foz Norte* (A180) or by the average of the surface TSS concentration in the two

south-eastern channels (Foz Norte A180 and Foz Sul A190) which are the only two outflowing channels from the várzea, or (2) the outflowing water fluxes of each channel by the TSS concentration measured in the corresponding channel. In this case, we assume that outflow in Foz Norte represents 2/3 of the total outflowing flux, this ratio being deduced from *in situ* discharge measurements.

Calculations of TSS fluxes were made at the daily step time for each of the modelled years.

Standard deviations between these five tested input scenarios (Table 1) range from 19% (for 2000–2001 year) to 67% (for 2001–2002 year) of the average sediment storage.

Standard deviation on water fluxes was deduced from an uncertainty analysis on input data performing a Monte-Carlo analysis (Bonnet et al., submitted for publication). The standard deviation obtained on the sediment storage varies from 17% (for 2000–2001 year) to 23% (for 2002–2003 year).

Results

Model calibration and validation

The hydrological model was applied for a five-years period from 1st September, 1997 to 15th December, 2003. The model was calibrated for 2002 against water level measured at the Curuai gauge and discharge rates measured in the different channel mouths connecting the floodplain system with the Amazon River mainstream and validated against data of the other years. Parameters requiring calibration are related to channel geometry (width, depth, length) and the roughness coefficient, K_s . Channel length was deduced from satellite imagery and field data, whereas chan-

nel depths and widths were iteratively tuned. For water years considered in this study (2000–2003) the mean absolute difference between the measured water level at the Curuai station and the computed water level ranges from 5 to 7 cm depending on the water year. In addition, we compared the computed discharge with the ADCP measurements realized in the main channels connecting the várzea with the Amazon River mainstream. The calibration of the hydrological model and the comparative results are presented in details in Bonnet et al. (submitted for publication).

Water and suspended solids inputs to the Curuai floodplain – interannual variability

At the scale of the annual hydrological cycle, the filling phase of a typical floodplain located along the Amazon River, in front of Óbidos, lasts between 8 and 10 months, from December to September, with maximum discharges between April and July, during the Amazon flood peak (Fig. 6). During the "normal years" (e.g. 2000–2001), the monthly water fluxes entering the Amazonian floodplain are in phase with the hydrograph of the mainstream. This Gaussian curve can be disrupted by important water entries at the furthest south-eastern channels. For instance, this was observed in the beginning of the 2001–2002 water year, in December and January. A large water input was due to the early rising of the Madeira River and the disrupt observed early February, 2002 was explained by a decrease of the water levels, observed in the both main tributaries, the Solimões and Madeira Rivers. The local rainfall can also influence the exchanges between the floodplain and the Amazon River, either limiting the water input or enhancing

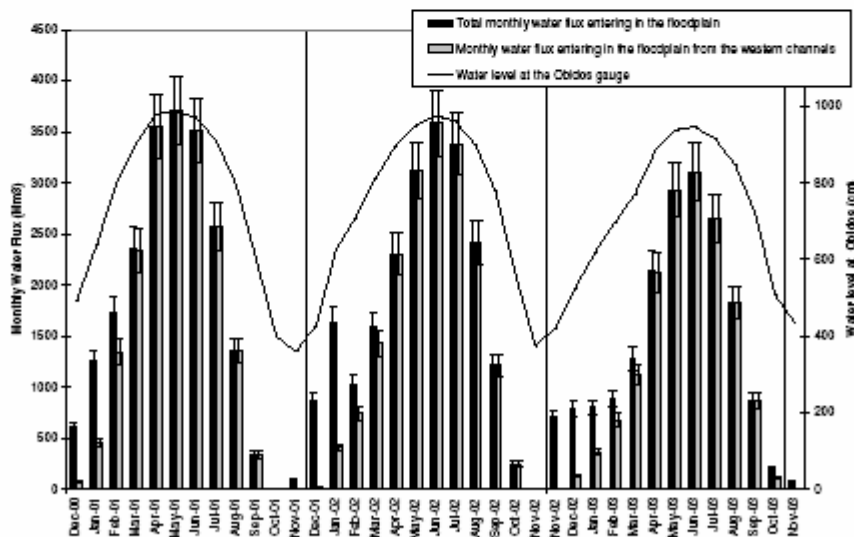


Figure 6 Monthly water fluxes (in Mm^3) entering the Curuai floodplain for the modelled period (December 2000–November 2003) related to the hydrograph of the Óbidos gauge station. The error bars have been calculated from the results obtained by the hydrological model performing an uncertainty analysis.

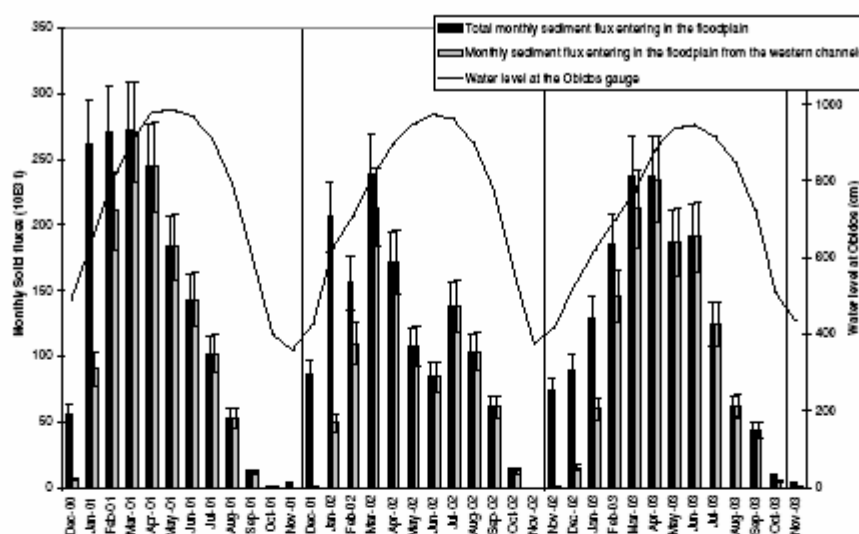


Figure 7 Monthly sediment fluxes (in $10^3 \text{ t month}^{-1}$) entering in the Curuai floodplain for the modelled period (December 2000–November 2003) related to the hydrograph of the Óbidos gauge station. The error bars have been calculated from the results obtained by the hydrological model and from standard deviation resulting from the five scenarios for suspended solids concentration.

the output. From April till September, the River water was entering the system by all the channels except by the two widest and deepest channels located on the south-eastern side of the *Lago Grande* (*Foz Norte* and *Foz Sul*), which are the unique channels from where the water and the associated sediment load are out flowing. Hence, during the decreasing water stage, the free water surface slope in the floodplain lakes remains positive from the lake to the mainstream.

The uncertainties in the water fluxes calculated by the hydrological model have been estimated from relative or absolute uncertainty on input data (Bonnet et al., submitted for publication). Uncertainties are 15% and 16% of the average on inflow and outflow, respectively.

The monthly sediment fluxes entering the modelled floodplain are maximal between January and March, corresponding to the maximum solid discharge of the Amazon River during the Solimões and Madeira floods (Fig. 7). The confidence interval for the monthly TSS fluxes entering the system varies between 9% and 13% among the 5 different scenarios (Table 1) and depending on the hydrological year. The maximum suspended solid load enters the Curuai floodplain by the *Foz Norte* and *Sul* of the main lake, between December and April, while during the low water stage, they flow out by these same channels.

According to the five scenarios tested, the mean annual sediment fluxes entering through the channels into the modelled area do not vary significantly from year to year and averages $1.5 \text{ Mt} \pm 8\%$ representing only 0.16% of the total annual solid flux at Óbidos (Table 2).

Interannual variability is also observed and seems to be controlled by the phasing between the mainstream hydro-

graph, the solid discharges transported by the mainstream and therefore by the sediment inputs of the Solimões and Madeira rivers, and by the local rainfall. From the dataset at the Óbidos gauge station, we note a significant increasing of the total annual suspended load from 2001 to 2003, with a mean value of $964 \text{ Mt yr}^{-1} \pm 12\%$ (against 755 Mt yr^{-1} for the 1995–2000 period), while the discharge of water was decreasing during the same period, compared to the respective fluxes for the period 1970–1999 (Guyot et al., 2005). However, among the 3 studied years, the standard deviation in the sediment fluxes entering the Curuai floodplain was only 8% (Table 2).

Water and suspended solids mass balances between the Curuai floodplain and the Amazon River – Interannual variability

Although the suspended sediment inputs associated with the flux of Amazon waters into the floodplain move through the different channels located around the system, the suspended sediment outputs from the várzea into the mainstream river only take place via the two widest and deepest channels located on the south-eastern side of the *Lago Grande* (*Foz Norte* and *Sul*). In this area, we observed in the field a significant output over 5 km wide in June 2003. We can deduce from the model that the várzea starts emptying before the flood peak of the Amazon R., in May or June (Fig. 8), due to the additional filling up of the lakes by the local rainfall and runoff. Because of the intensity and the timing of the local runoff, the output of water from the floodplain is greater than the input of Amazon water to the system (Table 2). The net annual input of water from

Table 2. Calculations averaged on the five different input scenarios.

Hydrological year	Water flux entering the system by the floodplain to the mainstream ($\text{km}^3 \text{ yr}^{-1}$)	Water flux outflowing from the system by the floodplain to the mainstream ($\text{km}^3 \text{ yr}^{-1}$)	Floodplain lakes-mainstream exchanges water balance ($\text{km}^3 \text{ yr}^{-1}$)	Sediment flux entering the floodplain (10^3 t yr^{-1})	Global standard deviation (10^3 t yr^{-1})	Sediment flux outflowing into the mainstream (10^3 t yr^{-1})	Global standard deviation (10^3 t yr^{-1})	Sediment balance (10^3 t yr^{-1})	Sediment standard deviation (%)	Sediment storage input (%)	Cumulative floodplain deposition rate ($\text{t km}^{-1} \text{ yr}^{-1}$)	Sedimentation rate ($\text{t km}^{-1} \text{ yr}^{-1}$)	Annual total solid flux at Obidos (10^6 t yr^{-1})
2000–2001	21	-25	-4.34	1600	137	838	85	742	17	46	5709	534	891
2001–2002	21	-24	-2.94	1364	93	806	109	558	16	41	4295	390	903
2002–2003	18	-22	-3.73	1571	199	740	109	828	23	53	6371	627	1097
Average	20	-24	-3.67	1512		802		709		47	5468	517	964
SD (%)	9	-6	-19	9		7		19		13	19	23	12

the Curuai floodplain into the Amazon R. varies from 2.94 km^3 to 4.34 km^3 as the result of the local annual rainfall. The highest output fluxes of water were observed between May and October, during the decreasing phase of the mainstream (Fig. 8).

The maximum sediment fluxes outflowing from the Curuai floodplain into the mainstream occur during the last months of the water decreasing phase, from July to October (Fig. 9). The total annual sediment flux outflowing from the system varied between $743 \times 10^3 \text{ t yr}^{-1} \pm 15\%$ and $858 \times 10^3 \text{ t yr}^{-1} \pm 10\%$ with an error including discharge uncertainties and standard deviation on the five different input scenarios (Table 1).

We can note that for the 3 simulated years, the annual sediment balance (input–output) was positive, confirming that this Amazonian floodplain acts as a sediment trap, as observed in one connecting channel of this system (A170 – Fig. 1) by Moreira-Turcq et al. (2004). In 2000–2001 and 2002–2003, the annual volume of sediment trapped in the floodplain system is of the same order of magnitude of the mean annual sediment fluxes outflowing from the floodplain into the Amazon R., with a mean annual value of $0.86 \text{ Mt} \pm 10\%$ and $0.74 \pm 15\%$, respectively (Table 2) and represents 46% and 53% of the total sediment input into the várzea. For this year, the different assumptions employed for the sediment flux calculations do not have a major effect on the results with a standard deviation of 19% against 67% and 59% for 2001–2002 and 2002–2003 water years, respectively. The interannual variability in the sediment storage induces a standard deviation of 19% for the 3 modelled years, with a sediment balance varying between $0.56 \pm 16\%$ in 2001–2002 and $0.83 \pm 23\% \text{ Mt yr}^{-1}$ in 2002–2003 representing 41% and 53% of the total sediment inputs (Table 2). The 2001–2002 year presents elevated TSS concentrations measured in one of the main connexion channels of the floodplain with the mainstream, in October, explaining the important sediment burden outflowing from the main lake, probably due to strong wind events favouring re-suspension (Fig. 10). Moreover, the TSS concentrations measured in the south-eastern channels of the Grande lake are characterized, during the low water stage, by a high variability due to tidal effects. During the Amazon flood peak, in July 2002 and June 2003, sediment exchanges simulated between the floodplain and the mainstream seemed to equilibrate (Fig. 9). In contrast, high sediment trapping was observed during the five months of the flood rise, from December to April, leading to a positive balance, the output of sediments to the mainstream occurring during the low water stage.

Discussion

Channel–floodplain lakes exchanges

A floodplain is typically inundated by water more or less loaded with suspended solids from: (1) surface and sub-surface runoff and water table, the latter being seldom loaded with suspended solids; (2) river water that enters the floodplain through distant crevasses but eventually deposits its sediment as it traverses inundated forest areas; and (3) water that slowly decants over bank, depositing its sediment as it crosses the vegetated levees.

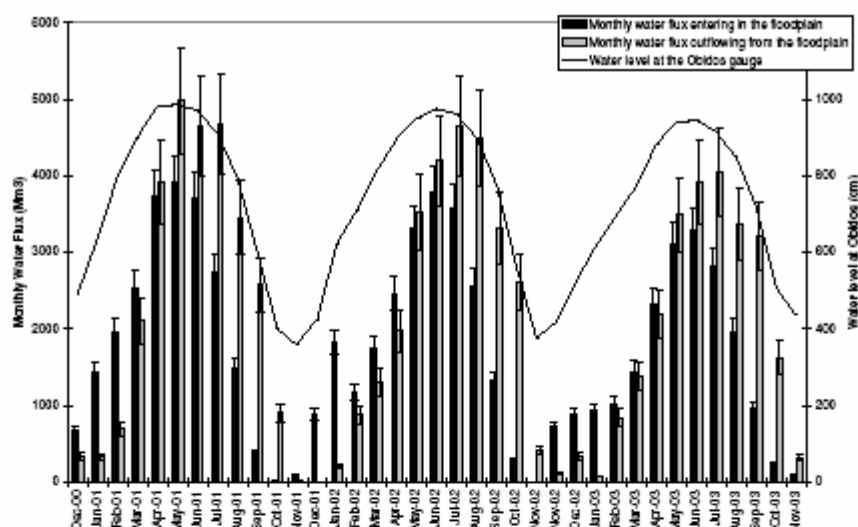


Figure 8 Monthly water fluxes (in $\text{Mm}^3 \text{ month}^{-1}$) entering in the Curuai floodplain and outflowing from the floodplain into the mainstream, for the modelled period (December 2000–November 2003), related to the hydrograph of the Obidos gauge station. The error bars have been calculated from the results obtained by the hydrological model and from standard deviation resulting from the five scenarios for suspended solids concentrations outflowing from the floodplain system.

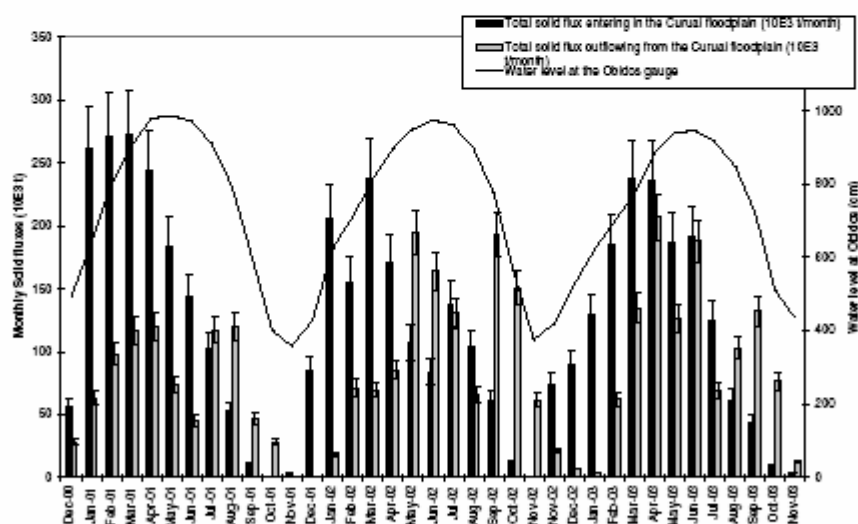


Figure 9 Monthly solid fluxes (in $10^3 \text{ t month}^{-1}$) entering in the Curuai floodplain and outflowing from the floodplain into the mainstream, for the modelled period (December 2000–November 2003), related to the hydrograph of the Obidos gauge station. The error bars have been calculated from the results obtained by the hydrological model and from standard deviation resulting from the five scenarios for suspended solids concentrations outflowing from the floodplain system.

In our study, we modeled the sediment exchanges between the Amazon R. and a floodplain system, through six perennial channels. Two of them correspond to the two

deepest and straightest connecting channels located at the south-eastern extremity of the várzea, and in permanent exchange with the mainstream. In these channels, only

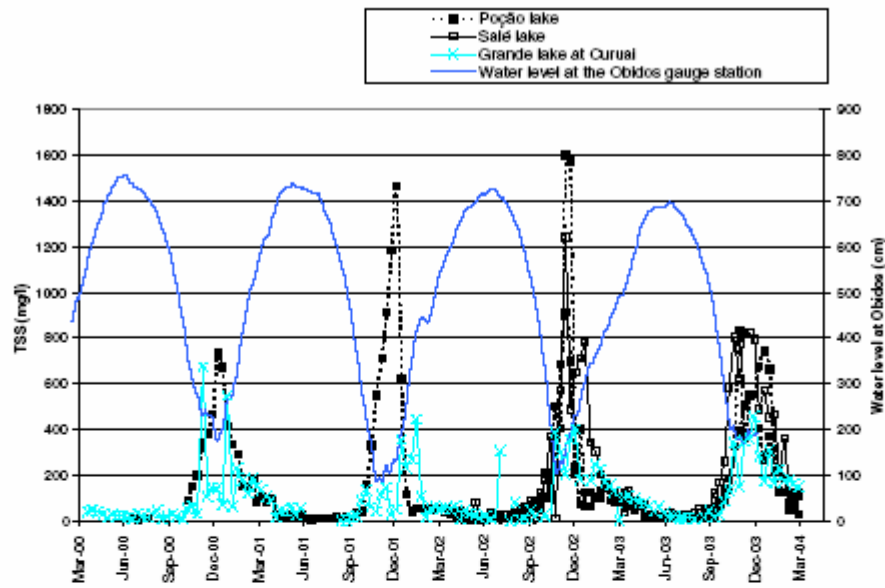


Figure 10 TSS variability in the main lakes of the Curuai floodplain: Salé lake located at the west of the system, Poção at the North and Grande the main lake, located at the south-eastern part of the floodplain.

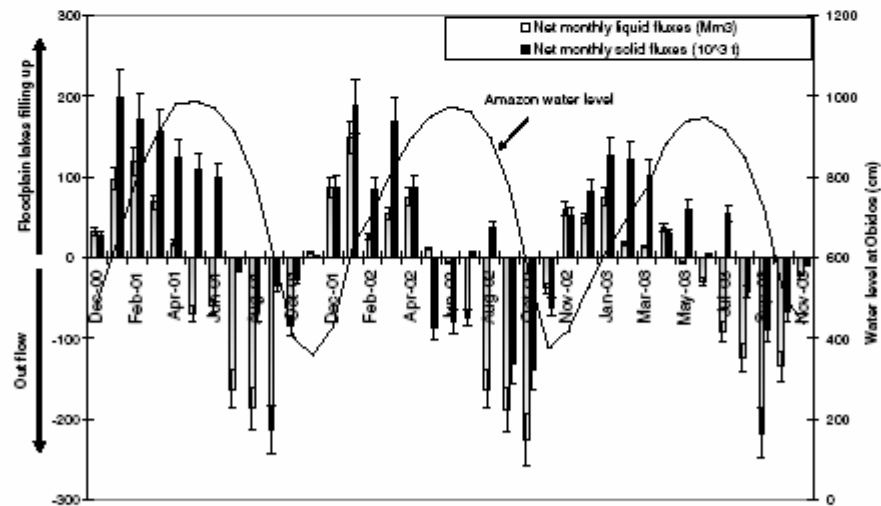


Figure 11 Monthly fluxes of water (divided by 10 for scaling) and TSS exchanged between the Amazon mainstream and the flood plain system, for the 2000–2003 hydrological years. The Amazon R. water level (Obidos station) is plotted. Fluxes are positive during the filling up of the flood plain lakes and negative during the outflow.

a weak sediment rate ($<1 \text{ mm yr}^{-1}$) is therefore expected. In contrast, high sedimentation rates are expected in major side channels of the Amazon River. Connecting channels lo-

cated on the west half of the Curuai floodplain (A110 and A130 in particular) are long, narrow and sinuous, they can reach 40 km length and are not efficient in carrying sedi-

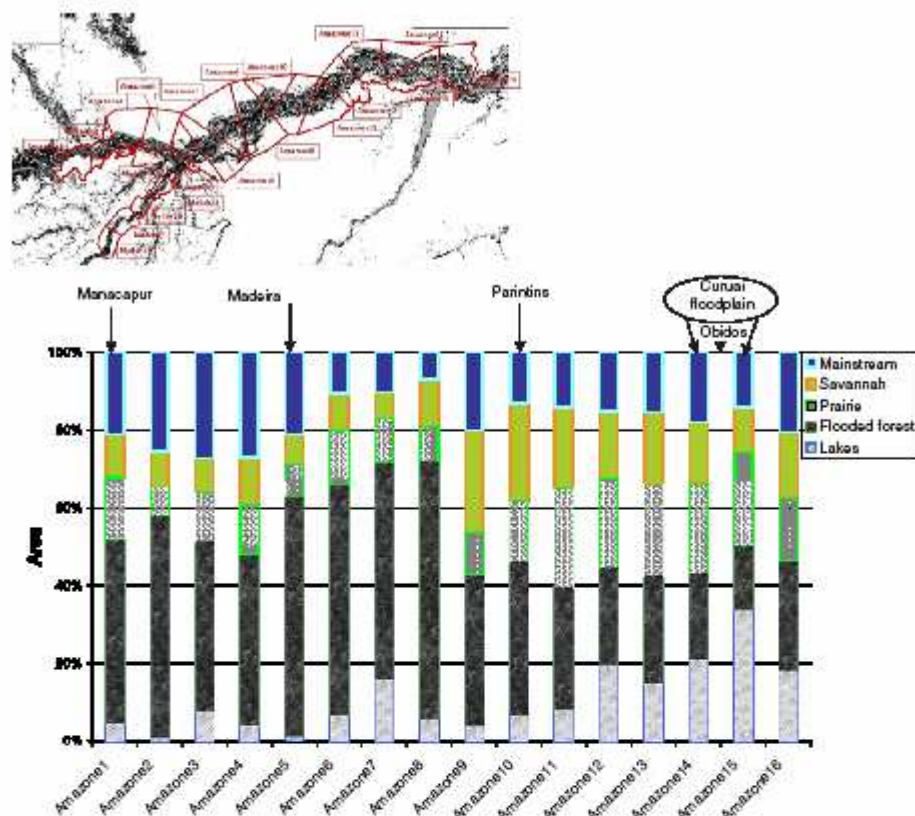


Figure 12 Distribution of wetland inundation and vegetation areas (in % of total km^2 per reach) for the 650 km reach of the Amazon River, between Manacapuru (on the Solimões R., downstream) and Santarém. Wetland extent and vegetation classes were mapped using mosaicked L-band synthetic aperture radar (SAR) imagery acquired by the Japanese Earth Resources Satellite-1, during low- and high-water periods. The five possible cover-state classes consisted of three vegetation cover classes, flooded forest, savannah and prairies, and two water permanent cover, flood plain lakes and mainstream River.

ment from the mainstream as they present high deposition rates by over-bank transport along the channel, favoured by the slow water velocities. For example, in the far western channel (A110), a net decrease of the TSS concentrations, from 98 to 51 mg l^{-1} , has been observed in March 2004, between the Amazon R. and the output lake indicating a progressive deposition along the channels, as there were no water inputs or discharge increase.

Within the várzea lakes, sedimentation is disrupted by the re-suspension leading to a weak net sedimentation. This phenomenon induced by wind waves favoured by a large fetch is regularly observed in white water lakes during the low water stage while water is out flowing from the floodplain. Suspended sediment concentrations in three lakes ranged from 4 mg l^{-1} during the flood peak, to high values during the dry season (1600 mg l^{-1}), more than six times the maximum TSS concentration measured in the Amazon mainstream during the same period (Fig. 10). Among the 3

studied years, sediment inputs are still occurring while water is exported from the system for years 2000–2001 and 2002–2003 (Fig. 11). On the other hand, in 2001–2002, sediment outflows occur early in the year during the flood peak (April and May) while water is still entering in the system (Fig. 11). In addition, simulated sediment and water outflows are stronger than the other years. This led to a net sediment trapping of 41% against 46–53% for the other years.

Channelized floodplain sedimentation

For the period 2000–2003, the mean average sediment deposition by channelized flow was $710,000 (\pm 19\%) \text{ t yr}^{-1}$. This annual storage represents between 41% in 2001–2002 and 53% in 2002–2003, of the annual flux of sediments entering in this floodplain by the main channels.

The mean associated specific sedimentation rate was $517 (\pm 23\%) \text{ t km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$. Expressed in linear kilometres of the

Amazon river, this rate (of $0.004\text{--}0.006\text{ Mt km}^{-1}\text{ yr}^{-1}$) is far less than the total previous rates of $0.67\text{--}0.89\text{ Mt km}^{-1}\text{ yr}^{-1}$ reported for the Solimões R by Mertes (1994), and for the whole Amazon R. by Dunne et al. (1998). From the ORE-HyBAM Program, TSS concentrations data set measured every 10 days at 11 gauging stations over the 2002–2003 year, a net total deposition rate for the Amazon R. of 161 Mt yr^{-1} has been estimated between Manacapuru and Óbidos (Laraque et al., 2005), which corresponds to a total specific deposition rate of $0.248\text{ Mt km}^{-1}\text{ yr}^{-1}$. Applied to the Curuai floodplain, this average rate would imply a total annual deposition rate of sediment of 32 Mt yr^{-1} distributed in three main processes: diffuse overbank settling, channelized floodplain sedimentation and bar deposition (Dunne et al., 1998). These published results were obtained from large reaches studies and then integrate all the sedimentation processes as well as the geomorphological heterogeneities among the whole flooded areas of the Amazon River.

If we compare this work with previous studies of contemporary overbank sedimentation rates estimated in other catchments, our results are comparable and range in the same order of magnitude. Commonly, authors have successfully used ^{137}Cs , and subsequently ^{210}Pb , geochronology to investigate accumulation rates for portions of riverine floodplain in small and large catchments (Walling et al., 1992; Goodbred and Kuehl, 1998; Walling et al., 1999).

In small catchments, in the floodplains of the main channel systems of the Yorkshire Ouse and River Tweed, UK, average overbank sedimentation rates, calculated from Caesium-137 measurements, for individual transects ranged from 0.010 to $0.554\text{ g cm}^{-2}\text{ yr}^{-1}$ in the Ouse Basin and from 0.016 to $0.218\text{ g cm}^{-2}\text{ yr}^{-1}$ in the Tweed Basin, with the mean for all transects being 0.206 and $0.129\text{ g cm}^{-2}\text{ yr}^{-1}$, respectively (Walling et al., 1999). This rate is comparable with the sedimentation rate of $0.517\text{ g cm}^{-2}\text{ yr}^{-1}$ we obtained for a similar catchment in surface area.

In our study, we determined the exchanged water and sediment fluxes between a floodplain system and the main channel, based on a specific field dataset over an extended floodplain area, till 60 km from the Amazon River right bank.

The challenge is that average sediment deposition rates published for the whole mainstream Amazon River cannot be easily applied to large specific floodplain systems located along the mainstream. Tectonic activity affects the form and the behaviour of the channel and floodplains, which with the hydrology and the local climate control the sediment exchanges between the mainstream and the floodplain lakes and channels. If we divide the Amazon R. in 16 reaches between Manacapuru and Santarém, we can observe a high heterogeneity in the geomorphological characteristics of the floodplain (Fig. 12) as described previously by Hess et al. (2003). Wetland extend and vegetation classes were mapped using mosaicked L-band synthetic aperture radar (SAR) imagery acquired by the Japanese Earth Resources Satellite-1, during low- and high-water periods. The five cover-state classes consisted of three vegetation cover classes, flooded forest, savannah and prairies, and two water permanent covers, floodplain lakes and the mainstream River. We observe a significant decrease of flooded forests (from $\sim 50\%$ to $\sim 20\%$) and an increase of the average areas of permanent lakes (from $\sim 5\%$ to $\sim 20\%$) from Parintins to down-

stream Santarém; such increasing lake area does not favour the sediment trap efficiency of the floodplain areas downstream. The Curuai floodplain is then more representative of the lowest part of the reach.

Significant diffuse overbank is expected on the northern, eastern and western parts of the Curuai system. Our calculations take into account a part of the diffuse overbank deposition observed in the field and from satellite images mainly in the north-eastern part of the system, by introducing in the model a long and shallow channel of 1.5 km width, located between the AI70 and the Foz Norte channels. Water and suspended sediments can flow into this channel during the high water stage and be deposited locally without outflowing into the mainstream. In contrast, on the southern and eastern parts of the system, the short, straight, and deep channels (AI70) favour the water and sediment exchanges with the river. Three combined effects increase the sediment output from the floodplain into the mainstream: the hydraulic gradient between the mainstream and the floodplain lake controlled by the Amazon flood and the local rainfall and runoff, the geomorphology of the channels, and the elevated TSS concentrations in low water stage due to the re-suspension process by the wind in shallow water. The trap efficiency of a floodplain system is function of the permanent lake areas, channels characteristics (length, depth, sinuosity and bottom roughness) and bank heights. These parameters are heterogeneous along the Manacapuru–Santarém reach, which can be divided in two or more homogeneous zones (upstream and downstream the city of Itacoatiara).

If from these results we calculate the mean sediment accretion rate, we observe that it varies between 1.2 mm yr^{-1} and 1.9 mm yr^{-1} (average of $1.6\text{ mm yr}^{-1} \pm 23\%$) which is lower to the mean rate of $\sim 6\text{ mm yr}^{-1}$ (Filiola, 2003) calculated from a net total sediment balance between upstream and downstream gauge stations for the whole Amazon reach, but which corresponds to the mean rates published for shallow water lakes (Weyhenmeyer, 1996) and for the large tropical Bengal basin (Goodbred and Kuehl, 1998). We supposed a mean density of 1.3 g cm^{-3} from measurements realised in the bottom sediments of the main lakes; the mean d_{50} varies from $3.6\text{ }\mu\text{m}$ to $4.9\text{ }\mu\text{m}$ with a mean value for the Grande lake of $4.3\text{ }\mu\text{m}$ (Andraus, 2004) and a sediment porosity of 75% (Amorim, 2006; Guerin, F., unpublished data). These values have been measured by laser granulometry (Malvern Instruments), on the suspended particles sampled in the main lakes and in all the connecting channels of the system.

To compare our findings with another large tropical basin, in the tectonically active Bengal basin, accumulation rates were determined by ^{137}Cs and ^{210}Pb radioisotope geochronology in the Ganges and Brahmaputra rivers floodplain (Goodbred and Kuehl, 1998). The total value for sequestered sediments in the Bengal Basin could be $30\text{--}40\%$ of the estimated fluvial sediment load with calculated mean accretion rates ranging from $1.47 \pm 0.92\text{ cm yr}^{-1}$ in the braided belt and $0.16 \pm 0.14\text{ cm yr}^{-1}$ in the Brahmaputra floodplain proper. In contrast to active deposition in the central Bengal basin, slow rates of $0.03 \pm 0.06\text{ cm yr}^{-1}$ were recorded on the south-central floodplain. Patterns of sediment deposition in the Bengal Basin reveal too three

dominant controls on floodplain accretion: channel processes, overbank flooding, and surface runoff.

Conclusion

Water and sediment exchanges between the studied floodplain and the Amazon River are controlled by the mainstream hydrology, by the local precipitation regimes, and by the geomorphological characteristics of the channels and lakes, as the outflow of water begins at the Amazon flood peak, in May/June, followed one or two months later by the outflow of sediments.

To refine these findings, in addition to the development of an hydrodynamic model in 2D or 3D to simulate the diffuse overbank flow mainly along a SW–NE transect on the west half side of the system, it would be interesting to devote more attention to modelling the re-suspension processes associated with wind effects that affect the bottom sediment in the connecting channels during low water stage, when the highest sediment fluxes are observed.

The area of the floodplain investigated represents 13% of the total inundated area of the Amazon River mainstream between Manacapuru and Óbidos, excluding the Solimões, Negro and Madeira floodplains. The initial estimate of the annual sediment storage entering by channels into the Curuai floodplain of about $710 \times 10^3 \text{ t yr}^{-1}$ ($\pm 19\%$) and represents between 41% and 53% of the annual flux of sediments entering in this floodplain from the mainstream. The annual sediment flux entering via the channels in this floodplain represents about 1.6‰ of the annual solid discharge at Óbidos and sediment trapping represents about 0.7‰ of the annual solid burden of the Amazon River.

The associated mean specific sedimentation rate averages $517 (\pm 23\%) \text{ t km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$, by channelized flow. With the model, we observe that the maximal sediment outflow from the floodplain into the mainstream occurs during the low water stage, when two distinct processes are combined: (1) the re-suspension process of the bottom sediment by the wind action, which increases drastically the TSS concentrations in the channels and the lakes, and (2) the outflow of the floodplain lake which lasts till November.

The sediment dynamics in an Amazonian floodplain, as described in this study, may help to estimate and relativize the magnitude of carbon sequestration by central floodplains and their role in the carbon inputs to the Amazon mainstream, as calculated by Melack and Forsberg (2001) and Moreira-Turcq et al. (2005) as well as other geochemical elements dynamics.

Acknowledgements

This research was funded by the HyBAM Program of IRD, French Research Institute for the Development, the ORE Program sponsored by the French government, and the ANA (Brazilian Water Agency), in the frame of the cooperation agreement between IRD and CNPq (Brazil). The daily river water levels and local rainfall were provided by the CPRM (Manaus) and the ANA (Brasília). The authors are grateful to E. de Oliveira and V. Guimarães from the ANA, and G.R. Boaventura from the UnB (University of Brasília)

for their efficient and friendly cooperation. Suggestions for improving the manuscript from the editor and an anonymous reviewer are appreciated. A special thank to the Brazilian observers who sampled regularly surface waters, R.A. Portugal for her helpful assistance at the laboratory, and the crews who accompanied us during the surveys and assisted us at various stages of the field work.

References

- Amorim, M.A. 2006. Estudo da sedimentação recente na várzea do Lago Grande de Curuai, Pará, Brasil. Mestrado thesis dissertation. Univ. Fed. Fluminense, Brazil.
- Andraus, P.R., 2004. Estudo do papel das várzeas na distribuição dos metais (Hg, Al, Fe, Mn) na bacia Amazônica. PIBIC Project dissertation. University of Brasília, Brazil.
- Bonnet, M.P., Barroux, G., Martinez, J.M., Seyler, F., Moreira-Turcq, P., Cochonneau, G., Melack, J.M., Boaventura, G., Maurice-Bourgoin, L., León, J.G., Roux, E., Calmant, S., Kosuth, P., Guyot, J.L., Seyler, P., submitted for publication. Floodplain hydrology in an Amazon floodplain lake (Lago Grande de Curuai).
- Bonnet, M.P., Barroux, G., Seyler, P., Pecly, O., Moreira-Turcq, P., Lagane, C., Cochonneau, G., Viers, J., Seyler, F., Guyot, J.L., 2005. Seasonal links between the Amazon corridor and its floodplain – the case of the várzea of Curuai (near Óbidos). In: Heathwaite, L., Webb, B., Rosenberry, D., Weaver, D., Hayashi, M. (Eds.), Dynamics and Biogeochemistry of River Corridors and Wetlands, vol. 294. IAHS-Publ., pp. 69–77.
- Bonnet, M.P., Poulin, M., Devaux, J., 2000. Numerical modelling of the thermal stratification in a lake reservoir: methodology and case study. Aquatic Sciences 62, 105–124.
- Callède, J., Guyot, J.L., Ronchail, J., Molinier, M., de Oliveira, E., 2004. Evolution des débits de l'Amazonie à Óbidos (Brésil). Hydrol. Sci. J. 49 (1), 85–97.
- Callède, J., Guyot, J.L., Ronchail, J., L'Hôte, Y., Niel, H., de Oliveira, E., 2002. L'Amazonie Óbidos (Brésil). Etude statistique des débits et bilan hydrologique. Hydrol. Sci. J. 47 (2), 321–333.
- Cauchope, M., 2004. Hauteurs d'eau d'une plaine d'inondation amazonienne par altimétrie spatiale. Master 2 Dissertation. Université Paul Sabatier, Toulouse, pp. 30.
- Dunne, T., Mertes, L.A.K., Meade, R.H., Richey, J.E., Forsberg, B.R., 1998. Exchanges of sediment between the flood plain and channel of the Amazon River in Brazil. GSA Bull. 110 (4), 450–467.
- Filizola, N., 2003. Transfert sédimentaire actuel par les fleuves amazoniens. PhD Dissertation. Université Paul Sabatier, France.
- Filizola, N., Guyot, J.L., 2004. The use of Doppler technology for suspended sediment discharge determinations in the River Amazon. Hydrol. Sci. J. 49 (1), 143–153.
- Goodbred Jr., S.L., Kuehl, S.A., 1998. Floodplain processes in the Bengal Basin and the storage of Ganges–Brahmaputra river sediment: an accretion study using ^{137}Cs and ^{210}Pb geochronology. Sediment. Geol. 121 (3–4), 239–258.
- Guyot, J.L., Filizola, N., Laraque, A., 2005. Régimes et bilan du flux sédimentaire à Óbidos (Pará, Brésil) de 1995 à 2003. In: Walling, D.E., Horowitz, A.J. (Eds.), Sediment Budgets 1, vol. 291. IAHS Publ., pp. 347–354.
- Hess, L.L., Melack, J.M., Novo, E.M.L.M., Barbosa, C.C.F., Gastil, M., 2003. Dual-season mapping of wetland inundation and vegetation for the central Amazon basin. Remote Sens. Environ. 87, 404–428.
- Junk, W.J., 1982. Amazonian floodplains: their ecology, present and potential use. Rev. Hydrobiol. Trop. 15 (4), 285–301.
- Junk, W., Furch, K., 1985. The physical and chemical properties of Amazonian waters and their relationships with the biota. In:

- Prance, Lovejoy, T.E. (Eds.), 1996. *Amazonia Key environments* 1. Pergamon Press, New York, USA, pp. 3–17.
- Junk, W.J., Bayley, P.B., Sparks, R.E., 1989. The flood pulse concept in river–floodplain systems. In: Dodge, D.P. (Ed.), *International Large River Symposium*, vol. 106. Can. Spec. Publ. Fish. Aquat. Sci., pp. 110–127.
- Klinge, H., Junk, W.J., Revilla, C.J., 1990. Status and distribution of forested wetlands in tropical South America. *Forest Ecol. Manag.* 33/34, 81–101.
- Kosuth, P., 2002. Hydrological dynamics of the varzea of Lago Grande de Curuai: water and sediment balance, influence of river stage and local rainfall, long term dynamics. In: *Proceedings of the Second International LBA Scientific Conference, Brazil*.
- Laraque, A., Filizola, N., Guyot, J.L., 2005. Variations spatio-temporelles du bilan sédimentaire dans le bassin amazonien brésilien, à partir d'un échantillonnage décennal. In: Walling, D.E., Horowitz, A.J. (Eds.), *Sediment Budgets 1*, vol. 291. IAHS Publ., pp. 250–258.
- Lesack, L.F.W., Melack, J.M., 1995. Flooding hydrology and mixture dynamics of lake water derived from multiple sources in an Amazon floodplain lake. *Water Resour. Res.* 31 (2), 329–345.
- Lucas, Y., 1989. *Systèmes pédologiques en Amazonie brésilienne. Equilibres, déséquilibres et transformations*. PhD Dissertation, Univ. de Poitiers France.
- Martinez, J.M., Le Toan, T., 2006. Mapping of flood dynamics and vegetation spatial distribution in the Amazon floodplain using multitemporal SAR data. *Remote Sens. Environ.*, doi:10.1016/j.rse.2006.11.012.
- Maurice-Bourgoïn, L., Martinez, J.M., Grélaud, J., Filizola, N., Boaventura, G.R., 2005. The role of flood plains in the hydrology and sediment dynamics of the Amazon River, Brazil. In: Walling, D.E., Horowitz, A.J. (Eds.), *Sediment Budgets 1&2*, vol. 291. IAHS Publ., pp. 310–322.
- Meade, R.H., Dunne, T., Richey, J.E., Santos, U.M., Salati, E., 1985. Storage and remobilization of suspended sediment in the lower Amazon River of Brazil. *Science* 228, 488–490.
- Melack, J.M., Forsberg, B.R., 2001. Biogeochemistry of Amazon floodplain lakes and associated wetlands. In: McClain, M.E., Victoria, R.L., Richey, J.E. (Eds.), *The Biogeochemistry of the Amazon Basin*. Oxford University Press, New York, pp. 235–274.
- Mertes, L.A.K., 1994. Rates of floodplain sedimentation on the central Amazon River. *Geology* 22, 171–174.
- Mertes, L.A.K., Daniel, D.L., Melack, J.M., Nelson, B., Martinelli, A., Forsberg, B.R., 1995. Spatial patterns of hydrology, geomorphology, and vegetation on the floodplain of the Amazon River in Brazil from a remote sensing perspective. *Geomorphology* 13, 215–232.
- Mertes, L.A.K., Dunne, T., Martinelli, L.A., 1996. Channel–floodplain geomorphology along the Solimões–Amazon River, Brazil. *GSA Bull.* 108, 1089–1107.
- Moreira-Turcq, P., Jouanneau, J.M., Turcq, B., Seyler, P., Weber, O., Guyot, J.L., 2004. Carbon sedimentation at Lago Grande de Curuai, a floodplain lake in the low Amazon region: insights into sedimentation rates. *Palaeogeograph. Palaeoclimatol. Palaeoecol.* 214 (1–2), 27–40.
- Moreira-Turcq, P., Barroux, G., Bernardes, M., Bonnet, M.P., Maurice-Bourgoïn, L., Perez, M., Seyler, P., 2005. Dynamics of organic carbon between the Amazon R. and floodplain lakes. In: Heathwaite, L., Webb, B., Rosenberry, D., Weaver, D., Hayashi, M. (Eds.), *Dynamics and Biogeochemistry of River Corridors and Wetlands*, vol. 294. IAHS Publ., pp. 19–28.
- Rabus, B., Eineder, M., Roth, A., Bamler, R., 2003. The Shuttle Radar Topography Mission – a new class of digital elevation models acquired by spaceborne radar. *Photogramm. Remote Sens.* 57, 241–262.
- RADAMBRASIL, 1976. *Projeto RADAMBRASIL. Levantamento de Recursos Naturais*, 10 (Folha SA.21 – Santarém). Departamento Nacional da Produção Mineral, Rio de Janeiro, pp. 522.
- Richey, J.E., Mertes, L.A.K., Dunne, T., Victoria, R., Forsberg, B.R., Tancredi, A.C.F.N.S., Oliveira, E., 1989. Source and routing of the Amazon river flood wave. *Global Biogeochem. Cy.* 3, 191–204.
- Richey, J.E., Hedges, J.I., Devol, A.H., Quay, P.D., Victoria, R., Martinelli, L., Forsberg, B.R., 1990. Biochemistry of carbon in the Amazon River. *Limnol. Oceanogr.* 35 (2), 352–371.
- Riou, C., 1975. *La détermination pratique de l'évaporation. Application à l'Afrique Centrale*. Mémoire ORSTOM, No. 80. IRD Publications, Paris.
- Ronchail, J., Cochraneau, G., Molinier, M., Guyot, J.L., Gorette de Miranda Chaves, A., Guimarães, V., et de Oliveira, E., 2002. Rainfall variability in the Amazon Basin and SSTs in the Tropical Pacific and Atlantic oceans. *Int. J. Climatol.* 22, 1663–1686.
- Seyler, P., Boaventura, G.R., 2003. Distribution and partition of trace metals in the Amazon basin. *Hydrolog. Process.* 17, 1345–1361.
- Sippel, S.J., Hamilton, S.K., Melack, J.M., 1991. Inundation area and morphometry of lakes on the Amazon River floodplain, Brazil. *Arch. Hydrobiol.* 123, 385–400.
- Walling, D.E., Quine, T.A., He, Q., 1992. Investigating contemporary rates of floodplain sedimentation. In: Carling, A., Petts, G.E. (Eds.), *Lowland Floodplain Rivers: Geomorphological Perspectives*. Wiley, pp. 165–184.
- Walling, D.E., Owens, P.N., Leeks, J.L., 1999. Rates of contemporary overbank sedimentation and sediment storage on the floodplains of the main channel systems of the Yorkshire Ouse and River Tweed, UK. *Hydrolog. Process.* 13 (7), 993–1009.
- Weyhenmeyer, G.A., 1996. The Significance of Sediment Resuspension in Lakes. *Acta Univ. Ups., Comprehensive Summaries of Uppsala Dissertations from the Faculty of Science and Technology*, vol. 225. Uppsala, pp. 32. ISBN 91-554-3820-2.

Maurice-Bourgoin L., 2001. Le mercure dans les eaux de surface du bassin amazonien – Transfert du mercure des sols aux milieux aquatiques – Spéciation, transport et sédimentation dans les rivières et plaines d'inondation. In : *Le mercure en Amazonie : Rôle de l'homme et de l'environnement*, (Carmouze J.P., Lucotte M. and Boudou A., Eds.) IRD Publications (Expertise Collégiale), pp :167-201.

Le mercure dans les eaux de surface du bassin amazonien

Transfert du mercure des sols aux milieux aquatiques, spéciation, transport
et sédimentation dans les rivières et plaines d'inondation

L'entrée du mercure dans la biosphère se fait :

- par voie naturelle dans des zones de fragilité de la croûte terrestre (siège de tremblements de terre et d'activités volcaniques), sous forme de vapeurs de Hg émises à partir du manteau terrestre, ainsi que par la solubilisation de certaines roches comme les schistes carbonatés formés dans des environnements anoxiques et riches en sulfures ;
- par voie anthropique en des lieux plus ponctuels de rejets de mercure provenant d'activités industrielles, artisanales et domestiques, sous diverses formes organiques et inorganiques, à l'état solide ou gazeux, selon le cas.

La répartition du Hg à la surface de la planète n'est pas pour autant étroitement dépendante des sources, qu'elles soient zonales ou ponctuelles. Sa volatilité élevée le prédispose à des transports atmosphériques, tandis que ses propriétés chimiques de complexation aux matériaux colloïdaux (matière organique et argiles) favorisent son transport par voie fluviale.

Si on se réfère au bilan établi pour le milieu océanique par Cossa *et al.* (1996), les fleuves représentent la principale voie de transport du mercure à la surface de la planète. En effet, les océans recevraient environ $4,7 \times 10^4$ moles de Hg par an par voie fluviale, contre à peine 2×10^4 moles par an par voie atmosphérique. D'où l'importance qu'il faut accorder aux transports fluviaux dans la dissémination du Hg à la surface de la terre.

De même faut-il souligner la part prise par les activités anthropiques dans les entrées de Hg dans la biosphère. Les travaux de Masow *et al.* (1994) ont montré que les concentrations de Hg dans les océans et dans l'atmosphère ont triplé au cours de ce dernier siècle. Les émissions anthropiques de vapeurs de

Hg seraient responsables de cette augmentation. La moitié du Hg émis retomberait non loin de la source, tandis que l'autre moitié entrerait dans le cycle atmosphérique global.

En milieu amazonien, les études sur le transfert du Hg des sols aux milieux aquatiques ainsi que sur son transport et sa sédimentation dans les rivières et les plaines d'inondation ont été retardées en raison des difficultés que posaient l'échantillonnage, la conservation et la mesure du Hg dissous dans les eaux. L'application d'un protocole rigoureux portant sur le mode de prélèvement (technique « ultrapropre » de AHLERS *et al.*, 1990), la conservation des échantillons, leur traitement et leur analyse (technique hautement sensible de fluorescence atomique ; COSSA *et al.*, 1995) ont permis ces dernières années d'obtenir des résultats fiables concernant le mercure total dans les eaux de surface du bassin amazonien (VINSON *et al.*, 1997 ; MAURICE-BOURGON *et al.*, 1997, 1999 a et b ; ROULET *et al.*, 1998 et à paraître) et ainsi de corriger les très fortes valeurs publiées jusque-là (compilées par LACERDA et SALOMONS dans PREIFFER *et al.*, 1989, 1991). Les concentrations en mercure total dans les eaux de surface du bassin amazonien sont généralement comprises entre 1 et 30 ng/l ; les valeurs supérieures peuvent être mesurées dans des cas particuliers tels que les eaux sortant d'une mine (TELNER *et al.*, 1999) ou les eaux de début de crue des tributaires andins, lorsqu'ils sont fortement chargés en matériel en suspension (MAURICE-BOURGON *et al.*, 2000 b).

Les transports hydriques ne jouent pas qu'un rôle neutre de redistribution du Hg à partir de ses diverses sources. Le Hg est susceptible d'être véhiculé vers des sites où il est transformé en méthylmercure (MeHg), point de départ de la contamination mercurielle des humains via la chaîne trophique. D'où la nécessité de présenter un bilan de nos connaissances sur les processus de transfert du milieu terrestre vers le milieu aquatique ainsi que de transport et de sédimentation du Hg en milieu fluvial et lacustre.

GÉNÉRALITÉS SUR LE CONCEPT D'HYDROSISTÈME FLUVIAL : LE CAS DU BASSIN AMAZONIEN

Le bassin amazonien, qui occupe une superficie de 6,11 millions de kilomètres carrés, est le plus grand bassin hydrographique continental. Situé en

zone intertropicale, sa pluviosité annuelle moyenne est de 2 460 mm et le débit moyen de l'Amazonie est estimé à 209 000 m³/s à l'embouchure de l'océan Atlantique (MOLINA *et al.*, 1997). Une des particularités de ce fleuve réside dans sa partie montagneuse, à l'ouest de son bassin, à savoir la chaîne andine de Bolivie, du Pérou et de l'Équateur qui représente un peu plus de 10 % de la superficie totale du bassin (fig. 1). Cette chaîne constitue une barrière orographique sur laquelle viennent buter les masses d'air chaudes et humides d'origine atlantique, les maximums pluviométriques du bassin amazonien étant enregistrés sur les premiers reliefs du bassin du Rio Negro et à proximité des piémonts andins (SALATI et MARQUES, 1984 ; ROCHE *et al.*, 1990).

Depuis les travaux de SCHUMM (1977), le bassin versant est décomposé schématiquement en une zone de production constituée par les reliefs, une zone de sédimentation constituée par les plaines alluviales, deltas et estuaires et, entre les deux, une zone de transfert. Chaque zone, comme son qualificatif l'indique, se caractérise par une fonction dominante. Mais cela n'exclut pas que des phénomènes de sédimentation puissent être observés dans les zones



Figure 1
Réseau hydrologique
et grandes unités
géographiques du bassin
amazonien (d'après
MOLINA *et al.*, 1997).

de production et de transfert, et inversement que des phénomènes érosifs soient fréquemment notés dans les zones de transfert et de sédimentation (érosion des berges, par exemple).

Dans le cas des grands bassins fluviaux tels que le bassin amazonien, la zone de production est généralement d'extension géographique limitée (reliefs de chaîne active en bordure et à l'amont du bassin), et les zones de transfert et de sédimentation, fréquemment confondues et largement imbriquées entre elles, apparaissent sur de vastes bassins sédimentaires. Au cours du cycle hydrologique annuel, une dynamique transversale s'installe entre le fleuve et les zones d'inondation interconnectées à celui-ci (flux bidirectionnels), qui va contrôler l'équilibre spatial et temporel des processus de transfert et de sédimentation (Ancoras et Peris, 1993). Dans le bassin amazonien, ces zones humides – les *várzea* – s'étendent sur plus de 300 000 km² et sont le lieu d'une forte productivité biologique (Junk et al., 1989).

Le relief et le climat sont donc les deux moteurs de la dynamique de transfert de matière à la surface de la terre, et les plus forts taux d'érosion sont ainsi observés dans les bassins des chaînes de montagnes actives de la ceinture tropicale. Le taux d'érosion moyen de la chaîne andine a été estimé à 3 200 tonnes par kilomètre carré et par an, soit 1,3 mm par an (Guyot, 1993). Bien que de très fortes hétérogénéités spatiales existent, dues aux régimes locaux des précipitations et à la nature lithologique des bassins versants, il est intéressant de constater que ce taux moyen d'érosion correspond au double du taux de surrection de la chaîne andine, calculé sur de plus longues périodes par trace de fission (Bridgman et al., 1987). La production sédimentaire issue des Andes est transportée par les tributaires du bassin amazonien vers l'océan Atlantique. A la sortie des Andes, en raison du brutal changement de gradient topographique, la capacité de transport des cours d'eau chute rapidement (Guyot et al., 1999), entraînant une abondante sédimentation dans les piémonts andins où la subsidence est très active (Bab et al., 1997). Dans le bassin du Rio Madeira, seulement 40 % du matériel érodé dans les Andes parvient ainsi à l'Amazonie (Guyot, 1993).

Le transfert sédimentaire (transport/sédimentation) dans les plaines d'inondation des grands bassins fluviaux est également conditionné par les mouvements structuraux récents (Mertes et al., 1996 ; Dunne et al., 1998) et la dynamique hydrologique actuelle (Meade et al., 1985 ; Ollivry et al., 1995).

Les grandes régions hydrologiques du bassin amazonien apparaissent dans la figure 1. Elles rendent compte de la diversité des caractéristiques lithologiques, géomorphologiques, météorologiques et hydrologiques des divers sous-bassins. Cette diversité est à l'origine des trois grandes classes d'eaux, distinguées par Stouffes dès 1975.

Les eaux *blanches*, originaires des Andes et fortement chargées en sédiments (jusqu'à plusieurs grammes de matériaux particuliers par litre, en crue), de couleur ocre, sont fortement minéralisées et présentent de très faibles concentrations en carbone organique et un pH neutre ; c'est le cas du Rio Madeira, du Rio Madre de Dios et du Rio Solimões. Le Rio Branco, comme son nom l'indique, est aussi classé parmi les eaux blanches mais provient du bouclier guyanais.

Les eaux *claires*, issues des boucliers brésilien et guyanais, sont pauvres en matières en suspension. Limpides et de couleur vert-jaune à vert olive, elles sont le siège de blooms phytoplanctoniques réguliers mais présentent de grandes hétérogénéités dans leur contenu en ions majeurs ; c'est le cas du Rio Itenez-Guapore, du Rio Xingu et du Rio Tapajós, ainsi que de leurs tributaires, les rios Juruena et São Manoel. En Guyane française, les principaux fleuves sont tous de ce type.

Les eaux *noires*, ou « Coca-Cola Rivers », drainent généralement des bassins forestiers et podzoliques, donc riches en matière organique dégradée de type acides humiques et fulviques, acidifiant très fortement leur pH. Ces eaux sont transparentes et de couleur brune, très faiblement minéralisées et très peu chargées en suspensions ; c'est le cas du fameux Rio Negro, du Rio Içana et du Rio Cururú.

TRANSFERTS DU MERCURE DES SOLS AUX RIVIÈRES

Sous certaines conditions environnementales, le Hg des sols est exporté vers les milieux aquatiques. L'intensité des processus d'érosion physique et chimique, à l'origine des transferts de matières et solutés des sols aux rivières, dépend de multiples facteurs liés :

- aux caractéristiques lithologiques et géomorphologiques du réseau de drainage ;

- aux régimes météorologique et hydrologique ;
- à la nature des couvertures pédologiques et des couvertures végétales ;
- à la richesse des sols en molécules organiques et minérales auxquelles le mercure est préférentiellement associé.

L'infiltration, la lixiviation, la dissolution et la précipitation, actives dans les horizons de surface, ainsi que le ruissellement sont les processus majeurs de transfert de solutés des sols vers les eaux de surface. Lorsque l'intensité des précipitations dépasse la capacité d'absorption du sol, il y a excès d'infiltration ; il en résulte un écoulement de surface. Dans des bassins de drainage boisés possédant de grandes capacités d'infiltration, des études réalisées à l'isotope 140 ont montré qu'une eau ancienne stockée dans le sol peut contribuer pour 40 à 95 % à l'écoulement total (DEWALLE *et al.*, 1988). DUNNE (1978) a établi que le volume de ces écoulements subsuperficiels est de deux ordres de grandeur inférieur au volume des ruissellements de surface pour des bassins supérieurs à 0,02 km². D'autre part, il a été démontré que les réseaux de canaux éphémères au sein du sol contribuent, au début de l'hydrogramme de crue, à plus de 50 % de l'écoulement des averse (WWA, 1987). Cette observation est à relier aux fortes concentrations en mercure enregistrées dans les rivières au cours de la montée de crue (ROULET *et al.*, à paraître ; MAURICE-BOURGOIN *et al.*, 2000 b).

Le lessivage des sols par ruissellement superficiel et subsuperficiel entraîne donc le départ du mercure, principalement associé aux particules organominérales fines, vers les milieux aquatiques. Par exemple, de fortes concentrations en mercure dissous sont mesurées dans les rivières d'eaux noires, particulièrement riches en substances humiques donc en matière organique colloïdale (MAURICE-BOURGOIN *et al.*, 1999 b) pour laquelle le Hg présente une grande affinité. Il a été estimé que, dans le bassin du Tapajós, le ravinement et l'érosion sont responsables du transfert, par centimètre de sol érodé, de 500 à 3 000 µg de Hg par mètre carré vers l'environnement aquatique (ROULET *et al.*, 1999) ; le Hg transféré se trouvant essentiellement sous forme particulaire. Ces transferts de matière sont considérablement amplifiés sur les sols dénudés après déforestation et contribuent à l'augmentation des concentrations de mercure dans les eaux de surface de sous-bassins versants amazoniens non affectés par les activités d'orpaillage.

En milieu équatorial, la genèse et le fonctionnement des sols couplés à l'écoulement latéral permettent d'expliquer le transfert de certains solutés

dans les eaux de surface. L'activité biologique dans les horizons de surface minéralise la litière végétale et produit des composés organiques « agressifs », dissolvant localement les minéraux présents. L'aluminium et le fer, ainsi relâchés dans la solution du sol, se complexent en grande partie à la matière organique présente (EMCOLE *et al.*, 1993).

On distingue deux grands types de sols en milieu tropical : les sols ferrallitiques et les podzols.

Dans les sols ferrallitiques, la solution du sol s'infiltré lentement et régulièrement jusqu'à la nappe profonde dont l'écoulement latéral alimente ensuite les cours d'eau (LUCAS *et al.*, 1996). Les matières organiques complexantes restent bloquées par les surfaces minérales en sommet de profil et sont condensées ou minéralisées. Il en résulte que la majeure partie du Fe et de l'Al reste immobilisée dans le profil (sous forme de kaolinite, gibbsite et goëthite), et les eaux qui s'écoulent vers les eaux de surface sont alors pauvres en matière organique, Fe et Al, et riches en Si (fig. 2). La plupart des éléments sont transportés dans la phase dissoute, sauf environ 10 % de Si qui est transporté dans la phase particulaire et 50 % d'Al dans la phase colloïdale, probablement sous forme d'hydroxydes et de complexes organométalliques.

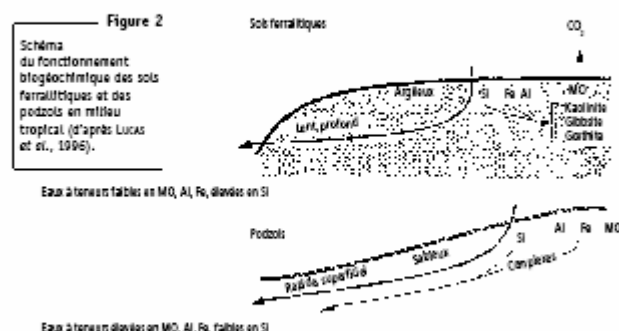
Par ailleurs, les sols ferrallitiques amazoniens, à la lumière de travaux récents effectués en Amazonie brésilienne et en Guyane française, apparaissent comme un immense réservoir de mercure (voir annexe 2). Ce dernier s'accumule dans les horizons minéraux en association étroite avec les oxyhydroxydes de fer et d'aluminium. Les charges cumulées de Hg dans les vingt premiers centimètres varient entre 10 et 30 mg/m², dans la région du Tapajós, à 70 mg/m², dans les sols très argileux et riches en oxyhydroxydes de Guyane française (ROULET *et al.*, 1999). Ces chiffres sont jusqu'à dix fois supérieurs à ceux observés dans les sols des régions tempérées de l'hémisphère Nord.

En effet, le mercure contenu dans les sols ne provient pas uniquement des apports dus aux activités d'orpaillage menées dans tout le bassin amazonien depuis près d'un siècle mais en grande partie d'une accumulation sur plusieurs centaines d'années, résultant du cycle atmosphérique naturel du mercure et de la pédogenèse.

Dans les podzols et les sols en voie de podzolisation, comme ceux rencontrés dans le haut bassin du Rio Negro, les solutions circulent rapidement à travers des matériaux sableux très poreux dont les faibles surfaces d'échange

ne retiennent pas la matière organique. Les complexes organométalliques produits dans les horizons de surface migrent latéralement vers les axes de drainage, ce qui entraîne une exportation précoce de Fe et d'Al dans les eaux de surface (fig. 2 ; Lucas *et al.*, 1996). La complexation du fer par la matière organique favorise la dissolution de la goéthite et des agrégats argileux, et donc leur migration vers les eaux de surface. Le Fe et probablement l'Al sont transportés sous forme de complexes organométalliques dans la phase colloïdale (Ervolle *et al.*, 1993).

En région amazonienne, la remobilisation du Hg des sols ferrallitiques vers les milieux aquatiques peut donc résulter de l'évolution naturelle des couvertures pédologiques à travers des processus comme l'arénisation et la podzolisation (Roulet *et al.*, 1998 ; Zeidemann *et al.*, 1999). Ces processus sont caractéristiques de l'évolution de nombreux systèmes de sols amazoniens. L'arénisation correspond à l'érosion sélective des argiles fines riches en oxyhydroxydes et donc en Hg, le long des pentes, sous l'influence du drainage oblique. La podzolisation, résultat de l'action conjointe des processus d'acidification et de lessivage, conduit à la destruction des matériaux argileux puis à la formation de complexes organométalliques et à leur exportation. Dans les horizons minéraux de sols du bassin du Rio Negro, les charges en mercure mesurées et intégrées sur une profondeur de 60 cm sont comprises entre 38 et 77



mg/m² ; elles sont supérieures à celles enregistrées dans les horizons organiques, comprises entre 2 et 15 mg/m² (ZEIDEMANN, 1998). Ces résultats attestent du rôle majeur joué par les surfaces minérales dans l'accumulation du mercure dans les sols. Cependant, le principal processus qui influence fortement les concentrations en mercure dans les rivières d'eaux noires est celui de lixiviation latérale, favorisé par le drainage oblique (ZEIDEMANN, 1998). La mobilité du mercure est accrue par les conditions d'humidité permanente qui règnent dans les zones de podzols et de sols hydromorphes, favorisant le relargage du mercure dans le réseau hydrique ; le bassin du Rio Negro en est un exemple.

SPÉCIFICITÉ DES DIFFÉRENTES CLASSES GÉOCHIMIQUES D'EAUX ET CONSÉQUENCES SUR LA DISTRIBUTION DU MERCURE DANS LE BASSIN AMAZONIEN

Le transport, la spéciation et la transformation du mercure dans les eaux de surface sont largement contrôlés par le cycle de la matière organique ; cependant, dans les eaux pauvres en composés organiques, les oxyhydroxydes de Fe, d'Al et de Mn ainsi que les composés sulfureux et les minéraux argileux constituent d'excellents ligands pour les métaux lourds tels que le Hg.

La distribution du mercure dans la colonne d'eau, entre les phases dissoute et particulaire, est largement influencée par les caractéristiques géochimiques de chaque type d'eau et par la nature de ses liaisons avec la matière organique et les oxyhydroxydes. En Amazonie centrale, la matière organique colloïdale est à l'origine d'une part importante du transport du Fe et de l'Al ainsi que d'autres métaux dissous (Ervolle *et al.*, 1996).

Plusieurs travaux récents (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 1999 b ; Roulet *et al.*, *à paraître*) semblent démontrer que les niveaux de concentration de Hg dans l'eau des rivières amazoniennes sont parfaitement en accord avec leur division en différents types d'eaux (tabl. I).

LES EAUX BLANCHES

Les fortes concentrations en Hg dans les eaux blanches sont dues essentiellement aux fortes charges de matériel en suspension provenant de l'érosion des sous-bassins andins.

Le Rio Madeira, l'un des principaux tributaires d'eaux blanches de l'Amazonie, illustre bien ce type d'eau. Les suspensions proviennent en grande partie de l'intense érosion du massif andin durant la saison des pluies, qui dure de novembre à avril. Dans les rivières andines, la charge sédimentaire est très importante et la part des argiles représente 3 à 15 % de celles du Rio Beni au niveau du piémont andin (Guvor, 1993).

Tableau I. Concentrations en mercure dans les eaux de surface du bassin amazonien (campagnes essentiellement réalisées en basses eaux).

	Superficie du bassin de drainage (km ²)	Matières en suspension (mg/l)	Hg dissous (ng/l)	Hg particulaire (ng/g poids sec)	Hg total (ng/l)	Références
Niveau moyen mondial				0,1-3,5		MAISON et al., 1994
Rivières d'eau blanches						
Tributaires andins						
exploités pour l'or alluvial						
Rio Tipuani	1 400	188-338	1,80-3,80	5-43	3,11-5,37	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a
Rio Mapiri et Rio K'aka	10 100 et 18 800	32-135	1,30-6,15	7-50	2,25-6,99	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a
Piémont des Andes						
Rio Beni (Barranabague)	67 500	126-233	3,60-6,55	7-61	7,22-27,06	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a
Plaine amazonienne						
Rio Beni (Ribarrilla)	243 000	167-537	2,55-6,03	2-8	3,77-7,64	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a
Rio Madeira (de Porto Velho à Borba)	95 428 à 1 x 10 ⁶	47-149	5,80-8,60	10-20	7,00-10,43	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a
Rio Madeira (tranchet)			10-17	10-33		NEIGAU et al., 1992
Amazonie et tributaires d'eau confluence						
Rio Madeira (Foz Amazonas)	1 370 000	33-38	5,55-10,40	140-209	9,40-10,86	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a
Rio Solimões	2 147 740	48-66	5,26-6,00	45-140	7,17-13,01	MAURIS-BOURGON et al., 1999 b
Amazonie, amont de la confluence du Tapajós			1,0-2,8	105-184	7,5-32,5	ROULET et al., à paraître
Amazonie (+ Rio Madeira), à Itacoatiara	4 300 000	10	5,54	145	9,95	MAURIS-BOURGON et al., 1999 b

Tableau I (suite). Concentrations en mercure dans les eaux de surface du bassin amazonien (campagnes essentiellement réalisées en basses eaux).

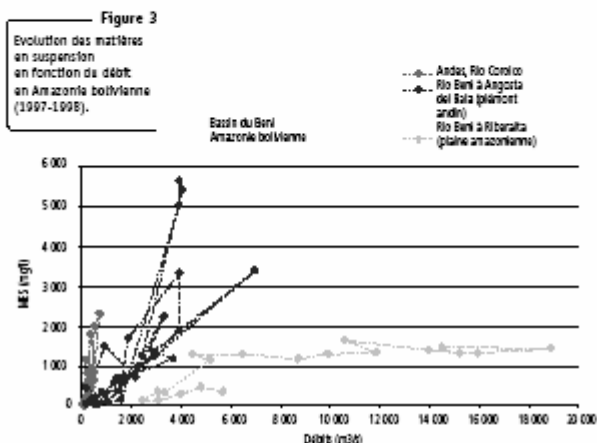
	Superficie du bassin de drainage (km ²)	Matières en suspension (mg/l)	Hg dissous (ng/l)	Hg particulaire (ng/g poids sec)	Hg total (ng/l)	Références
Eaux claires						
Rio Tapajós, 350 km de transect commençant à 50 km des mines			0,5-1,8	167-425	1,8-7,3	ROULET et al., 1998 et à paraître
Tributaires du Rio Tapajós			0,5-2,8	154-255	0,8-13,6	ROULET et al., 1998 et à paraître
Rio Xingu, de São Felix à Altamira	3-18	3,55-4,17	442-572	5,10-13,93		MAURIS-BOURGON, non publié
Eaux noires						
Rio Negro (tranchet + tributaires)*					2,3-6,7	FACONE et JARDON, 1999
Rio Negro en amont de Manaus	696 810	4,5-7,8	6,0-7,1	1 130-2 074	11,60-18,16	MAURIS-BOURGON et al., 1999 b
Eaux glaciaires						
Rio Zongo, à la sortie du glacier	2	2,0-2,5	1,95-2,40	121 - 145	2,24-2,57	MAURIS-BOURGON et al., 2000 a

* Prélèvements faits dans des bouteilles d'eau minérale (et non en Teflon, pré-décontaminées).

Jusqu'à la formation de la plaine d'inondation, les concentrations en matières en suspension sont proportionnelles au débit (fig. 3). Dans la plaine, au-delà d'un débit de 5 000 m³/s, ces concentrations n'augmentent plus, indiquant une importante sédimentation (fig. 3). Guvor (1993) montre que 43 % des matériaux en suspension que transporte le Rio Beni sédimentent dans la plaine d'inondation. Ce chiffre est de 81 % pour le Rio Mamoré, qui possède une plaine d'inondation beaucoup plus étendue (150 000 km²) et une pente moins forte.

A sa formation, le Madeira reçoit annuellement un flux de matières particulaires de l'ordre de 230 millions de tonnes. Le Rio Beni contribue à ce transport à hauteur de 72 %, contre 28 % pour le Mamoré, alors que leurs participations au débit liquide sont respectivement de 52 % et 48 % (Guvor, 1993).

Les concentrations en mercure dans les eaux du bassin du Rio Madeira varient, en saison sèche, de 2,24-2,57 ng/l dans les eaux glaciaires du Rio



Zongo à 7,00 ng/l dans les eaux du Madeira à Porto Velho, pour atteindre 9,49-10,86 ng/l à sa confluence avec l'Amazone (MAURICE-BOURGON *et al.*, 2000 a). On observe une augmentation des concentrations en mercure total d'amont en aval du bassin (fig. 4).

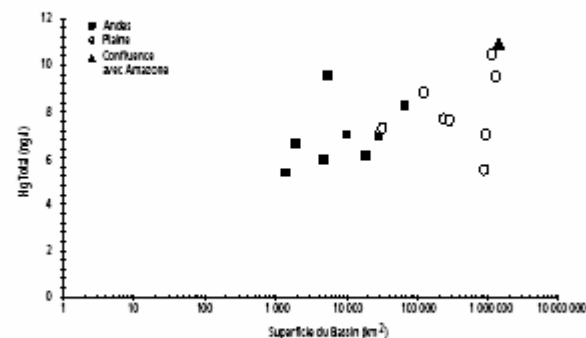
Des analyses réalisées en saison sèche dans les tributaires andins du Rio Madeira (MAURICE-BOURGON *et al.*, 2000 a), il ressort que les valeurs maximales de concentration et de flux de Hg n'ont pas été enregistrées dans les tributaires exploités pour leur or alluvial (2,25 à 6,99 ng/l et 1,07 à 8,67 mg/jour/km²) mais 200 km en aval, au niveau du piémont andin (7,22 à 8,22 ng/l et 9,47 à 9,52 mg/jour/km²).

Dans le Tapajós, tributaire d'eaux claires, des résultats similaires ont également été obtenus par ROULET *et al.* (1998), mettant en évidence l'importance du processus d'érosion dans la charge sédimentaire des eaux de surface.

Pour tous les types d'eaux, l'érosion a une incidence directe sur l'augmentation de la charge sédimentaire, mais, dans le cas des eaux blanches, l'érosion des massifs andins influence très fortement la géochimie des eaux et donc la distribution du Hg.

La faible quantité de mercure rejetée directement dans les rivières par les orpailleurs, le régime hydrologique de ce bassin et la dynamique sédimentaire permettent d'expliquer cette observation. En effet, la majeure partie du Hg émis au cours des activités d'orpaillage est rejetée dans l'atmosphère ; sous forme de vapeur, cet élément stable peut voyager sur plusieurs centaines de kilomètres avant de précipiter en atmosphère humide et retomber avec les pluies, pouvant contaminer les sols d'autres bassins que ceux d'émission. Dans le piémont andin, où des concentrations élevées en mercure ont été mesurées, on peut constater de fortes précipitations,

Figure 4
Evolution longitudinale en basses eaux des concentrations en mercure total dans les eaux de surface de bassin du Rio Madeira, depuis ses sources andines jusqu'à sa confluence avec l'Amazone : campagne de basses eaux, septembre 1995 (MAURICE-BOURGON *et al.*, 2000 a).



une zone de subsidence favorisant le dépôt de la charge sédimentaire arrachée des massifs andins, enfin des bassins de drainage enrichis en oxyhydroxydes de fer (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 2000 a).

Dans l'Amazonie, classée parmi les eaux blanches également, les concentrations en mercure varient, en amont de sa confluence avec le Rio Tapajós, de 7,5 à 32,5 ng/l entre les périodes d'étiage et de crue (ROULET *et al.*, à paraître) ; à l'aval de sa confluence avec le Rio Madeira, le Hg total atteint en basses eaux 9,08 ng/l dont 5,54 ng/l dans la fraction dissoute (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 2000 a).

À l'aval de sa confluence avec le Madeira, le Hg se comporte comme un élément conservatif (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 1999 b) puisque la différence entre la valeur théorique obtenue à l'aide d'un simple calcul de dilution et la valeur mesurée est du même ordre de grandeur que l'erreur analytique (2,8 %).

Les contenus en C et en Hg des particules des eaux blanches sont en général inférieurs à ceux analysés dans les eaux claires, mais les concentrations en Hg total sont plus élevées en raison de la forte charge sédimentaire.

LES EAUX CLAIRES

Les bassins de drainage des eaux claires sont en général très altérés et donc appauvris en sels et en matières en suspension.

Dans ces eaux, il apparaît que les concentrations en mercure dans la colonne d'eau sont également contrôlées par les concentrations en matières en suspension et particulièrement par la fraction fine (ROULET *et al.*, 1998 et à paraître). Dans les eaux du Tapajós, principal tributaire d'eaux claires de l'Amazonie, les concentrations en mercure dissous varient de manière saisonnière de 0,5 à 1,8 ng/l et de 167 à 425 ng/g pour la fraction particulaire (ROULET *et al.*, à paraître). Ces auteurs ont observé des variations saisonnières significatives du mercure particulaire, avec des maximums en début de crue, contrairement au mercure dissous qui reste faible quel que soit l'épisode hydrologique du prélèvement. Les teneurs en mercure de la fraction particulaire fine ($0,7 \mu\text{m} < \text{FPM} < 63 \mu\text{m}$) représentent 40 à 90 % du mercure total, les maximums étant généralement observés en début de crue. Ces maximums sont associés aux fortes quantités de matières en suspension apportées avec

l'érosion des sols, accrue par les actions de déforestation qui sont répandues dans le bassin. La concentration en matériel fin tend à diminuer également au cours de la montée de crue, réduisant l'apport en mercure et son transport dans l'hydrosystème.

Dans les eaux de surface du Tapajós et de ses tributaires d'eaux claires, caractérisées par des épisodes réguliers de blooms phytoplanctoniques, le contenu en Hg, Fe et Al réactifs de ce phytoplancton est pauvre. La coagulation de la matière organique colloïdale sur la surface des particules pourrait expliquer les fortes valeurs de C et de Hg mesurées (ROULET *et al.*, à paraître).

Les particules en suspension, relativement à leur contenu en oxyhydroxydes, ne sont pas plus riches en Hg que les sols avoisinants (ROULET *et al.*, à paraître). Cette observation vient confirmer l'importance de l'érosion et du drainage pour la qualité géochimique des eaux de surface.

LES EAUX NOIRES

D'une façon générale, ce sont les eaux les plus riches en carbone organique particulaire et colloïdal qui présentent les concentrations les plus élevées en mercure. Cette corrélation vient de la forte capacité d'adsorption des métaux lourds sur la matière organique, principalement sous sa forme colloïdale.

Le Rio Negro en est l'exemple le plus représentatif. En effet, son faible pH (5 à 6) et sa faible conductivité ($< 10 \mu\text{S/cm}$) le classent parmi les eaux noires, particulièrement riches en carbone organique dissous (COD), lequel représente près ou plus de la moitié du carbone organique total (89 % d'après MOREIRA-TURCO *et al.*, 1999 ; 45,2 % d'après PATEL *et al.*, 1999). Il est l'affluent de l'Amazonie le plus riche en mercure (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 1999 b ; tabl. I), avec des concentrations en mercure dissous, mesurées en fin de décrue, de 7 ng/l en surface à 6 ng/l en profondeur, sous la couche euphotique. Les suspensions également sont particulièrement riches en mercure ; leurs teneurs sont dix fois supérieures à celles mesurées dans les autres tributaires. Elles atteignent leur maximum en surface (2 074 ng/g) puis diminuent en profondeur (1 130 ng/g à - 6 m). Ces fortes concentrations en mercure dissous et particulaire ainsi que leur diminution avec la profondeur sont à relier avec la diminution du pH et la richesse des eaux en carbone organique. Sachant

qu'une diminution du pH a pour effet de limiter la fixation du mercure sur la phase solide (SING *et al.*, 1992), il apparaît que le carbone organique joue un rôle prépondérant dans ce processus. En revanche, les caractéristiques physico-chimiques des eaux noires ne permettent pas le développement d'une biomasse phytoplanctonique appréciable ; il ne peut donc y avoir « production » de Hg^0 due à des micro-organismes phytoplanctoniques, comme cela avait pu être mesuré par MASON *et al.* (1995). Il peut y avoir cependant production de Hg^0 sous l'influence de processus photochimiques ; seulement, il apparaîtrait que ce processus est fortement réduit en présence de fortes concentrations en COD (AWROT *et al.*, 1997).

La capacité d'adsorption élevée du Hg et la stabilité de ses liaisons avec le carbone font qu'il est essentiellement transporté sous forme particulaire dès que la teneur en matières en suspension est élevée. Les pics de concentration en mercure apparaissent en effet dans les eaux les plus riches en carbone organique particulaire et colloïdal. Il est donc indispensable de connaître la concentration du carbone organique dans la fraction colloïdale à laquelle le mercure est associé. Des études récentes (KÜCHLER *et al.*, 1994 ; PATEL *et al.*, 1999) ont montré que 30 à 50 % du COD dans le Rio Negro est sous forme colloïdale dont la capacité complexante favorise l'adsorption de nombreux métaux traces et ainsi leur transport dans l'hydrosystème. Des mesures préliminaires réalisées dans l'estuaire de la Loire (COQUERY, 1994) sur la proportion de Hg associée aux colloïdes (compris entre 0,05 μm et 0,8 μm) ont montré que, au maximum de turbidité, 46 % du Hg dissous est associé à la fraction colloïdale. La fraction colloïdale du carbone organique analysée dans le Rio Negro est essentiellement composée d'acides humiques et fulviques (KÜCHLER *et al.*, 1994), auxquels s'associent préférentiellement les ions métalliques. Ces résultats sont en concordance avec ceux obtenus par LEENHERR *et al.* (1980), qui avaient observé que les acides humiques et fulviques représentaient 50 % du COD dans le Rio Negro.

Pour comprendre l'origine de ces très fortes concentrations en mercure dissous et surtout particulaire dans le Rio Negro, il faut s'intéresser au processus de ruissellement des eaux pluviales à l'intérieur du bassin versant associé au processus de spéciation du mercure dans les sols forestiers. En effet, dans les sols ferrallitiques, le comportement et l'accumulation du mercure sont liés à la pénétration des substances humiques complexantes et mobiles puis à leur adsorption sur les surfaces d'oxyhydroxydes de fer en profondeur (ROULET *et*

Lucotte, 1995). D'importantes teneurs en mercure, de 100 à 250 ng/g, ont été mesurées dans des sols brésiliens, de type podzols et latosols, au niveau de l'horizon d'accumulation des oxydes de fer et d'aluminium (ROULET *et al.*, 1998).

L'enneigement des sols au cours d'une crue crée des conditions physico-chimiques favorables à la réduction d'une fraction des oxyhydroxydes de fer. La dissolution de ces oxyhydroxydes peut s'accompagner d'une désorption du mercure, probablement sous forme complexée, qui peut ainsi migrer vers la colonne d'eau. Cette hypothèse semble être confirmée par l'analyse du fer et de l'aluminium réalisée dans les eaux du Rio Negro par BENEDETTI *et al.* (1999) ; il apparaît que 80 à 90 % de ces éléments se trouvent sous forme colloïdale. Les fortes concentrations en fer analysées dans la fraction comprise entre 0,2 μm et 100 000 daltons¹ sont dues essentiellement à la présence d'oxyhydroxydes de Fe.

Les très fortes concentrations en acides humiques et fulviques analysées dans les eaux de surface du Rio Negro attestent un apport en matière organique d'origine allochtone très important. Le mercure apporté par le lessivage des sols peut alors coaguler avec les substances humiques colloïdales dans les eaux de surface du Negro, ce qui expliquerait les fortes teneurs en mercure particulaire. De quelques études sur les sols du Rio Negro (ZIMMERMANN, 1998), de type podzologique, il ressort que ces sols constituent de véritables réservoirs de mercure et que leur lessivage peut conduire à une contamination des eaux de surface, même dans des bassins versants non affectés par des activités d'orpaillage.

Pour conclure, dans les différents types d'eaux du bassin amazonien, un certain nombre de phénomènes méritent d'être soulignés :

- le Hg émis par les opérations d'exploitation aurifère dans les têtes de bassin ne contamine pas directement les grandes rivières exploitées ; en revanche, une contamination, d'origine naturelle et anthropique, peut être observée plus en aval ;
- la contamination de ces sous-bassins exploités pour leur or alluvial tient plus à la remise en suspension de milliers de tonnes de sédiments dans ces rivières au cours des opérations minières que du relargage du Hg lui-même ;
- le Hg est essentiellement relargué dans l'hydrosystème au cours des crues ;

[1 1 dalton = 1 g/mol (unité de poids moléculaire).

■ la forte capacité d'adsorption du Hg sur les particules fines, et particulièrement sur les oxyhydroxydes associés aux argiles, ainsi que la stabilité de ses liaisons avec le carbone organique font qu'il est majoritairement transporté sous forme particulaire dans les eaux de surface.

SPÉCIATION, TRANSPORT ET SÉDIMENTATION DU MERCURE DANS LES RIVIÈRES

SPÉCIATION ET TRANSPORT DU MERCURE

La répartition des différentes formes chimiques du mercure dans la colonne d'eau, ou spéciation, est largement influencée par les spécificités géochimiques des différents types d'eaux (voir ci-dessus) en raison de l'affinité de cet élément pour la matière organique et les oxyhydroxydes de fer, d'aluminium et de manganèse particulièrement.

En Amazonie centrale, dans les rivières d'eaux claires (ROULET *et al.*, 1998, soumis) et d'eaux noires (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 1999 b), la matière organique colloïdale joue un rôle prépondérant dans le transport du fer, de l'aluminium et d'autres métaux dont le mercure.

Dans les eaux noires, l'acidité du pH a pour effet de limiter la fixation du mercure sur la phase solide (SAGG *et al.*, 1992) ; d'après les résultats obtenus pour le Rio Negro (MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 1999 b), il apparaît que le carbone organique joue un rôle prépondérant dans ce processus. L'affinité de la matière organique pour les métaux et en particulier pour le mercure est due à sa capacité complexante avec le Hg(II). Sous leur forme dissoute, ces métaux, en présence de cations (Ca^{2+} et Mg^{2+}) et de substances humiques colloïdales, peuvent coaguler et donc en partie se retrouver dans la fraction particulaire (CHAUVET *et al.*, 1996 ; MAURICE-BOURGAIN *et al.*, 1999 b).

Dans les eaux claires, la spéciation du mercure semble plus liée au contenu des particules en fer et en aluminium qu'à leur richesse en matière organique (ROULET *et al.*, 1998 ; ROULET *et al.*, à paraître). Ce comportement s'explique par un modèle simple de complexation de surface du Hg avec la fraction minérale particulaire, essentiellement sur les oxyhydroxydes de fer et d'aluminium (ROULET *et al.*, à paraître) mais aussi de manganèse (QUÉMERAIS *et*

al., 1998). En effet, ces oxyhydroxydes présentent une grande surface d'agglomération (*binding surface*) et une grande affinité pour de nombreux métaux traces, ce qui explique la corrélation de leur concentration avec celle du mercure. Un modèle de sorption du mercure sur les oxyhydroxydes de fer et de manganèse a même été avancé (QUÉMERAIS *et al.*, 1998).

Dans les rivières d'eaux blanches, le mercure semble préférentiellement associé à la fraction fine des matières en suspension apportées en grande quantité, principalement en saison des pluies. Cet élément se trouve donc majoritairement sous forme particulaire. La fraction fine est en effet généralement constituée d'argiles auxquelles sont associés les oxyhydroxydes de fer et d'aluminium.

Ces observations permettent d'affirmer que, dans les zones de production et de transfert des hydrosystèmes, le mercure est majoritairement transporté sous forme particulaire dans les eaux de surface.

SÉDIMENTATION DU MERCURE

Dans l'hydrosystème fluvial, plus à l'aval des zones de production et de transfert, pour lesquelles nous venons de décrire les différents processus à l'origine des apports et du transport de mercure aux rivières, se forme une zone de stockage, constituée de larges plaines alluviales inondables (SCHUMM, 1977). Elles sont constituées par l'accumulation de sédiments transportés puis déposés par le cours d'eau. Ultérieurement, ces sédiments peuvent être repris par l'érosion et entraînés à nouveau par le fleuve. Les trajectoires de ces flux bidirectionnels ne se limitent pas à la dimension transversale, sur le plan horizontal de la surface de la plaine alluviale, mais concernent aussi la dimension verticale dans la mesure où les eaux peuvent s'infiltrer et circuler à travers les alluvions. Des événements brefs et aléatoires, tels que certaines crues, influent aussi bien sur la structure physique de l'hydrosystème que sur les écosystèmes associés. La qualité de l'eau peut également se modifier lors du mélange transversal des eaux fluviales et des eaux de la plaine alluviale, par précipitation de métaux lourds comme le mercure ou au contraire par relargage à partir des sédiments.

On peut distinguer, dans les zones de stockage du bassin amazonien, deux systèmes naturels dans lesquels la réduction des vitesses et l'élargissement du lit favorisent le dépôt des particules transportées par les rivières :

- les lacs d'embouchure, ou *rias*, formés en amont de la confluence des grandes rivières d'eaux claires (Tapajós et Xingu) avec l'Amazone (effet longitudinal) ;

- les plaines d'inondation, ou *várzeas*, des rivières d'eaux noires (Negro) ou d'eaux blanches telles que le Madeira et ses tributaires et l'Amazone (effet transversal).

Les lacs d'embouchure

Les *rias*, formés à leur embouchure avec l'Amazone, sont caractérisés par des largeurs plus importantes et des vitesses plus lentes que celles de la rivière en amont, favorisant ainsi la sédimentation des particules transportées (Stout, 1975). Dans la partie aval du Rio Tapajós, cette zone de sédimentation atteint une centaine de kilomètres de longueur et de 8 à 12 km de largeur. La qualité des matières en suspension varie du *rio* au *ria*, en passant d'un matériel détritique terrigène à un matériel autochtone essentiellement planctonique (Roulet *et al.*, 1998).

Le mercure étant essentiellement transporté adsorbé à la fraction fine des particules, une chute des concentrations en mercure a été observée dans le *ria*, liée à la sédimentation d'une partie de la charge particulaire (Roulet *et al.*, 1998). En saison sèche, ces mêmes auteurs ont constaté, dans les lacs d'inondation de faible profondeur, une augmentation des teneurs en mercure particulaire résultant de la remise en suspension des sédiments de fond.

Les plaines d'inondation

Les plaines d'inondation sont particulièrement nombreuses dans le bassin de l'Amazone, mais malheureusement encore très peu étudiées. Leur caractéristique majeure est la dynamique hydrologique engendrée par la variation du niveau des eaux du fleuve. En termes de bilans hydrologique et sédimentaire, les zones d'inondation remplissent deux fonctions : une fonction de stockage temporaire voire définitif des éléments dissous et du matériel particulaire, avec une variation du temps de stockage comprise entre quelques mois (eau et substances dissoutes) et quelques centaines d'années (sédiments), et une fonction de relargage des éléments dissous et des particules de la plaine vers le fleuve, lors des grandes inondations.

En ce qui concerne l'Amazone, les *várzeas* peuvent d'une part jouer un rôle de filtre sédimentaire, d'autre part favoriser la spéciation de métaux traces par

de nouvelles conditions physico-chimiques, et donc le dépôt ou au contraire le relargage de nouvelles espèces chimiques dans le cours de l'Amazone en sortie. Le volume d'eau stocké dans les plaines alluviales en amont d'Óbidos représenterait jusqu'à 20 % de l'écoulement total (Richey *et al.*, 1991).

Du point de vue géochimique, deux types de *várzeas* sont présents en Amazonie centrale : celles aux eaux blanches, riches en matériel dissous et en suspension, avec un pH proche de la neutralité, et celles aux eaux noires, pauvres en matériel particulaire et à pH acide, et contenant de fortes concentrations d'acides humiques et fulviques. Alors que les cours d'eau amazoniens sont considérés comme hétérotrophes, les *várzeas* présentent une production autotrophe considérable, ce qui aura une incidence sur la forme chimique et le bilan des espèces dissoutes, notamment pour les éléments qui présentent des formes méthylées (As, Pb, Se, Hg...). Le fonctionnement trophique des *várzeas* dépend des caractéristiques locales comme la morphologie, les précipitations, la biogéochimie du système, ainsi que des apports en nutriments. De plus, l'alternance, sur un cycle annuel, d'une période d'eaux noires et d'une période d'eaux blanches favorise les réactions d'oxydoréduction et les échanges entre phases dissoute et particulaire.

Une étude concernant les variations saisonnières des concentrations à Óbidos a montré que, pour des éléments tels que le fer, le manganèse ou l'arsenic, les maxima de concentrations dissoutes présentaient un décalage de plusieurs semaines par rapport au maximum hydrologique (Seyler *et al.*, 1998). Ce déphasage a été interprété comme étant dû à l'influence de l'arrivée à Óbidos des eaux ayant séjourné dans les *várzeas* où des conditions biogéochimiques différentes ont permis une remobilisation des éléments associés à la phase particulaire. De plus, une grande partie de la matière organique « réactive » semble être produite et introduite dans le fleuve par les zones humides.

Dans les bassins versants où les activités humaines sur les surfaces terrestres sont intenses, les sédiments récents déposés au fond des lacs des plaines d'inondation présentent une augmentation des concentrations en Hg par rapport aux sédiments plus anciens. Cette augmentation est le résultat d'une sédimentation accrue de particules fines riches en oxydes et en Hg, provenant des sols des bassins versants.

Par ailleurs, les *várzeas*, nombreuses dans le bassin amazonien, offrent des conditions physico-chimiques propices à la méthylation du mercure et donc à

la contamination des écosystèmes dans des environnements aquatiques non affectés directement par les activités d'orpaillage (ROULET *et al.*, 2000). C'est en effet sous sa forme méthylée que le mercure devient un agent extrêmement toxique dans la chaîne alimentaire, et donc responsable de l'intoxication de communautés installées sur les berges de rivières contaminées, et fortes consommatrices de poisson (MALM *et al.*, 1990 ; LEBEL *et al.*, 1999 ; MAURICE-BOURGEOIS *et al.*, 2000 a).

LES ZONES DE MÉLANGE

Mélange des eaux noires et des eaux blanches

D'après les premiers résultats obtenus pour l'Amazonie en septembre 1997, dans la zone de mélange des eaux noires et des eaux blanches (MAURICE-BOURGEOIS *et al.*, 1999 b), les eaux des rivières Negro et Solimões demandent entre 25 et 100 km pour se mélanger, selon les bilans isotopiques et les résultats hydrologiques. En phase de décrue, le Rio Solimões, avec un débit 2,5 fois supérieur à celui du Rio Negro, a creusé un canal près de deux fois plus profond que celui creusé par le Rio Negro, ce qui limite physiquement le mélange des eaux.

En ce qui concerne l'évolution des concentrations en mercure, on peut observer une nette diminution au point le plus proche de la confluence puisque les concentrations en mercure total chutent de 62 % en rive droite par rapport à celles du Rio Solimões et de 52 % en rive gauche par rapport à celles du Rio Negro. Un calcul simple de dilution permet d'avancer que, si le mercure était conservatif à l'aval de cette confluence, la concentration en mercure total de l'Amazonie serait de 12,25 ng/l ; or les concentrations mesurées sont de 4 ng/l en rive droite et de 8,7 ng/l en rive gauche. Cette « perte » nette de mercure est attribuable à la chute brusque du mercure sous forme particulaire. En rive droite, la concentration de mercure particulaire est très faible alors qu'elle atteint 400 ng/g en rive gauche, soit cinq fois moins que dans les eaux de surface du Rio Negro. En termes de flux de Hg, les apports du Rio Negro et du Rio Solimões sont respectivement de 39 et 55 kg par jour alors que, 60 km à l'aval de cette confluence, ce flux n'est plus que de 73 kg, soit une perte de 5 kg par jour en mercure dissous et de 15 kg par jour en mercure particulaire.

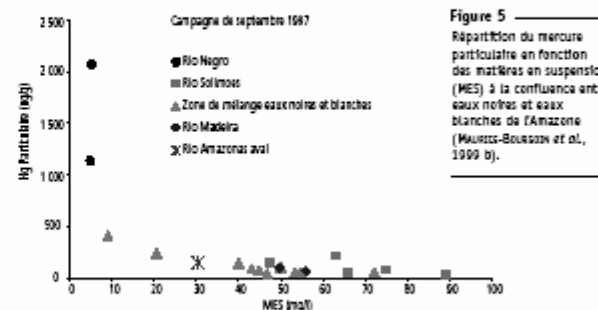
Dans les eaux noires du Rio Negro, le mercure, comme d'autres métaux, est principalement complexé à la fraction colloïdale du carbone organique ; la réaction de cette fraction à la confluence des eaux noires et des eaux blanches, à la suite du brusque changement des conditions physico-chimiques de l'eau, est à relier avec le comportement du Hg. Cette perte de mercure est imputable à la perte de carbone organique également observée à l'aval de la confluence. Le mercure a très probablement floculé et sédimenté dans la zone de mélange ; la sédimentation étant favorisée par une diminution importante des débits au cours de la campagne (perte journalière de 1 515 m³/s).

Le mercure particulaire semble donc étroitement lié au carbone organique et non aux suspensions minérales car, dans la zone de mélange, l'évolution du Hg particulaire est inversement proportionnelle à celle des matières en suspension (fig. 5).

En l'absence d'apports anthropiques et en dehors des situations de crue, dans les zones de mélange, le comportement du mercure est principalement conditionné par le carbone organique colloïdal et particulaire (fig. 6).

Mélange des eaux blanches et des eaux claires

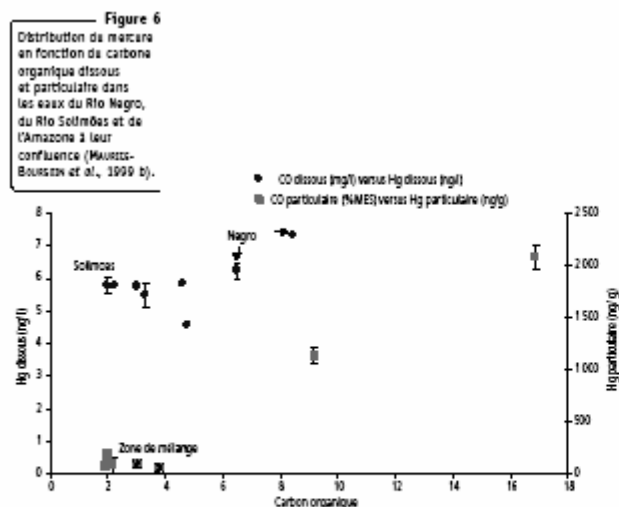
D'après l'étude réalisée par ROULET *et al.* (1998) à la confluence du Tapajós avec l'Amazonie, il apparaît que les eaux claires sont à l'origine d'une dilution



de l'importante charge sédimentaire apportée par l'Amazonie, réduisant ainsi les concentrations en mercure particulaire relativement élevées mesurées dans le fleuve.

Mélange des eaux noires et des eaux claires

Très peu de documentation est publiée sur ce cas spécifique. WALKER (1992) a observé, comme dans la zone de mélange entre eaux noires et eaux blanches, qu'à l'interface des eaux noires et des eaux claires il pouvait y avoir floculation des argiles en suspension et par conséquent enrichissement des sédiments. On peut donc penser que le mercure, essentiellement transporté dans les eaux noires sous forme complexée à la matière organique colloïdale principalement, peut floculer et sédimenter dans la zone de mélange avec les eaux claires.



L'AMPLIFICATION DE LA MOBILISATION DU MERCURE DU SOL PAR LES ACTIVITÉS ANTHROPIQUES

Selon le type de rivière, dans les eaux claires et les eaux blanches plus spécifiquement, les plus fortes concentrations de Hg dans l'eau sont observées dans les bassins versants où une perturbation d'origine anthropique augmente l'érosion et le transport des particules en suspension dans l'eau. La fragilité des sols amazoniens accentue les effets des diverses activités d'exploitation des surfaces terrestres. L'une de ces activités humaines majeures, à l'origine d'une accélération du processus d'érosion, est le déboisement.

LE DÉBOISEMENT

En Amazonie, le taux de déboisement est l'un des plus élevés du monde tropical. Il s'agit en effet du plus grand massif forestier tropical de la planète, qui s'étend sur environ 5,8 millions de kilomètres carrés, dont plus de 60 % se trouvent en territoire brésilien. Le déboisement est largement utilisé par les grands éleveurs (*fazendeiros*), les exploitants de bois, les orpailleurs et les petits agriculteurs qui pratiquent généralement la culture sur brûlis après déboisement. On estime que, en 1998, environ 15 % de la forêt amazonienne brésilienne ont été défrichés (Lena, 1999). En août 1996, les superficies défrichées atteignaient 517 069 km² (fig. 7).

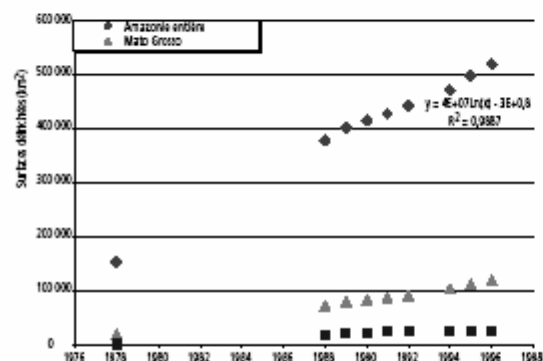
Si les actions de déforestation ont une influence négligeable sur l'augmentation des concentrations de mercure atmosphérique dans le bassin amazonien (LACERDA, 1995 ; ROULET *et al.*, 1999), en revanche, leur influence sur les processus de lessivage des sols est importante et peut contribuer à l'augmentation de ces concentrations dans les eaux de surface de sous-bassins versants amazoniens non affectés par les activités d'orpaillage.

L'impact des activités anthropiques se manifeste par de plus fortes concentrations de Hg dans l'eau ; ces dernières sont proportionnelles aux concentrations de matériel érodé et transporté sous forme de particules en suspension dans les rivières.

LE CAS PARTICULIER DE L'ORPAILLAGE

En aval des centres d'orpaillage, le Hg présent dans l'eau provient essentiellement des particules en suspension issues de l'érosion intense des sols et

Figure 7
Surfaces défrichées
par année en Amazonie
brésilienne (source :
INPE-MCT/Idema-MMA,
1998).



des sédiments du bassin versant plutôt que du Hg directement relargué par les activités d'orpaillage. Au cours de l'extraction de l'or alluvial, les mineurs détournent d'énormes quantités d'eau pour séparer la fraction fine de la fraction grossière. Ainsi, chaque jour, ils modifient les lits des cours d'eau, remettent en suspension des tonnes de sédiments, en particulier dans les petits bassins. Des études réalisées dans un tributaire du Tapajós, caractérisé par d'importantes activités d'orpaillage, montrent que le mercure associé aux particules dépasse de 200 à 600 fois les concentrations analysées dans la fraction dissoute dans des zones exemptes de toute action anthropique (TELNER *et al.*, 1999). Nos résultats, obtenus dans de petites rivières andines en Bolivie, situées au pied des glaciers mais utilisées pour le lavage des particules extraites de nombreuses mines aux alentours, montrent des teneurs en mercure particulaire atteignant des valeurs record – jusqu'à 150 (g/g, soit 1 000 fois

plus que la normale – et des concentrations en mercure total comprises entre 1 800 et 3 500 ng/L. Ces ruisseaux ont de faibles débits et leurs particules proviennent pour l'essentiel des activités d'orpaillage.

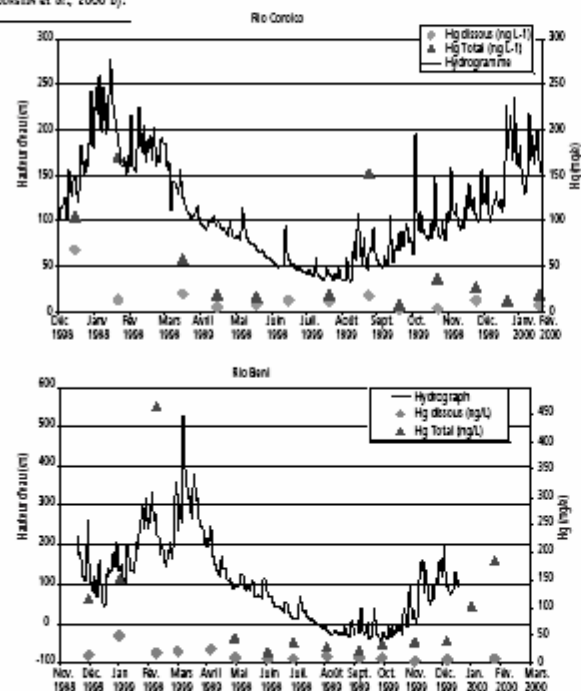
AUTRES ACTIONS ANTHROPIQUES FAVORISANT L'ÉROSION : CONSÉQUENCES SUR LE RELARGAGE DU MERCURE DANS LES RIVIÈRES

Pour mesurer l'influence de l'érosion dans le relargage du Hg dans les rivières, un suivi mensuel des matières en suspension, des éléments majeurs et du mercure a été réalisé par une équipe de l'IRD (MAURICE-BOURGON *et al.*, 2000 b) dans deux tributaires andins du Rio Madeira : le Rio Coroico, une rivière andine d'eaux claires à l'origine, et le Rio Beni à sa formation, dans la zone de transition entre le piémont andin et la plaine amazonienne. Le bassin du Rio Coroico est perturbé par des actions anthropiques majeures : la construction d'une importante route de montagne et la pratique, de plus en plus répandue, de la culture sur brûlis sur les flancs andins. Dans ces deux rivières, on observe clairement un contrôle hydrologique dans la variation saisonnière des concentrations en mercure dissous et total (fig. 8). On enregistre les maximums de Hg dissous au cours des premières crues alors que les maximums de Hg total et particulaire coïncident avec le pic de crue. Ces pics de concentration en Hg dissous au cours de l'amorce de la phase de montée de crue peuvent correspondre au phénomène de « chasse » par l'onde de crue des eaux stockées en dehors du réseau de drainage dans les sols, nappes perchées ou lâsses (écoulement de subsurface). Au maximum de la crue, les concentrations en Hg total mesurées dans le Rio Coroico et le Rio Beni sont respectivement huit à vingt fois supérieures à celles mesurées en saison sèche, avec des valeurs de plus 100 ng/L.

Les particules arrachées aux massifs andins au cours des crues tendent à s'appauvrir en Hg avec l'augmentation de la charge turbide, et ce par dilution (fig. 9), même si, au cours de la crue, les concentrations en Hg total et particulaire (en ng/L) augmentent avec les matières en suspension.

Il apparaît clairement que le facteur principal de contrôle des concentrations en Hg dans les tributaires andins de l'Amazonie est le processus d'érosion, favorisé naturellement par de très fortes pentes, et accéléré par certaines activités humaines telles que le déboisement avant culture, l'exploitation minière

Figure 8
Variations temporelles
des concentrations en
mercure dissous et total
dans un tributaire d'eaux
claires (Rio Corolco)
et d'eaux blanches (Rio
Bani) du Rio Madeira,
Bohvia (d'après Maurício-
Bousson et al., 2000 b).



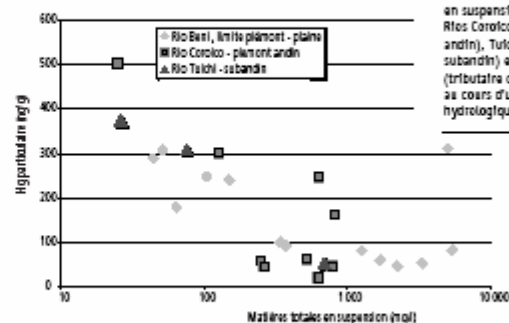
ou la construction de routes. En conséquence, les concentrations de Hg observées dans les milieux aquatiques peuvent autant être le résultat de processus géochimiques naturels, essentiellement liés à la podzolisation et à l'érosion des sols, que de perturbations anthropiques accélérant ces processus. L'érosion des sols est en effet responsable d'un important relargage de Hg vers les milieux aquatiques ; cet élément étant essentiellement adsorbé sur les particules en suspension et naturellement accumulé dans les sols amazoniens.

CONCLUSION

Un des processus majeurs à l'origine des concentrations non négligeables de mercure mesurées dans les eaux de surface du bassin amazonien est l'érosion des sols.

Le mercure est essentiellement relargué dans l'hydrosystème au cours des crues et il est préférentiellement adsorbé et donc transporté sur la fraction fine des particules en suspension. L'influence des actions de déforestation sur les processus de lessivage des sols est primordiale et contribue à l'augmentation des concentrations de mercure dans les eaux de surface de sous-bassins versants amazoniens non affectés par les activités d'orpaillage.

Figure 9
Distribution du Hg total
en fonction des matières
en suspension dans les
Rios Corolco (tributaire
andín), Tuichi (tributaire
subandín) et Bani
(tributaire du Madeira)
au cours d'une année
hydrologique (1999-2000).



Il apparaît que le mercure émis par les opérations d'exploitation aurifère dans les têtes de bassin ne contamine pas directement les grandes rivières concernées ; en revanche, cette contamination d'origine naturelle et anthropique est perceptible plus en aval. La contamination de ces sous-bassins exploités pour leur or alluvial tient plus à la remise en suspension de milliers de tonnes de sédiments dans les rivières au cours des opérations minières qu'au relargage du Hg lui-même.

La concentration et la distribution dans la colonne d'eau du mercure entre les phases dissoute et particulaire sont largement influencées par les caractéristiques géochimiques de chaque type d'eaux (noires, blanches ou claires) et par la nature de ses liaisons avec la matière organique et les oxyhydroxydes de fer, d'aluminium et de manganèse principalement.

Les zones d'inondation ou *várzea*, nombreuses dans le bassin amazonien, présentent des conditions physico-chimiques propices à la méthylation du mercure et donc à la contamination des écosystèmes aquatiques. C'est en effet sous sa forme méthylée que le mercure devient un agent extrêmement toxique dans la chaîne alimentaire.

[Références bibliographiques]

- AKAGI H., KINJO Y., BRANCHES F., MALM O., HARADA M., PFEFFER W.C., KATO H., 1994. Methylmercury pollution in Tapajós River basin, Amazon. *Environ. Sci.*, 3 (1) : 25-32.
- ALBERS W.W., REID M.R., KIM J.P., HUNTER K.A., 1990. Contamination-free sample collection and handling protocols for trace elements in natural freshwaters. *Austr. J. Mar. Freshwater Res.*, 41 : 713-720.
- AMOROS C., PETS G.E., 1993. *Hydro-systèmes fluviaux*. Paris, Masson, 300 p.
- AMYOT M., MIERLE G., LEAN D., McQUEEN D., 1997. Effect of solar radiation on the formation of dissolved gaseous mercury in temperate lakes. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 61 (5) : 975-987.
- BABY P., ROCHAT P., MASOLE G., HERAIL G., 1997. Neogene shortening contribution to crustal thickening in the back arc of the Central Andes. *Geology*, 25 (10) : 883-886.
- BARBOSA A.C., BOISCHIO A.A., EAST G.A., FERRARE I., GONCALVES A., SILVA P.R.M., DA CRUZ T.M.E., 1995. Mercury contamination in the Brazilian Amazon. *Environmental and occupational aspects. Water Air Soil Pollut.*, 80 : 109-121.
- BENEDICTI M., BOULEGUE J., MOUNIER S., BENAIM J.Y., FILIZOLA M., SEYLER P., 1999. « Metal

- ions transport by colloids in the Amazon basin ». In GUYOT J.-L. (éd.), 1999.
- BENES P., HAWLIK B., 1979. « Speciation of mercury in natural waters ». In NIJAGU J.O. (éd.) : *The biogeochemistry of mercury in the environment*, Amsterdam, Elsevier/North-Holland Biomedical Press : 175-202.
- BENJAMIN M.T., JOHNSON N.M., NAESER C.W., 1987. Recent rapid uplift in the Bolivian Andes : evidence from fission-track dating. *Geology*, 15 : 680-683.
- CHAUVEL A., WALKER J., LUCAS Y., 1996. Sedimentation and pedogenesis in a central Amazonian blackwater basin. *Biogeochemistry*, 33 : 77-95.
- COQUERY M., 1994. *Biogéochimie du mercure en milieu estuarien et côtier*. Thèse doct., univ. Paris-VI, 212 p.
- COSSA D., SANDUAN J., CLOUD J., STOCKWELL P.B., CORNS W., 1995. Automated technique for mercury determination at sub-nanogram per litre levels in natural waters. *J. Anal. At. Spectrom.*, 10 : 287-291.
- COSSA D., COQUERY M., GODEL C., MARTIN J.-M., 1996. « Mercury fluxes at the ocean margins ». In BAYENS W. et al. (éd.) : *Global and regional mercury cycles : sources, fluxes and mass balances*, Dordrecht, Kluwer Academic Publishers : 229-247.
- COURAU P., 1983. « Dosage du mercure minéral dissous ». In AMINOT A., CHAUSSEPIED M. (éd.) : *Manuel des analyses chimiques en milieu marin*, Ifremer (ex-CNEXO) : 227-241.
- DE BREM P., MAURICE-BOURGOIN L., 1997. Bolivie : les risques du mercure. *Eureka*, 20 : 40-45.
- DEWALLE D.R., SWESTOCK B.R., SHARPE W.E., 1988. Three component tracer model for stormflow on a small Appalachian forested catchment. *J. Hydrol.*, 104 : 301-310.
- DUNNE T., 1978. « Field studies of hillslope flow processes ». In KIRBY M.J. (éd.) : *Hillslope hydrology*, Chichester, John Wiley and Sons.
- DUNNE T., MERTES L.A.K., MEADE R.H., RICHEY J.E., FORSBERG B.R., 1998. Exchanges of sediment transport between the floodplain and channel of the Amazon river in Brazil. *Geol. Soc. Am. Bull.*, 110 (4) : 450-467.
- EYROLLE F., BENEDETTI M., BENAIM J.Y., FEVRIER D., 1996. The distribution of colloidal and dissolved organic carbon, major elements and trace elements in small tropical catchments. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 60 : 3643-3656.
- EYROLLE F., FEVRIER D., BENAIM J.Y., 1993. Etude par DPASV de l'aptitude de la matière organique colloïdale à fixer et transporter les métaux : exemples de bassins versants en zone tropicale. *Environ. Technol.*, 14 : 707-717.
- FADINI P.S., JARDIM W.F., 1999. « Levels of mercury in Negro river basin in Amazon, Brazil ». In : Vth Int. Conf. on Mercury as a global pollutant, May 23-28 1999, Rio de Janeiro, Brazil.
- FITZGERALD W., 1995. Is mercury increasing in the atmosphere ? The need for an atmospheric mercury network (AMNET). *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 245-254.
- GUYOT J.-L., 1993. *Hydrogéochimie des fleuves de l'Amazonie bolivienne*. Thèse doct., Orstom, 261 p.
- GUYOT J.-L. (éd.), 1999. *Manaus 99. Hydrological and geochemical processes in large-scale river basins. Manaus, HIBAM Project (CD-Rom)*.

- GUYOT J.-L., JOUANNEAU J.-M., QUINTANELLA J., WASSON J.G., 1993. Les flux de matières dissoutes et particulaires exportés des Andes par le Rio Beni (Amazonie bolivienne) en période de crue. *Geodinamica Acta*, 6 (4) : 233-241.
- GUYOT J.-L., CALLEDE J., COCHONNEAU G., FILIZOLA M., GUIMARÃES V., KOSUTH P., MOLINIER M., DE OLIVEIRA E., SEYLER P., 1999. « Caractéristiques hydrologiques du bassin amazonien ». In GUYOT J.-L. (éd.).
- HENTSCH T., PRIESTER M., 1991. *Contaminación por mercurio en países en vía de desarrollo por amalgamación de oro de la pequeña minería y técnicas alternativas para el procesamiento*. Königstein, Projekt-Consult.
- INPE-MCT/IBAMA-MMA, 1998. *Desflorestamento 1995-1997, Brasília*.
- JUNK W.J., BAYLEY P.B., SPARKS R.E., 1989. « The flood pulse concept in river floodplain systems ». In DODGE D.P. (éd.) : *International Large River Symposium, Can. Spec. Publ. Fish. Aquat. Sci.*, 106 : 110-127.
- KOCHLER I.L., MIERKELEY N., FORSBERG B.R., 1994. Molecular mass distributions of dissolved organic carbon and associated metals in waters from Rio Negro and Rio Solimões. *Sci. Total Environ.*, 156 : 207-216.
- LACERDA D.L., 1995. Amazon mercury emissions. *Nature*, 374 : 20-21.
- LACERDA D.L., PFEIFFER W.C., TEDEIRA OTT A., DA SILVA E.G., 1989. Mercury contamination in the Madeira River, Amazon. Hg inputs to the environment. *Biotropica*, 21 (1) : 91-93.
- LANCASTON W.J., 1982. The distribution of mercury in British estuarine sediments and its availability to deposit-feeding bivalves. *J. Mar. Biol. Assoc. U.K.*, 62 : 667-684.
- LEBEL J., ROULET M., MERGLER D., LUCOTTE M., LARIBE F., 1999. Fish diet and mercury exposure in a riparian Amazonian population. *Water Air Soil Pollut.*, 97 : 31-44.
- LEENHEER J.A., SANTOS U.M., 1980. Considerações sobre os processos de sedimentação na água preta ácida do rio Negro (Amazônia Central). *Acta Amazonica*, 10 (2) : 343-355.
- LENA P., 1999. « La forêt amazonienne : un enjeu politique et social contemporain ». In : *La forêt-monde en question*, Paris, Orstom, coll. Autrepair : 97-120.
- LIDEMA, 1993. *Estudio de impacto ambiental por la explotación de oro en la región de Nueva Esperanza, Araras, del departamento de Pando*. La Paz, Liga de Defensa del Medio Ambiente, 175 p.
- LUCAS Y., NAHON D., CORNU S., EYROLLE F., 1996. Genèse et fonctionnement des sols en milieu équatorial. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 322, sér. IIa : 1-16.
- MALM O., PFEIFFER W.C., SOUZA C.M.M., REUTHER R., 1990. Mercury pollution due to gold mining in the Madeira River Basin, Brazil. *Ambio*, 19 (1) : 11-15.
- MASON R.P., FITZGERALD W.F., MOREL F.F.M., 1994. The biogeochemical cycling of elemental mercury : Anthropogenic influences. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58 (15) : 3191-3198.
- MASON R.P., MOREL F.F.M., HEMOND H.F., 1995. The role of microorganisms in elemental formation in natural waters. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 165-178.

- MAURICE-BOURGOIN L., GUYOT J.-L., SEYLER P., COURAU P., FILIZOLA M., QUINTANELLA J., 1997. « Répartition des teneurs en mercure dans les eaux de surface du bassin du Madeira, des Andes à l'Amazonie ». In WEBB B. (éd.) : *Freshwater contamination*, Wallingford, IAHS Press : 85-92.
- MAURICE-BOURGOIN L., QUIROGA I., GUYOT J.-L., MALM O., 1999 a. Mercury pollution in the upper Beni River basin, Bolivia. *Ambio*, 28 (4) : 302-306.
- MAURICE-BOURGOIN L., QUENEAIS B., GUYOT J.-L., SEYLER P., 1999 b. « Transport and behaviour of total mercury in the Amazon River at the confluence of black and white waters ». In GUYOT J.-L. (éd.).
- MAURICE-BOURGOIN L., QUIROGA I., CHONCHEROS J., COURAU P., 2000 a. Mercury distribution in waters and fishes of the Upper Madeira rivers and mercury exposure in riparian Amazonian populations. *Sci. Total Environ.*, 260 : 73-86.
- MAURICE-BOURGOIN L., FRAIZY P., ALANCA L., SEYLER P., GUYOT J.-L., 2000 b. « Hydrological control on the temporal variability of mercury in surface waters of the Upper Madeira basin, Bolivia ». In NRIAGU J. (éd.) : *25th International Conference on Heavy metals in the environment*, Ann Arbor, University of Michigan, School of Public Health, Contribution 1282 (CD-Rom).
- MEADE R.H., DUNNE T., RICHEY J.E., SANTOS U.M., SALATI E., 1985. Storage and remobilization of suspended sediment in the lower Amazon River of Brazil. *Science*, 228 : 488-490.
- MEILL M., 1997. « Mercury in lakes and rivers ». In SIGEL A., SIGEL H. (éd.) : *Metal ions in biological systems. Vol. 34. Mercury and its effects on environment and biology*, New York, Marcel Dekker : 21-51.
- MERTES L.A.K., DUNNE T., MARTINELLI L.A., 1996. Channel floodplain geomorphology along the Solimões-Amazon river, Brazil. *Geol. Soc. Am. Bull.*, 108 (9) : 1089-1107.
- MOLINIER M., GUYOT J.-L., CALLEDE J., GUIMARÃES V., OLIVEIRA E., FILIZOLA M., 1997. « Hydrologie du bassin amazonien ». In THIERY H. (éd.) : *Environnement et développement en Amazonie brésilienne*, Paris, Belin : 24-41.
- MOREIRA-TURCO P.F., SEYLER P., GUYOT J.-L., ETCHERRE H., 1999. « Characterisation of suspended particulate and dissolved adsorbed organic matter in Amazon River ». In GUYOT J.-L. (éd.).
- NRIAGU J.O., 1993. « Mercury pollution from silver mining in colonial South America ». In ABRÃO J.J., WASSERMAN J.C., SILVA-FELHO E.V. (éd.) : *Proceedings. Perspectives for environmental geochemistry in tropical countries*, Niterói, Brazil : 365-368.
- NRIAGU J.O., 1996. A history of global metal pollution. *Science*, 272 : 223-224.
- NRIAGU J.O., PFEIFFER W.C., MALM O., DE SOUZA C.M.M., MIERKELEY G., 1992. Mercury pollution in Brazil. *Nature*, 356 : 389.
- OLIVRY J.-C., BRICQUET J.-P., LARAQUE A., GUYOT J.-L., BOURGES J., ROCHE M.-A., 1995. « Flux liquides, dissous et particulaires de deux grands bassins intertropicaux : le Congo à Brazzaville et le Rio Madeira à Villabell ». In OLIVRY J.-C., BOULEGUE J. (éd.) : *Grands bassins fluviaux péritropicaux*, Paris, Orstom, coll. Colloques et séminaires : 345-355.
- PATEL N., MOUNIER S., GUYOT J.-L., BENAMOU C., BENAMOU J.-Y., 1999. Fluxes of dissolved

- and colloidal organic carbon along the Purus and Amazonas rivers (Brazil). *Sci. Total Environ.*, 229 : 53-64.
- PREIFFER W.C., LACERDA L.D., MALM O., SOUSA C.M.M., SILVEIRA E.G., BASTOS W.R., 1989. Mercury concentrations in inland waters of Rondônia, Amazon, Brazil. *Sci. Total Environ.*, 87-88 : 233-240.
- PREIFFER W.C., LACERDA L.D., MALM O., SOUSA C.M.M., SILVEIRA E.G., BASTOS W.R., 1991. Mercury in the Madeira river ecosystem, Rondônia, Brazil. *For. Ecol. Management*, 38 : 239-245.
- PREIFFER W.C., LACERDA L.D., SALOMONS W., MALM O., 1993. Environmental fate of mercury from gold-mining in the Brazilian Amazon. *Environ. Rev.*, 1 : 26-37.
- QUEMERALS B., COSSA D., RONDEAU B., PHAM T.T., FORTIN B., 1998. Mercury distribution in relation to iron and manganese in the waters of the St. Lawrence River. *Sci. Total Environ.*, 213 : 193-201.
- RAE J.E., ASTON S.R., 1982. The role of suspended solids in the estuarine geochemistry of mercury. *Water Res.*, 16 : 649-654.
- RICHY J.E., VICTORIA R.L., SALATI E., FORSBERG B.R., 1991. « The biogeochemistry of a major river system : the Amazon case study ». In DEGENS E.T., KEMPE S., RICHY J.E. (éd.) : *Biochemistry of major world rivers*, Chichester, SCOPE, John Wiley and Sons : 57-74.
- ROCHE M.A., FERNANDEZ C., ABASTO N., 1990. Mapa de precipitación anual de Bolivia, 1/5 000 000. La Paz, PHICAB.
- ROULET M., LUCOTTE M., 1995. Geochemistry of mercury in pristine and flooded ferrallitic soils of a dense tropical forest in French Guyana. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 1079-1088.
- ROULET M., LUCOTTE M., FARELLA N., SERIQUE G., COELHO H., SOUSA PASSOS C.J., DE JESUS DA SILVA E., SCAVONE DE ANDRADE P., 1996. « Relative importance of slash and burn agriculture on the presence of mercury in amazonian forest ecosystems ». In EICHENHAUS R., PETERSEN G., VON TUNPLING U. (éd.) : *Fourth International Conference on Mercury as a global pollutant (Hamburg, Germany, August 1996)*, Book of abstracts, Geestacht, GKSS : 95.
- ROULET M., LUCOTTE M., CANUEL R., RHEAULT I., TRAN S., DE FREITAS GOG Y.G., FARELLA N., SOUSA DO VALE R., SOUSA PASSOS C.J., DE JESUS DA SILVA E., MERGLER D., AMORIM M., 1998. Distribution and partition of total mercury in waters of the Tapajós river basin, Brazilian Amazon. *Sci. Total Environ.*, 231 : 203-211.
- ROULET M., LUCOTTE M., FARELLA N., SERIQUE G., COELHO H., SOUSA PASSOS C.J., DE JESUS DA SILVA E., SCAVONE DE ANDRADE P., MERGLER D., GUIMARÃES J.R.D., AMORIM M., 1999. Effects of recent human colonization on the presence of mercury in Amazonian ecosystems. *Water Air Soil Pollut.*, 112 : 297-313.
- ROULET M., LUCOTTE M., GUIMARÃES J.R.D., RHEAULT I., 2000. Methylmercury in water, seston, and epiphyton of an Amazonian river and its floodplain, Tapajós River, Brazil. *Sci. Total Environ.*
- ROULET M., LUCOTTE M., CANUEL R., FARELLA N., DE FREITAS GOG Y.G., PACHECO PELEJA J.R., GUIMARÃES J.R.D., MERGLER D., AMORIM M., à paraître. Spatio-temporal geochemistry of mercury in water of the Tapajós and Amazon rivers, Brazil. *Limnol. Oceanogr.*
- SALATI E., MARQUES J., 1984. « Climatology of the Amazon region ». In SIOLI H. (éd.) : *The Amazon. Limnology and landscape ecology of a mighty tropical river and its basin*, Dordrecht, W. Junk : 85-126.
- SCHUMM S.A., 1977. *The fluvial system*. New York, J. Wiley and Sons, 338 p.
- SEYLER P., GUYOT J.-L., ELBAZ-POULICHET F., FELIZOLA N., BOAVENTURA G., 1998. « Hydrological control on the temporal variability of trace element concentration in the Amazon river ». In DUPRE B. (éd.) : *Chemical and physical weathering*, Goldschmidt Conference, Toulouse, septembre 1998.
- SIGG L., STUMM W., BEHRA P., 1992. *Chimie des milieux aquatiques. Chimie des eaux naturelles et des interfaces dans l'environnement*. Paris, Masson, 301 p.
- SIOLI H., 1975. « Amazon tributaries and drainage basins ». In HASLER A.D. (éd.) : *Coupling of land and water systems*, New York, Springer-Verlag : 190-213.
- TELMEK K., COSTA M., ARAUJO E.S., ANGELICA R.S., MAURICE Y., 1999. « Mercury in the Tapajós river basin. The significance of suspended sediments from alluvial gold-mining, Pará, Brazilian Amazon ». In Guyot J.-L. (éd.).
- VANDAL G.M., FITZGERALD W.F., BOUTRON C.F., CANDELONE J.P., 1993. Variations in mercury deposition to Antarctica over the past 34,000 years. *Nature*, 362 : 621-623.
- VINSON D.S., BONZONCO J.C., LYONS W.B., LECHLER P., MILLER J., LACERDA L.D., 1997. « Gold-mining and mercury pollution in the Amazon river system, Brazil : Hg level in surface waters of the Madeira rivers from Porto Velho to the confluence with the Amazon river ». In : *American Geophysical Union, 1997 Fall meeting, EOS Transactions*, 78 (46) : F190.
- VEIGA M.M., MEECH J.A., OPATE W., 1994. Mercury pollution from deforestation. *Nature*, 368 : 816-817.
- WALKER I., 1992. The benthic litter habitat with its sediment load in the inundation forest of the Central Amazonian river Taruma Mirim. *Amazoniana* : 143-153.
- ZEIDEMANN V.K., 1998. *A geoquímica de mercúrio em solos da bacia do rio Negro e sua influência no ciclo regional do mercúrio*. Dissertação de Mestre em Ciências Biológicas, INPA-UIA, Manaus, 75 p.
- ZEIDEMANN V.K., FORSBERG B.R., ROULET M., LUCOTTE M., JARDIM W.F., 1999. « The geochemistry of mercury in soils of the Negro river basin (Brazilian Amazon) and its role in the regional mercury cycle ». In BARBOSA J.P., MELAMED R., VILLAS-BOAS R. (éd.) : *Proceedings of the Fifth International Conference on Mercury as a global pollutant (May 23-27 1999, Rio de Janeiro, Brazil)*, Book of abstracts, Rio de Janeiro, Centro de Tecnologia Mineral : 561.

Maurice-Bourgoin L., Aalto R. and Guyot J.L., 2002. Sediment-Associated Mercury Distribution within a Major Amazon Tributary: Century-Scale Contamination History and Importance of the flood plain accumulation, in “The structure, Function and management Implications of Fluvial Sedimentary systems” (Dyer F., Thoms M.C. and Olley J.M., Eds), *IAHS Publ.* N° 276, 161-168.

Sediment-associated mercury distribution within a major Amazon tributary: century-scale contamination history and importance of flood plain accumulation

LAURENCE MAURICE-BOURGOIN

*IRD, HyEAm Program, CP 7091 Lago Sul, CEP 71619-970, Brasília, DF, Brazil
e-mail: lm Maurice@umb.br*

ROLF AALTO

*Quaternary Research Center and Department of Earth and Space Sciences,
University of Washington, Seattle, Washington 98195-1310, USA*

JEAN LOUP GUYOT

*IRD-UMR LMTG, Université Paul Sabatier, 38 Rue des 36 Ponts, F-31000-Toulouse,
France*

Abstract The sources, transport and storage mechanics, and contamination history of mercury (Hg) in the Madeira River, an important tributary of the Amazon River, were investigated from the Hg concentration and relevant geochemistry of flood plain and river sediment of one of its major Andean tributaries, the Beni River. Sediments containing clays and Al and Fe oxyhydroxides may serve as the primary carrier for Hg and facilitate its transport and storage within the Beni River-flood plain system. We estimate an annual exchange of clay-affiliated Hg between the flood plain and the channel of 2.1 t, due to channel migration, and a net Hg deposition of 2.4 t year⁻¹, in the distal parts of the flood plain. Long-term records of sediment influx and efflux from the Beni foreland support this estimate of total Hg accumulation. Applying ²¹⁰Pb geochronology to flood plain cores, we find that the clay-normalized Hg concentration in sediment was constant between 1900 and 1965, and then shows an increase over the past 30 years. This trend might be explained by the recent colonization, by a new mining boom in South America and by increased deforestation of hillsides and the resulting erosion of Hg-contaminated soils.

Key words Amazon basin; Madeira tributary; mercury; sediment; flood plain; geochronology

INTRODUCTION

Mercury pollution of water and fish in the Amazon basin is a significant hazard for riparian populations, especially for people whose primary protein source is contaminated fish (Lebel *et al.*, 1999; Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000a; Roulet & Maury-Brachet, 2001). Hg has been implicated in the irreversible damage of nervous and immune systems (Lebel *et al.*, 1998). In the Bolivian Andes, at the headwaters of the Beni River, erosion of contaminated soils and weathering of mercury-bearing rocks during the rainy season can increase the water concentration of Hg by 50 fold (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000b). These soils may have become contaminated through

natural crustal degasification and dissolution of Hg, and also by centuries of extensive Hg use during both the colonial and post-colonial extraction of massive quantities of gold and silver (Nriagu *et al.*, 1992). More recently, a new gold-mining boom starting in the 1970s has introduced an estimated $0.25\text{--}0.5\text{ t year}^{-1}$ of Hg into the Beni River basin. We have estimated that in Bolivia (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000a), more than 330 t of mercury has been released into the environment since 1952. The mercury used can be released directly into the river itself or indirectly through the atmosphere by open-air burning of the amalgam (Malm *et al.*, 1990; Maurice-Bourgoin *et al.*, 1999). However, the major environmental impact of these mining activities is the deforestation of the exploited areas and the release of millions of tonnes of Hg-contaminated sediments and soils into affected rivers, rather than the direct release of Hg used during the last stages of gold extraction (Maurice-Bourgoin, 2001). Numerous studies have documented the distribution of Hg in water, fish, and people throughout the Amazon basin (Akagi *et al.*, 1995; Malm *et al.*, 1995; Barbosa *et al.*, 1997; Roulet *et al.*, 1999; Silva-Forsberg *et al.*, 1999; Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000a), but the important link between Hg and sediment transport had not been fully explored. To investigate the sources, transport and storage mechanics, and contamination history of Hg for this important tributary of the Amazon, we analysed the Hg concentration and relevant geochemistry of flood plain and river sediment.

STUDY AREA

The Bolivian Amazon basin represents the Andean headwaters of the Madeira River, one of the most important tributaries of the Amazon River. In Bolivia, its drainage basin is $0.9 \times 10^6\text{ km}^2$, with 25% in the Andes, 27% on the Brazilian shield and 48% in the plain. The Beni River, the largest sediment supplier of the three major tributaries of the Madeira River (Guyot, 1993), is the focus of our study. Andean tributaries of this river drain both semiarid areas of high altitude and areas of tropical humid forest of the sub-Andes. Heights above sea level range from 6400 m at the highest headwaters to 200 m at Rurrenabaque, in the piedmont at the upper limit of the flood plain, to 115 m at the Brazilian border. At the edge of the sub-Andes, the drainage area at Rurrenabaque is 67 500 km² and the mean annual discharge during the sampling period, 1998–1999, averaged $2300\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$. The Beni River collects numerous Andean tributaries, half of which are exploited for their alluvial gold since the 1960s (Fig. 1).

MATERIAL AND METHODS

In order to study the century-scale Hg contamination and to better understand the sources and the behaviour of Hg within a major Amazon tributary, a sampling survey was conducted along the entire Beni River in August–September, 1999. Water samples were collected using Teflon bottles and all procedures were performed using “ultra-clean” techniques (Nolting & De Jong, 1994; Gaudet *et al.*, 1995). Sediment cores were sampled 1.3 m deep into the flood plain at different locations along the Beni River (Fig. 1); they were frozen in the field and subsequently dried and processed in the laboratory. The total Hg (T-Hg) was determined by atomic fluorescence spectrometry

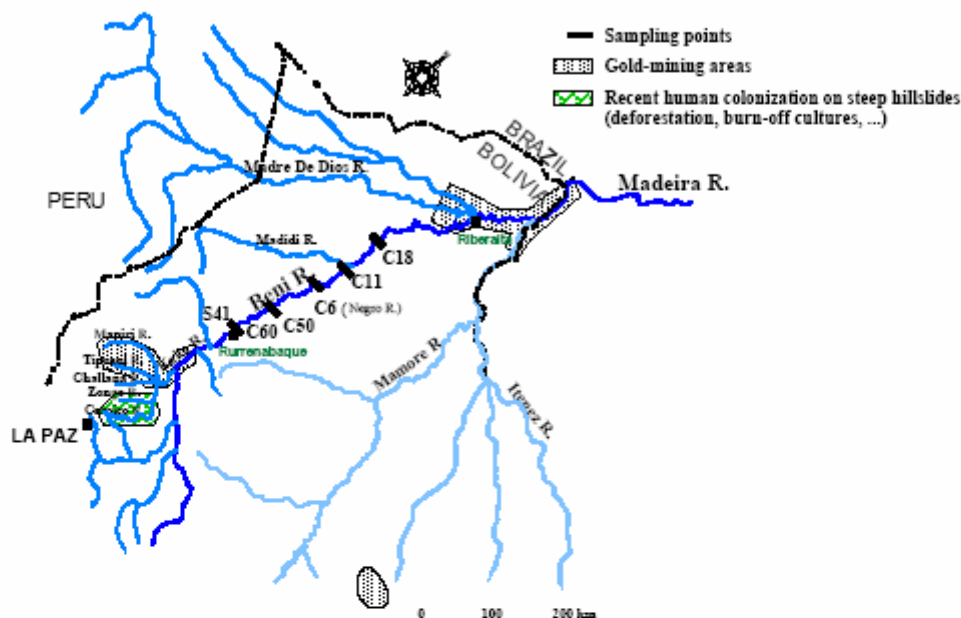


Fig. 1 Hydrological map of the Madeira tributaries, location of the sample sites and distribution of the recent anthropogenic disturbance (deforestation, mining, road construction).

after reduction with Sn(II); the detection limit was 2 ng g^{-1} . The accuracy and reproducibility of the method were calibrated by the analysis of a reference standard; the mean T-Hg concentration obtained was $92 \pm 4 \text{ ng g}^{-1} \text{ (dw)}$ for a recommended value of $92 \pm 9 \text{ ng g}^{-1} \text{ (dw)}$. The concentrations of T-Hg, organic carbon and nitrogen, iron (Fe_{cds}) and aluminium (Al_{cds}) substituted into oxy-hydroxides, as associated with the granulometry and ^{210}Pb activity within the same sediment cores, were used to characterize the main geochemical processes controlling the deposition of Hg within the flood plain.

A new model has been developed for ^{210}Pb geochronology on river flood plains, termed Constant Initial Reach Clay Activity and Unknown Sedimentation rate (CIRCAUS) and has been applied to more than one hundred locations throughout the Beni and Mamore systems (Aalto, 2002; Aalto & Nittrouer, submitted). The approach employs discrete down-core, clay-normalized measurements of ^{210}Pb activity and is coupled with a geomorphic model of the input concentration of ^{210}Pb in sediment during large floods. The numerical modelling approach is supplemented with an empirical determination of the supported ^{210}Pb activity, the meteoric input of ^{210}Pb , and the clay-normalized ^{210}Pb activity in fresh sediment for that reach of river. The sediment age is determined from the "decay" age of any activity plateaus (zones of uniform activity found in most cores), as well as independently calculated from the excess "meteoric cap" ^{210}Pb activity above the activity of the plateau.

RESULTS AND DISCUSSION

Efflux of sediments and associated mercury to the Beni flood plain

The T-Hg concentrations in the Beni River range from 19 ng l^{-1} during the dry season to 460 ng l^{-1} at peak flood stage. The Hg associated with the particles represents 59 and 98% of the T-Hg, respectively. In this Andean tributary, the importance of soil erosion during the rainy season in controlling the mercury concentrations of freshwater has been previously demonstrated (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2000b). For the 1999 water year, from surface water samples, we estimated a total suspended particulate matter (SPM) efflux at Rurrenabaque of $302 \times 10^6 \text{ t}$; 97% of this material was transported during the first four months of high water and about 40% is later deposited in the Amazonian flood plain (Maurice-Bourgoin *et al.*, 2001); these results concur with the

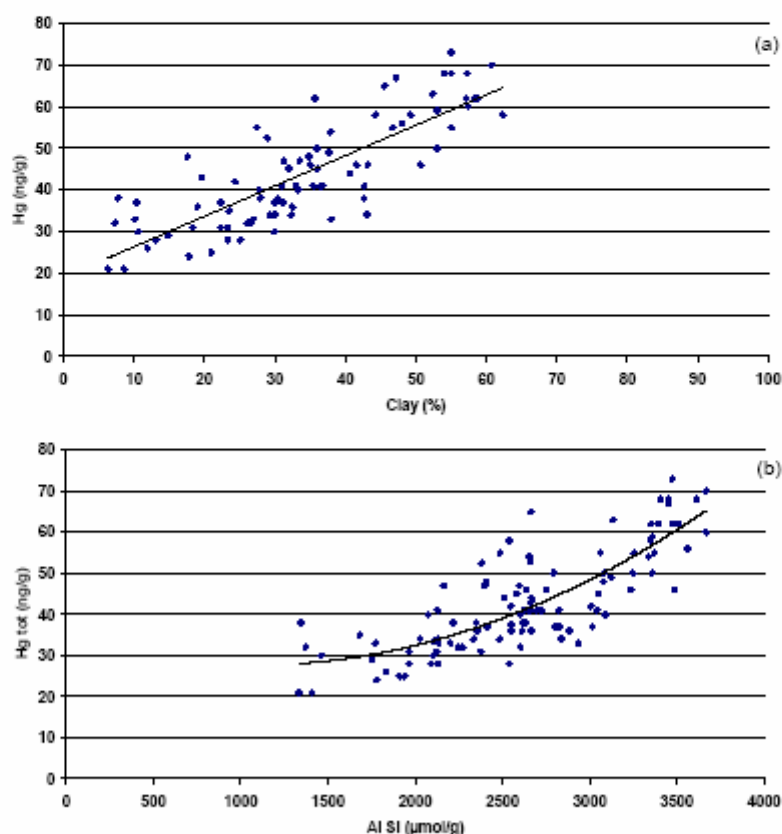


Fig. 2 Correlations between T-Hg concentrations and (a) the clay content (%) and (b) the Al incorporated in clay minerals (Al_{SI}) concentrations ($\mu\text{mol g}^{-1}$) in the Beni flood plain sediments.

values published by Guyot (1993). The total Hg (T-Hg) flux associated with sediment reached 33 t, 96% of which was particulate Hg (P-Hg). During the wet season, from November to March, Hg-contaminated particles are transported from the Andean sub-basins characterized by steep slopes and by an accelerated erosion rate driven by recent agriculture practices and the ongoing construction of a major road. Due to the high adsorption capacity of mercury on fine particles (clays) in the white water rivers (in contrast to organic-rich "black waters"), most of the mercury is transported on SPM. In the Beni River basin, a depth-integrated average of 35% of the deposited sediment collected in the flood plain is composed of clays, and these contain most of the sediment-borne mercury.

Century-scale contamination history and importance of sediment transport, channel-flood plain interchange, and flood plain accumulation

For the 139 sediment samples analysed ($n = 114$ for clay defined as particles smaller than 4 μm), we observe (Fig. 2) a strong correlation between T-Hg and clays content ($r^2 = 0.74$), Al_{tot} ($r^2 = 0.65$), Fe_{tot} ($r^2 = 0.64$) and with Fe incorporated in clay minerals, Fe_{Si} ($r^2 = 0.53$) concentrations. This confirms that clays and Al and Fe oxy-hydroxides in sediments may serve as the primary carrier and facilitate the transport and storage of Hg within the Beni river-flood plain system. By utilizing results from a detailed model for the transport and deposition of river sediment (including clays) along the Beni river-flood plain system as it crosses a large foreland basin (Aalto, 2002), we estimate, using the observed Hg-Clay relationship (Fig. 2), an annual exchange of clay-affiliated Hg between the flood plain and the channel of 2.1 t Hg, primarily due to channel migration. This exchange has been estimated by subtracting the net Hg deposition of 2.4 t year⁻¹, primarily lost into the distal flood plain, from the total deposition of 4.5 t year⁻¹. Long-term records of sediment influx into and efflux from the Beni foreland support this estimate of total sediment loss and associated Hg accumulation within the foreland.

In many of our cores, we observe an increase of the T-Hg concentrations in sediments with depth (Fig. 3). Applying the CIRCAUS model to date the sediment within our flood plain cores, we find that the ratio of observed Hg concentration to expected Hg concentration (as derived from measured clay abundance or from measured Al incorporated in clay minerals, Al_{Si}) is approximately 1 from 1900 to 1965 and then increases starting in the 1970s (Fig. 4). This increase is most evident for the clay-normalized Hg content where we observed a best correlation between these two elements. This suggests that the clay, and in a less extend Al-normalized Hg concentration in sediment is constant from 1900 to 1965, and then shows an increase over the past 30 years, most likely because of a new input of Hg in the Andean drainage basins. This influx of Hg can be attributed to accelerated erosion of Hg-enriched soils, due to increased gold-mining activities, recent colonization, and new agriculture practices (e.g. burning after deforestation), road construction, and other human activities. A substantial increase in the price of gold during the 1970s, with a maximum in 1980, sparked a new gold boom in various tropical countries, and especially in Latin America (Cleary, 2000). Other authors (Roulet *et al.*, 2000) observed an increase in sediment Hg concentrations

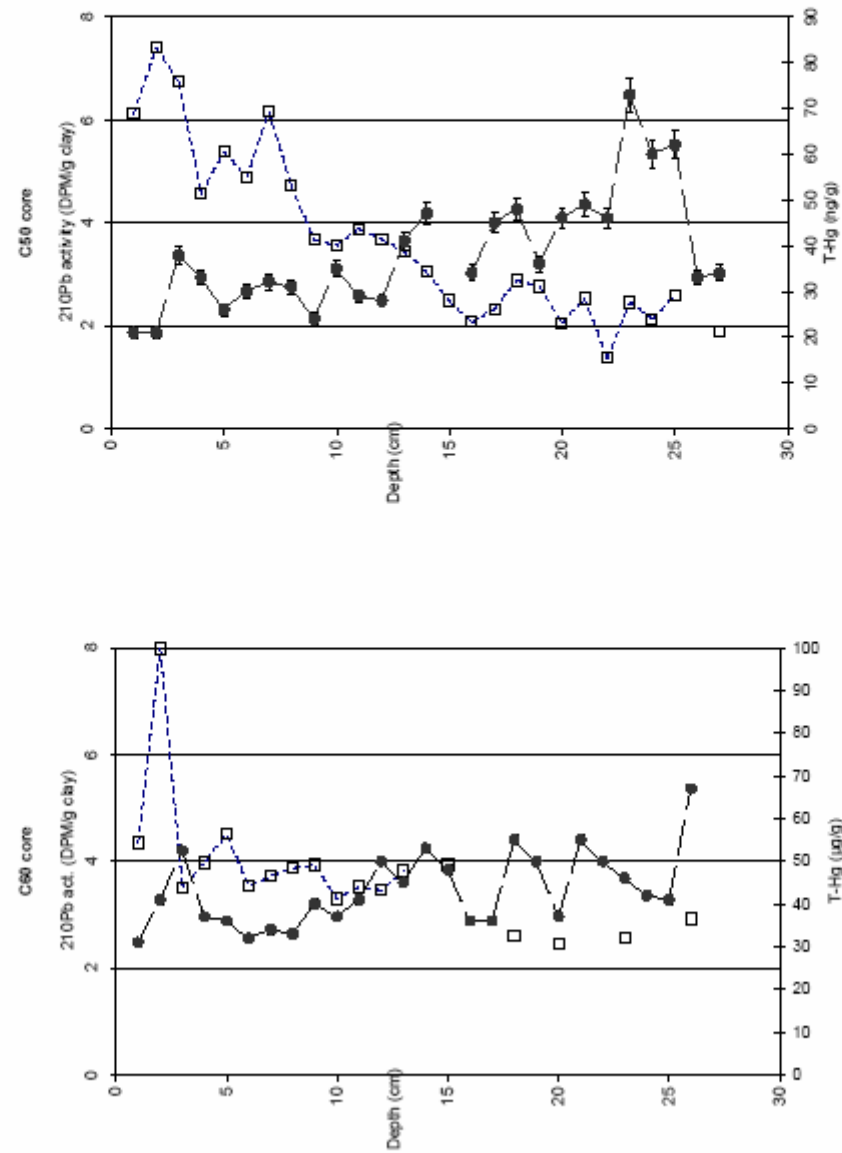


Fig. 3 Vertical distribution of T-Hg concentrations (●) and ^{210}Pb activity (□) in two sediment cores collected in the Beni River flood plain (C50 and C60).

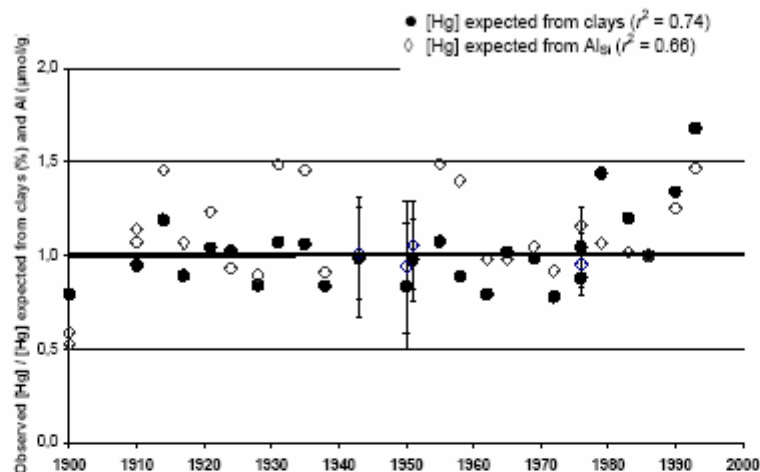


Fig. 4 Observed Hg concentration/expected Hg ratio from measured clay abundance, and from Al incorporated in clay minerals, in the Beni River sediments over the last century.

in the surface sediments of the Tapajós and Ariapiuns Rivers; although their study is not based on substantial geochronological data, they concluded that between the 1950s and 1970s, the significant colonization of the Amazon drainage basins and the growing development of new parcels of land disturbed mineral and organic matter cycles, including the Hg distribution within sediments.

CONCLUSION

The substantial increase of clay or Al_{Si} -normalized Hg concentration in the sediments of an important tributary of the Amazon during the last 30 years might be explained by a recent gold mining boom and also by increased deforestation of steep hillsides and the resulting erosion of Hg-contaminated soils. Our dating methodology is based on a recently-developed ^{210}Pb technique for flood plains, including extensive documentation for sediment deposition across the Beni River flood plain (over 90 activity profiles processed to date); therefore, this study represents the first geochronological determination of heavy metal pollution history from flood plain sediments. These results underscore the importance of river sediment as a carrier of Hg, and the key role of channel-flood plain sediment interchange in regulating the transport and accumulation of any sediment-associated pollution.

Acknowledgements This research was funded by the HyBAm Programme of IRD, the French Research Institute for Development, and by the University of Washington with the support of the National Science Foundation and NASA. The authors are grateful to the laboratories of Ecology and Chemistry of UMSA (La Paz University), and to the

Bolivian crew who accompanied us during the survey and to all the people we met, for their help in the field. We thank too Isabelle Rhéault, from the University of Québec in Montréal, for the geochemical analysis.

REFERENCES

- Aalto, R. (2002) Geomorphic form and process of sediment flux within an active orogen: denudation of the Bolivian Andes and sediment conveyance across the Beni foreland. PhD Dissertation, University of Washington, Seattle.
- Aalto, R. & Nittrouer, C. A. (submitted) Application of fallout ^{210}Pb geochronology to river-flood plain systems: a flexible new methodology. Submitted to *Chem. Geol.*
- Akagi, H., Malm, O., Branches, F. J. P., Kinjo, Y., Kashima, Y., Guimarães, J. R. D., Oliveira, R. B., Haraguchi, K., Pfeiffer, W. C., Takizawa, Y. & Kato, H. (1995) Human exposure to mercury due to goldmining in the Tapajós River basin, Amazon, Brazil: speciation of mercury in human hair, blood and urine. *Wat. Air Soil Pollut.* 80, 85–94.
- Barbosa, A. C., Garcia, A. M., & de Souza J. (1997) Mercury contamination in hair of riverine populations of Apiaçás Reserve in the Brazilian Amazon. *Wat. Air Soil Pollut.* 97, 1–8.
- Cleary, D. (2000) Small scale gold-mining in Brazilian Amazonia. In: *Amazonia at the Crossroads* (ed. by A. Hall), 58–72. Institute of Latin America Studies, London.
- Gaudet, C., Lingard, S., Cureton, P., Keenleyside, K., Smith, S. & Raju, G. (1995) Canadian environmental quality guidelines for mercury. *Wat. Air Soil Pollut.* 80, 1149–1159.
- Guyot, J. L. (1993) Hydrogeochemistry of the Bolivian Amazonian rivers. PhD Dissertation, ORSTOM, Paris, France.
- Lebel, J., Mergler, D., Branches, F., Lucotte, M., Amorim, M., Laribe, F. & Dolbec, J. (1998) Neurotoxic effects of low-level mercury contamination in the Amazonian basin. *Environ. Res.* A79, 20–32.
- Lebel, J., Roulet, M., Mergler, D., Lucotte, M. & Laribe, F. (1999) Fish diet and mercury exposure in a riparian Amazonian population. *Wat. Air Soil Pollut.* 97, 31–44.
- Malm, O., Pfeiffer, W. C., Souza, C. M. M. & Reuther, R. (1990) Mercury pollution due to gold mining in the Madeira river basin, Brazil. *Ambio* 19(1), 11–15.
- Malm, O., Branches, F. J. P., Akagi, H., Castro, M. B., Pfeiffer, W. C., Harada, M., Bastos, W. R. & Kato, H. (1995) Mercury and methylmercury in fish and human hair from the Tapajós river basin, Brazil. *Sci. Total Environ.* 175, 141–150.
- Maurice-Bourgoin, L. (2001) Le mercure dans les eaux de surface du bassin amazonien—transfert du mercure des sols aux milieux aquatiques—speciation, transport et sédimentation dans les rivières et plaines d'inondation. In: *Le Mercure en Amazonie: Rôle de l'homme et de l'environnement* (ed. par J. P. Camouze, M. Lucotte & A. Boudou), 167–200. IRD Publ. (Expertise Collégiale), Paris, France.
- Maurice-Bourgoin, L., Quiroga, I., Guyot, J. L. & Malm, O. (1999) Mercury pollution in the upper Beni River basin, Bolivia. *Ambio* 28(4), 302–306.
- Maurice-Bourgoin, L., Quiroga, I., Chuncheros, J. & Courau, P. (2000a) Mercury distribution in waters and fishes of the Upper Madeira rivers and mercury exposure in riparian Amazonian populations. *Sci. Total Environ.* 260, 73–86.
- Maurice-Bourgoin, L., Fraizy, P., Alanoca, L., Seyler, P. & Guyot, J. L. (2000b) Hydrological control on the temporal variability of mercury in surface waters of the Upper Madeira basin, Bolivia. In: *25th Int. Conference on Heavy Metals in the Environment* (ed. by J. Nriagu). Contribution no. 1282, University of Michigan, School of Public Health, Ann Arbor, Michigan (CD-rom).
- Maurice-Bourgoin, L., Aalto, R., Fraizy, P., Barnaud, V. & Guyot, J. L. (2001) Modulation of mercury transport through fluvial systems by channel-floodplain interaction: a case study for the Beni River, Bolivian Amazonia. In: *6th Int. Conference on Mercury as a Global Pollutant*. Akagi, Minamata, Japan.
- Noling, R. F. & de Jong, J. T. M. (1994) Sampling and analytical methods for the determination of trace metals in surface seawaters. *Int. J. Environ. Anal. Chem.* 57, 189–196.
- Nriagu, J. O., Pfeiffer, W. C., Malm, O., Souza, C. M. M. & Mierle, G. (1992) Mercury pollution in Brazil. *Nature* 356, p. 389.
- Roulet, M., Lucotte, M., Farella, N., Serique, G., Coelho, H., Sousa Passos, C. J., De Jesus da Silva, E., Scavone de Andrade, P., Mergler, D., Guimarães, J. R. D. & Amorim, M. (1999) Effects of recent human colonization on the presence of mercury in Amazonian ecosystems. *Wat. Air Soil Pollut.* 112, 297–313.
- Roulet, M., Lucotte, M., Camuel, R., Farella, N., Guimarães, J.-R. D., Mergler, D. & Amorim, M. (2000) Increase in mercury contamination recorded in lacustrine sediments following deforestation in central Amazonia. *Chem. Geol.* 165, 243–266.
- Roulet, M. & Maury-Brachet, R. (2001) Le mercure dans les organismes aquatiques amazoniens. In: *Le Mercure en Amazonie: Rôle de l'homme et de l'environnement*, (ed. par J. P. Camouze, M. Lucotte & A. Boudou), 203–271. IRD Publ. (Expertise Collégiale), Paris, France.
- Silva Forsberg, M. C., Forsberg, B. R., & Zeidemann, V. K. (1999) Mercury contamination in humans linked to river chemistry in the Amazon basin. *Ambio* 28(6), 519–521.

Maurice-Bourgoin L., Quiroga I., Chincheros J. and Courau P., 2000. Mercury distribution in waters and fishes of the Upper Madeira rivers and mercury exposure in riparian Amazonian populations. *The Science of the Total Environment*, 260: 73-86.



The Science of the Total Environment 260 (2000) 73-86

the Science of the
Total Environment

www.elsevier.com/locate/scitotenv

Mercury distribution in waters and fishes of the upper Madeira rivers and mercury exposure in riparian Amazonian populations

Laurence Maurice-Bourgoin^{a,*}, Irma Quiroga^b, Jaime Chincheros^c,
Philippe Courau^d

^aIRD (ex-ORSTOM), French Scientific Research Institute for Development, CP 9214 La Paz, Bolivia

^bUMSA, San Andrés Main University, Chemical Research Institute, CP 330 La Paz, Bolivia

^cUMSA, San Andrés Main University, Ecological Institute, Environmental Quality Laboratory, La Paz, Bolivia

^dPhysical and Chemical Marine Laboratory, BP 08, 06238 Villefranche Mer, France

Received 27 September 1999; accepted 25 January 2000

Abstract

In this paper, the results of mercury concentrations in two abiotic compartments (river water and suspended particles) and two biotic compartments (fish and human hair) from the upper Madeira rivers of the Bolivian Amazon basin are presented. Because of the local hydrological regimes and a high deposition rate in the plain, due to the presence of a subsidence zone at the bottom of the Andean piedmont, in the dry season, the highest mercury concentrations and fluxes were not found in rivers where mining activities took place ($2.25\text{--}6.99\text{ ng l}^{-1}$; and $1.07\text{--}8.67\text{ mg Hg d}^{-1}\text{ km}^{-2}$), but at the outlet of the Andean basins exploited for their alluvial gold ($7.22\text{--}8.22\text{ ng l}^{-1}$; and $9.47\text{--}9.52\text{ mg Hg d}^{-1}\text{ km}^{-2}$). The total mercury concentrations measured in surface waters of the upper Beni basin varied during the dry season, from 2.24 to 2.57 ng l^{-1} in the glacial waters of the Zongo river, to 7.00 ng l^{-1} in the Madeira River at Porto Velho and $9.49\text{--}10.86\text{ ng l}^{-1}$ at its confluence with the Amazon. The results obtained from fish indicate, on one hand, that 86% of the piscivorous fishes collected in the Beni river were contaminated, and, on the other hand, their high mercury concentrations could exceed by almost four times the WHO (1976) safety limit. In the Beni River, the mercury concentrations found in omnivorous and mud-feeding fish ranged from 0.02 to $0.19\text{ }\mu\text{g g}^{-1}$ (wet wt.), and in piscivorous fish, from 0.33 to $2.30\text{ }\mu\text{g Hg g}^{-1}$ (wet wt.). The mercury accumulated by carnivorous fishes was mainly present in its organic form; methylmercury represented 73–98% of the total mercury analysed. Eighty persons were studied in the entire Bolivian Amazonian basin. Unlike the gold miners, who are more affected by tropical diseases, such as malaria and yellow fever, the indigenous people living on the banks of the Beni river, present elevated levels of mercury ($9.81\text{ }\mu\text{g g}^{-1}$ on average). We observed an increase in

*Corresponding author. Tel.: 59-12-77-24-59; fax: 59-12-22-58-46.

E-mail address: lmaurice@mail.megalink.com (L. Maurice-Bourgoin).

contamination in young children still being breast-fed, confirming that hair mercury concentration in babies was significantly affected by maternal mercury contamination during pregnancy. These results show that the major health impacts caused by mercury affect people who are not working directly in gold mining activities but who have a regular fish diet. © 2000 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

Keywords: Mercury; Amazon basin; Upper Madeira; Surface waters; Fish; Human hair

1. Introduction

Mercury contamination in human and edible fishes and its distribution in water and soil is an environmental problem of increasing concern in the Amazon basin. Mercury released from gold-mining activities was commonly held responsible for the Hg contamination of aquatic ecosystems (Malm et al., 1990, 1995; Nriagu et al., 1992; Pfeiffer et al., 1993). However, recent studies have shown the importance of pre-anthropogenic sources in elevated mercury concentrations measured in the superficial mineral horizons of remote forested oxisols (Roulet and Lucotte, 1995). Considering the relative influence of anthropogenic Hg, Roulet et al. (1999) calculated, for example, that more than 97% of the Hg accumulated at the soil surface of the Tapajós basin is pre-anthropogenic. These authors proposed that the erosion of deforested soils following human colonisation constitutes a major disturbance of the natural Hg cycle.

However, in the case of the Madeira river basin, there are two main sources of mercury: long term low-level atmospheric inputs from natural processes such as volcanism, which is still active in the Real Cordillera, and inputs from anthropogenic emissions during gold-mining activities. We have estimated that, in Bolivia, more than 330 tonnes of mercury have been released into the environment since 1952 (assuming a mean Au:Hg ratio of 1:5). In 1997, more than 60 000 Bolivian people were directly involved in gold-mining activities, as employees of some 1200 mining companies, or as members of approximately 300 local co-operatives. Most of the gold-mining activities in the upper Beni river basin take place in the rivers Tipuani, Mapiri and K'aka (Fig. 1).

Here, approximately 200 co-operatives have extracted between 5 and 10 kg of gold per month over these last few years, and 100 kg per month during the best years (1993–1994). Hence, it may be summarised that 250–500 kg of mercury is used each year and that 50–70% of this is directly released into the environment via rivers, the soil and the atmosphere. In the upper Beni river basin, gold-mining activities intensified approximately 50 years ago. The Tipuani basin is the oldest placer in Bolivia. Downstream the Tipuani river, along the K'aka and Beni's affluents, alluvial river terraces contain the gold-bearing deposits. In the Mapiri and K'aka rivers, the two main gold-mining companies have exploited 86 million m³ of gold-bearing sediments, as of 1992 (Hérail et al., 1986).

Depending upon the mining company, mercury is not always recovered and 5–45% of the total mercury used (Malm et al., 1990; Maurice-Bourgoin et al., 1999) can be released into the river itself. Finally, mercury passes into the atmosphere by the open air burning of the amalgam. The simplicity of this technique explains its widespread use in small-scale mining in developing countries. Rough field conditions, the absence of monitoring and available data precludes an accurate estimation of gold extraction, and, hence, the mercury released.

From the results we obtained in the suspended matter and the soils of the main tributaries of the Amazon River, the Madeira (Maurice-Bourgoin et al., 1997), Tapajós (Roulet et al., 1998) and Negro (Silva Forsberg et al., 1999) basins, we suggested that there are preferential storage basins, depending on their climatology (wind and rain) and their type of soil. The factors con-

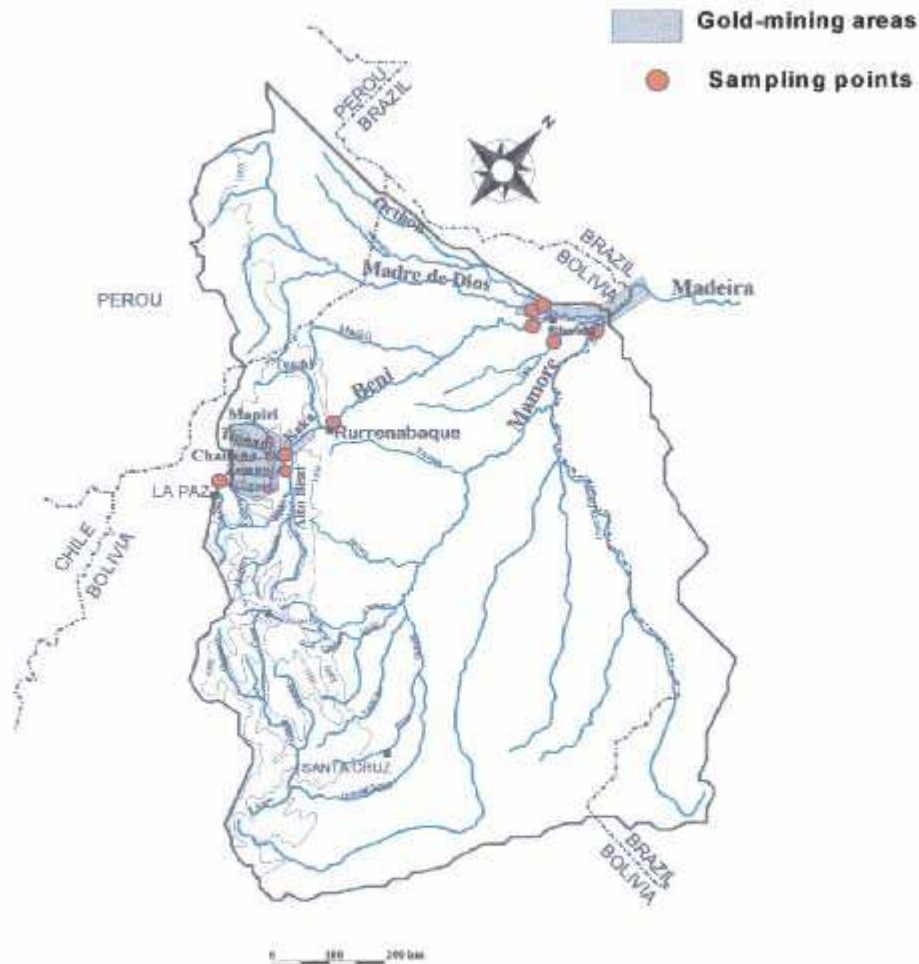


Fig. 1. Hydrological map of the Bolivian Amazon basin. Location of the gold-mining areas and the studied rivers.

trolling the contamination in soils and sediments include podzolisation, which explains the important accumulation of mercury in soils and the

release of organo-mercurial complexes in the drainage waters (Roulet and Lucotte, 1995), and soil erosion processes, increased by the deforesta-

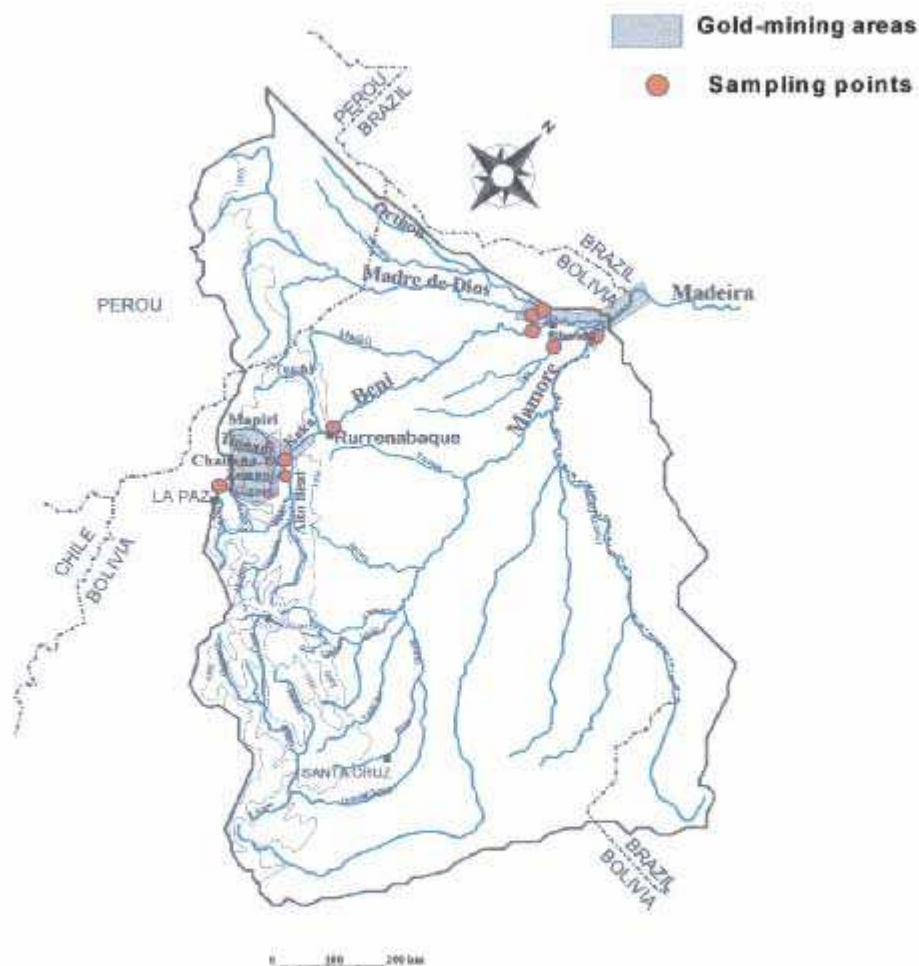


Fig. 1. Hydrological map of the Bolivian Amazon basin. Location of the gold-mining areas and the studied rivers.

trolling the contamination in soils and sediments include podzolisation, which explains the important accumulation of mercury in soils and the

release of organo-mercurial complexes in the drainage waters (Roulet and Lucotte, 1995), and soil erosion processes, increased by the deforesta-

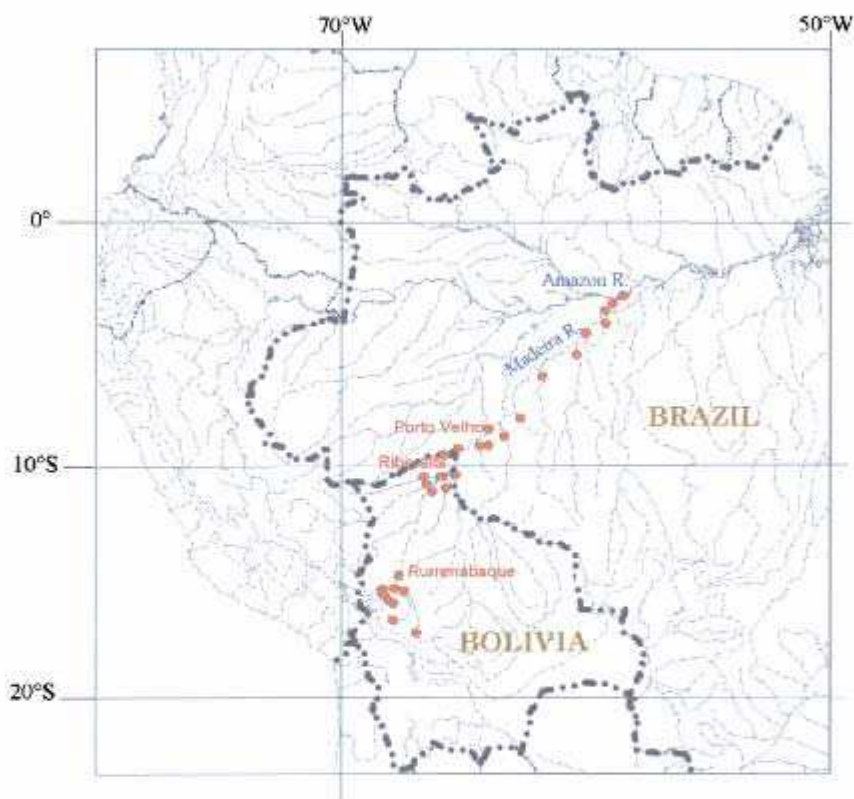


Fig. 2. Water sampling points in the Madeira basin.

tion and burning soil practices. In Bolivia, from the Andean piedmont to the Amazonian plain, this agricultural practice is commonly held.

The entire Madeira basin formed the focus of the present study (Fig. 2).

2. Description of the study area

The Bolivian Amazon basin represents the Andean headwaters of the Madeira River, one of the four most important tributaries of the Ama-

zon River. In Bolivia, its drainage basin measures 0.9×10^6 km² with 25% in Andes, 27% on Brazilian shield and 48% in the plain. The Andean cordillera uplift has led to a subsidence of the shield, causing the formation of a subsident deep at the Andean piedmont, where sediments can easily accumulate. The study of the biotic compartment contamination was located in the upper Beni River in Rurrenabaque, at the Bolivian Andean piedmont. Heights above sea level ranged from 6400 m at the Zongo headwaters to 280 m at Rurrenabaque and 115 m at the Brazil-

4. Results and discussion

4.1. Mercury in waters

The total mercury concentrations measured in the surface waters of the Madeira river basin varied from 2.24 to 2.57 ng l⁻¹ in the glacial waters of the Zongo river, and from 9.49 to 10.86 ng l⁻¹ at its confluence with the Amazon River (Table 1). In waters of Andean rivers exploited for their alluvial gold, total mercury concentrations ranged from 2.25 to 6.99 ng l⁻¹. We noted an increase in the mercury concentration in the surface waters from the Andean tributaries of the Madeira river to its confluence with the Amazon (Fig. 3). However, in dry season, the highest mercury concentrations and fluxes were not found in the rivers where the mining activities took place, but at the outlet of the Andean sub-basins exploited for their alluvial gold, 200 km downstream (Fig. 4). The low quantity of mercury directly released in the water streams, the local hydrologi-

cal regimes and the dynamic of the sediment transport can explain this finding. The main part of the Hg emitted during the gold-mining activities and by natural emissions is released in the atmosphere in its vapour form. This elemental form doesn't directly contaminate the rivers exploited for their alluvial gold, but can travel for hundred kilometres before being deposited with rain in other drainage basins than those of emission. At the Andean piedmont where high concentrations of mercury have been measured, we could observe: (i) high values of precipitation; (ii) a subsident zone which favours the deposition of particles transported from the Andes; and (iii) drainage basins characterised by soils enriched by iron oxy-hydroxydes (Tuichi and Quilibey basins). Therefore, we can suppose the presence downstream of a storage basin for mercury, which can act as a source of Hg in the Beni river. During the wet season, from November to March, contaminated particles are transported from the Andean sub-basins, characterised by steep slopes and by a significant erosion rate due to recent

Table 1
Mercury concentrations in waters in the dissolved (DHg) and particulate (PHg) fractions of the Madeira rivers and its tributaries, from the Andean headwaters to its confluence with the Amazon; values obtained in end of dry season

	Area of the drainage basin (km ²)	Suspended solids (mg l ⁻¹)	DHg (ng l ⁻¹)	PHg (ng g ⁻¹)	Total Hg (ng l ⁻¹)	Total Hg Flux (mg d ⁻¹ km ⁻²)
<i>Glacial water</i>						
Zongo R.	2	2.0–2.5	1.95–2.40	121–145	2.24–2.57	5.70–6.55
<i>Andean tributaries exploited for their alluvial gold</i>						
Tiptuni R.	1400	188–338	1.80–3.80	5–43	3.11–5.37	5.98–8.67
Mapiri R.	10190	32–135	1.30–6.15	7–26	2.25–6.99	1.07–5.52
K'aka R.	18800	62–95	2.90–5.45	7–50	3.50–6.08	3.74–6.49
<i>Andean piedmont</i>						
Beni R. (Rurrenabaque)	67500	126–233	3.60–6.55	7–61	7.22–8.22	9.47–9.52
<i>Amazonian plain</i>						
Beni R. (Riberalta)	243000	167–537	2.55–6.03	2–8	3.77–7.64	2.57
Madeira R. (Porto Velho)	954285	122	5.80	10	7.00	7.33
Madeira R. (Manicore)	1123670	149	8.50	13	10.43	11.76
Madeira R. (Borba)	1328581	47	8.60	20	9.51	12.22
<i>Confluence with the Amazon R.</i>						
Madeira R. (Foz Amazonas)	1370000	33–38	5.55–10.40	140–209	9.49–10.86	4.27–13.01

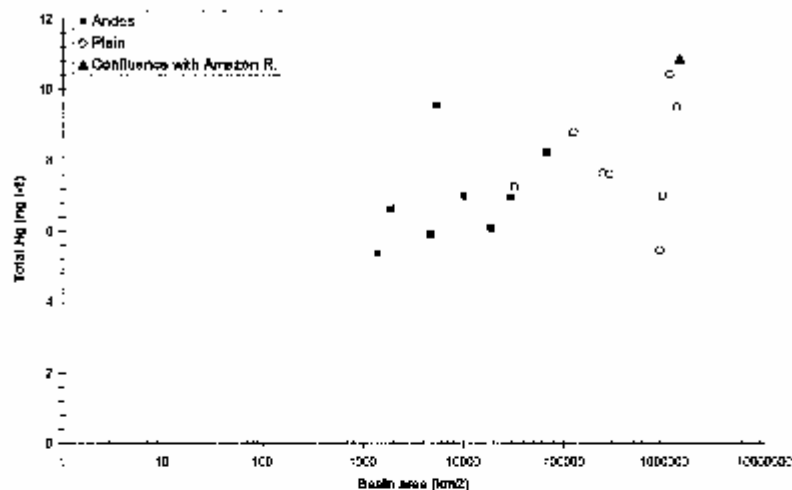


Fig. 3. Concentrations, in the dry season, of total mercury in the waters along the Madeira River from its Andean tributaries to its confluence with the Amazon River.

agricultural practices, to the Amazonian plain. The high adsorption capacity of mercury, especially on fine particles (clays), and the stability of its carbon binders are the reasons why, in any hydrosystem, most of the mercury is transported in particulate matter (Benes and Havlik, 1979; Langston, 1982; Rae and Aston, 1982; Maurice-Bourgoin et al., 1999). This occurs mainly during the rainy season, when soil erosion is most significant. In the white waters of the Andean rivers, dissolved organic carbon concentrations are reduced; however, on the other hand, in the high water season, 3–15% of the total suspended solids (TSS) in the Beni river at Rurrenabaque are constituted of clays (Guyot, 1993). The values of particulate mercury that we have published are quite low (Table 1) because of the sampling period; in dry season, the deposition process is much more important than the erosion process. Guyot (1993) estimated that 43% of the suspended particles are deposited in the Amazonian plain of the Beni river.

Confirming our theory, in the Tapajós River,

Roulet et al. (1998) found that the Hg content in the water column is independent of upstream gold-mining activities.

It appears that on one hand, the mercury emitted by gold-mining activities in Bolivia at the headwaters of the Amazon basin does not contaminate, in dry season, the exploited rivers directly. On the other hand, mercury concentrations measured in suspended matter indicate that mercury is preferentially released in the hydrosystem during the rainy season and is then transported, adsorbed on fine particles which are in abundance in the Andean rivers. Its contamination affects drainage basins downstream, characterised by high precipitation, high sedimentation rates, and by soils and sediments enriched in iron oxy-hydroxides (Tuichi River basin for example).

Even if the hydrodynamic conditions in this area favour the transport downstream and the dispersion of mercury in freshwater, mercury pollution could still become a problem in the Bolivian Amazonian basin because of fish consump-

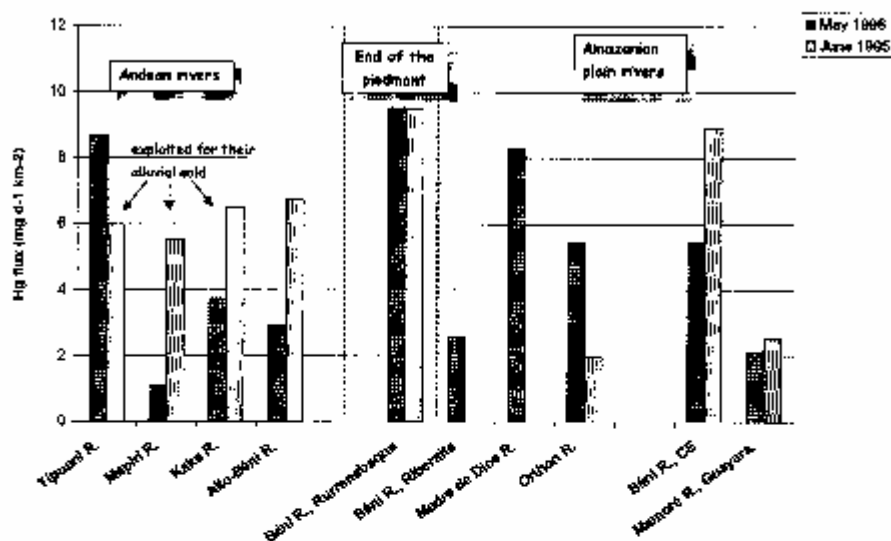


Fig. 4. Total mercury fluxes normalized by the drainage basin area along the Andean tributaries of the Madeira river, during the dry season.

tion by indigenous riparian communities as a primary protein source.

4.2. Mercury in fish

Between November 1996 and March 1999, 59 fish specimens belonging to 18 genera were analysed, having both different diets and habitats. All of these species are consumed by the local population. The distribution of mercury in fish depends mainly on their dietary habits. The feeding habits were determined for each species from stomach content analyses and literature reviews (Mendes dos Santos et al., 1984; Lowe-McConnell, 1987). The concentrations of Hg (Table 2) found in non-carnivorous fish ranged from 0.009 $\mu\text{g g}^{-1}$ (wet wt.) in a herbivorous species, Tambiqui (*Colossoma macropomum*) to 0.193 $\mu\text{g g}^{-1}$ (wet wt.) in an omnivorous species, Giro (*Oxydoras* sp.). In piscivorous fish, the total mercury concentration varied from 0.327 $\mu\text{g g}^{-1}$ (wet wt.) for

Pintado (*Pseudoplatystoma fasciatum*), up to 2.304 $\mu\text{g g}^{-1}$ (wet wt.) for Surubi (*Pseudoplatystoma tigrinum*) with an average on 10 specimens of 0.986 $\mu\text{g Hg g}^{-1}$. The latter results indicate that this high mercury concentration can exceed the WHO safety limit (WHO, 1976) by more than fourfold (Fig. 5). No correlation was significant, for a single species, between the total mercury concentration and weight; for example, for Surubi (*P. tigrinum*), a piscivorous species, we observed (Fig. 5) an increasing concentration of total Hg content with weight, but the number of individuals was insufficient to be a significant result. The absence of a correlation between fish weight and Hg content can be explained by the fact that fish, and especially *Pseudoplatystoma tigrinum* and *fasciatum*, can migrate along the river for several hundred kilometres, especially in the high waters for their reproduction. The food diversification also can explain the non-correlation between the Hg content and fish weight. Between high and

Table 2
Total mercury concentrations in fish captured in the Beni river and its piedmont affluents, from November 1996 to December 1998^a

Sample origin	Family	Scientific name (common name)	n	Dietary habits	Weight range (g)	Hg concentration ($\mu\text{g g}^{-1}$ wet wt.)	Mean Hg ($\mu\text{g g}^{-1}$ wet wt.)	S.D. range
Beni R. (Eurenabaque area)	Characidae	<i>Hydrocynus</i> sp. (Cochorro)	5	P	2500–3900	0.534–1.485	0.989	0.050–0.010
		<i>Bycon</i> sp. (Llorona)	1	O	830		0.034	0.0002
	Curimatidae	<i>Psectrodontus nigricans</i> (Sabalo)	5	M	330–1830	0.034–0.169	0.078	0.001–0.005
	Serrasalimidae	<i>Piaractus brachipomus</i> (Pacu)	3	H	2400–4200	0.022–0.147	0.094	0.001–0.013
		<i>Colossoma macropomum</i> (Tambaqui)	6	H	510–4200	0.010–0.145	0.094	0.002–0.011
		<i>Mylossoma duriventris</i> (Jatara)	1	H	400		0.086	0.007
		<i>Pseudocorymba nattereri</i> (Palometa)	2	P	1170–1200	1.206–1.233	1.219	0.040–0.047
	Cetopidae	<i>Hemisciphus</i> sp. (Pez ciego)	1	P			1.370	0.094
	Doradidae	<i>Oxydoras</i> sp. (Giro)	1	O	4200		0.193	0.006
	Loacidae	<i>Pteropichthys multiradiatus</i> (Zapato)	2	M	535–610	0.014–0.018	0.016	0.001–0.002
	Pimelodidae	<i>Pimelodus</i> sp. (Bagre)	2	P-O		1.224–1.819	1.522	0.106–0.130
		<i>Practocephalus</i> sp. (Coronel)	1	P	6900		1.089	0.140
Quitquey R.		<i>Brachyplatystoma flavicans</i> (Dorado)	4	P	13900–16000	0.857–1.476	1.237	0.020–0.029
		<i>Pseudoplatystoma fasciatum</i> (Pintado)	3	P	4500–10400	0.327–0.579	0.436	0.011–0.042
		<i>Pseudoplatystoma nigricans</i> (Surubi)	10	P	1300–16300	0.456–2.304	0.986	0.016–0.133
		<i>Pimelodus maculatus</i> (Mochli, Griso)	1	P-O	260		0.468	0.011
		<i>Triportheus angulatus</i> (Pacoste)	3	O	100–150	0.098–0.182	0.137	0.008–0.010
	Serrasalimidae	<i>Colossoma macropomum</i> (Tambaqui)	1	H	6400		0.021	0.001
		<i>Mylossoma duriventris</i> (Jatara)	1	H	700		0.075	0.006
		<i>Serrasalmonus spilopleura</i> (Pirafra)	1	P-O	120		0.049	0.007
	Pimelodidae	<i>Pimelodus</i> sp. (Bagre)	1	P-O			0.125	0.010
Tuichi R.	Curimatidae	<i>Psectrodontus nigricans</i> (Sabalo)	1	M			0.039	0.003
	Serrasalimidae	<i>Colossoma macropomum</i> (Tambaqui)	1	H	4500		0.069	0.001
		<i>Mylossoma duriventris</i> (Jatara)	1	H	1000		0.034	0.002
	Curimatidae	<i>Psectrodontus nigricans</i> (Sabalo)	1	M			0.055	0.002

^a H: herbivorous; M: mud feeder; O: omnivorous; P: piscivorous

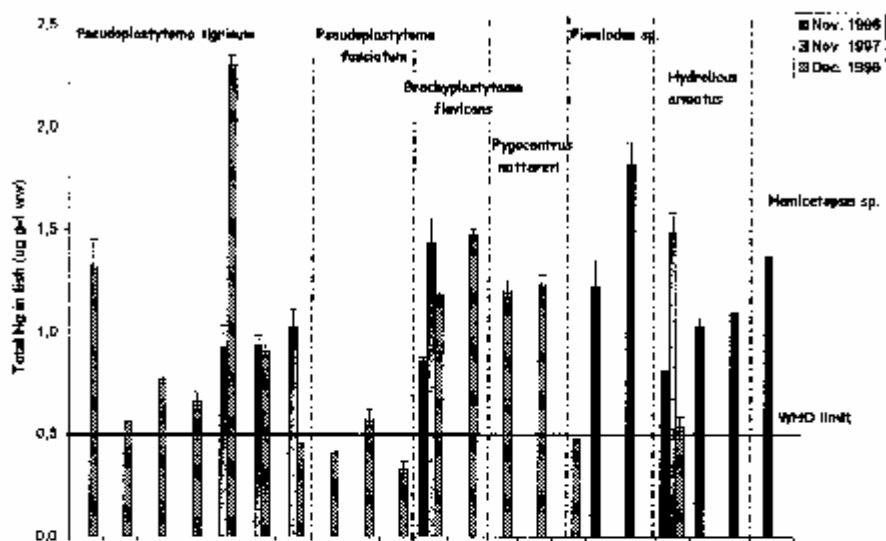


Fig. 5. Total mercury concentrations in piscivorous fishes in ($\mu\text{g g}^{-1}$ wet wt.) collected in the Beni River (Rurrenabaque area), Bolivian Amazon basin. For each species, results are presented by increasing individual total weight; error bars mean standard deviation among replicate analysis (six per sample).

low waters, their dietary habits may change, but most piscivorous species eat fish that are in abundance in the river: mud feeders, detritivorous or other carnivorous fish.

Our results show the accumulation of mercury within the food chain. Even if the particulate mercury concentration of the river water is within the range of the natural background, as stated in the literature, 85.7% of the carnivorous fish caught in the Beni River in the Rurrenabaque area exceed the maximum permissible level.

This raises an important problem. As mining activities in this region are declining, many miners have turned to fishing as a livelihood. Fish constitutes an important part of the diet of the local population, especially during the wet season when roads are flooded, and these communities become isolated and economic activity ceases.

The major health risk caused by mercury in this area, as in the Madeira River near the Brazilian border, does not just affect the miners by the

direct inhalation of mercury vapour during the burning process, but concerns all of the local population, through the regular consumption of contaminated piscivorous fish.

4.3. Mercury in hair

The mercury concentrations in 80 human hair samples collected downstream from gold-mining sites in the Bolivian Amazonian basin are presented in Fig. 6. The people who were studied could be classified into three categories depending on their job, their dietary habits and their residence areas: (1) gold-miners; (2) indigenous communities; and (3) riparian people.

From the data, it appears that Essejas indigenous communities living on the banks of the Beni River, a few kilometres downstream the Rurrenabaque village, presented the highest mercury concentrations ($4.30\text{--}19.52 \mu\text{g g}^{-1}$; average $9.81 \mu\text{g g}^{-1}$). All of the men in this community

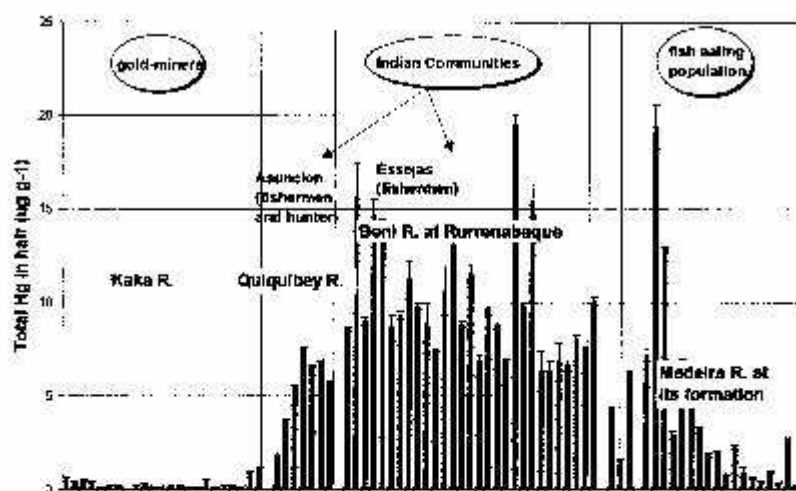


Fig. 6. Total mercury concentrations in riparian people hair of the Bolivian tributaries of the Madeira River. Error bars mean variance among nine replicate analyses for each hair sample.

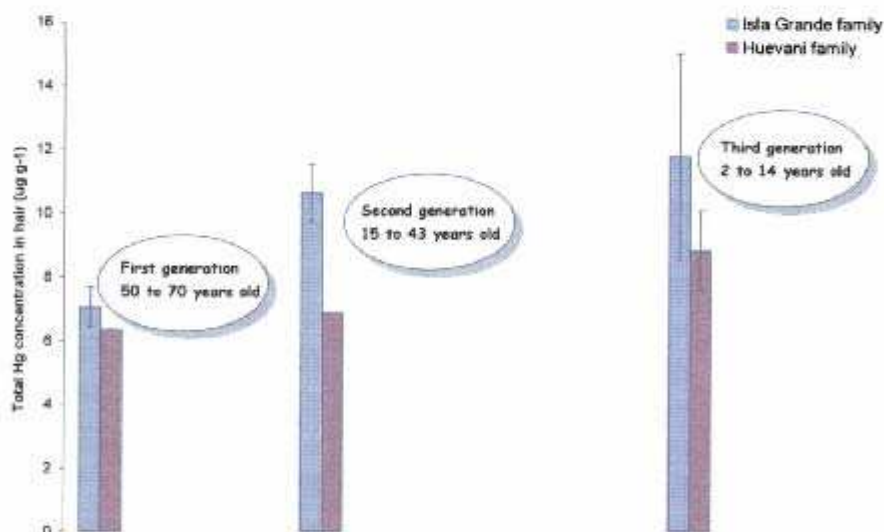


Fig. 7. Mean hair mercury concentrations in three generations of women from two Essejas indigenous families ($n = 17$) living on the Beni riverbank, near Rurrenabaque. Error bars mean variance among individuals from a same generation.

are fishermen. Fish constitute their main protein source, and they told us that they eat both omnivorous and carnivorous fishes, depending on their availability. Proportionally, more piscivorous fish are consumed during the rainy season, but when the waters are too high to go fishing, people consume more fruits, eggs or chicken. This explains why the mean hair Hg concentration is lower than the mean ranges published in the Brazilian Amazonian basin from 8.7 to 75.5 $\mu\text{g g}^{-1}$ (Barbosa et al., 1997). The differences in the fish species consumed during the two main hydrological seasons is in agreement with observations made by Lebel et al. (1999) with the riparian population of the Rio Tapajós. In women, the Hg concentration tends to decrease with age; almost certainly due to their gestational periods (Barbosa et al., 1998) and a lesser consumption of food with age. Unlike these authors, we noted an increase in the mercury concentration in the youngest generation (Fig. 7), with values of 8.56, 15.65 and 14.68 $\mu\text{g g}^{-1}$ in young children of 2, 3 and 5 years old, respectively; almost certainly due to contamination during their gestation and a smaller consumption of food with age. This confirms that hair mercury concentration in babies was significantly affected by maternal mercury contamination during pregnancy (Barbosa and Dórea, 1998). Those people who have a high and regular fish diet are exposed to greater risk of mercury poisoning because they are exposed to its organic form (Kehrig et al., 1997), which is directly assimilated by the organism. The few results of methylmercury we found show that this organic form represents 73–98% of the total mercury in hair.

Particularly in riparian people, high concentrations have been measured in members of a family living in Rurrenabaque, on the banks of the Beni River. Every son is a fisherman and fish is the common dish cooked in this household, which could explain the high mercury levels found in their hair.

For gold-miners, the total mercury concentrations ranged from 0.02 to 1.02 $\mu\text{g g}^{-1}$ (an average of 0.28 $\mu\text{g g}^{-1}$) from the K'aka river (Fig. 6). More than 50% of the miners working in the Andean basin co-operatives reported eating fish

only twice a month (Villavicencio, 1995), mainly in dry season (Maurice-Bourgoin et al., 1999). These results clearly show that the uptake of mercury by man, mainly in its methylated form, occurs as a result of the consumption of piscivorous fish. It appears that mercury pollution affects an area 150 km downstream of the gold-mining activities and affects people who are not directly concerned with gold extraction. During our last field campaign, which occurred during the rainy season, we learned that the K'aka river area was suffering from a severe epidemic of malaria and yellow fever. During 1998, approximately 200 cases of malaria were registered monthly, with as many as 500 cases reported for the month of November alone. In many miner's families, malaria has been diagnosed. On one hand, the rainy season and the proximity of numerous shallow shafts dug to collect alluvial gold favour the development of insect vectors of tropical diseases. On the other hand, the inhalation of mercury vapours could affect the immune system of the gold-miners and their families.

5. Conclusions

The results presented here show that, in Bolivia, the release of mercury into the Amazon basin contaminates both the hydrosystem and the ecosystem. The low quantity of mercury directly released in the water streams, the local hydrological regimes and the dynamic of the sediment transport in the Bolivian Amazon basin explain the increase in mercury contamination in the waters of the Andean piedmont. Mercury from soil erosion and recent agriculture practices, such as forest burning and gold extraction, represents a direct environmental and health threat, affecting both the ecosystem and the people living, not only in the gold-mining area, but more importantly downstream in the Andean drainage basin outlet.

The mercury concentrations found in piscivorous fish from the Beni river are of great concern since they can exceed by four times the WHO safety limit. For a single species, no correlation was significant between the Hg content and weight

due to the species' food diversification with hydrological seasons, their migration, mainly in reproductive periods, and their movement between numerous oxbow lakes, especially in low water seasons. Even if the total mercury concentration of the river water is within the range of the natural background stated in the literature, 86% of the piscivorous fish caught in the study area exceeded the maximum permissible level. In contrast, the Hg content of all omnivorous fish never exceeded the WHO limit (WHO, 1976).

The consumption of mature adult fish which have accumulated high quantities of methyl mercury through prolonged bioconcentration and biomagnification processes is particularly dangerous. People of indigenous communities living along the Beni river present quite elevated mercury levels in hair (average $9.81 \mu\text{g g}^{-1}$). Fish constitute an important part of their diet and consumption appears to be relatively constant from year to year, among the three generations analysed in two families. The mercury hair levels in this indigenous population reflect long-term exposure, as for other Amazonian populations in Brazil. Nervous system alterations at hair mercury levels below $50 \mu\text{g g}^{-1}$ in a riparian population of the Brazilian Amazon have been demonstrated and Lebel et al. (1998) have shown a dose-effect relationship for certain motor and visual functions. Thus, the dose-effect relationship is most likely to be related to cumulative and long-term exposure, but more studies are clearly needed in this type of population to determine the long-term significance of nervous system alterations. In the Essejas community, children under 3 years old present a hair Hg content that is twice that of their great-grandfather's generation. Therefore, the younger generation displays a substantial methyl mercury exposure in utero. This finding is quite alarming because in this region, the proportion of these persons is increasing and more severe effects have been observed for in utero exposure, as compared to perinatal and adult exposure periods (Rice, 1989).

The major health impact caused by mercury affects people who are not working in gold cooperatives, but who have a fish diet. This problem is well studied in Brazil (Malm et al., 1990; Lac-

erda et al., 1989; Nriagu et al., 1992) and French Guyana (Cordier and Grasmick, 1994) but there were few available data in Bolivia.

Acknowledgements

In 1995, researchers from IRD (formerly ORSTOM), the French Scientific Research Institute for Development, in co-operation with Brazilian and Bolivian universities, initiated a basin-wide study of the hydrogeochemistry of the Amazonian basin (HiBAm Program); I would like to thank Jean-Loup Guyot, co-ordinator of this program, for the confidence he placed in my research. Financial support for this study was provided by the FONAMA sponsored by the World Bank ('Cuentas iniciativas para las Americas') as a part of the 'Mercury contamination of the Beni river' Project. We acknowledge Olaf Malm and Helena Kehrig from the Universidade federal do Rio de Janeiro, and Lucia Alanoca and Jorge Quintanilla from the Universidad Mayor de San Andres (La Paz) for their help in the laboratory and co-operation for the realisation of this program. We also thank Cecile Lefevre and Aurelie Pasquet, students from the University of Montpellier, for their participation in the field and in the laboratory. The ichthyological part of this paper has been written with the help of Marc Pouilly and Laurent Lauzanne, IRD researchers, who I would like to thank here, as well as Claudio Rosales for his stomach content analysis. Lastly, but not least, we express our gratitude to the riparian people of the Beni and Mamore rivers for their invaluable participation and collaboration in this study.

References

- Agemian H, Cheaner V. Simultaneous extraction of mercury and arsenic from fish tissues and an automatic determination by atomic absorption spectrometry. *Anal Chem Acta* 1978;101:193–197.
- Albers WW, Reid MR, Kim JP, Hunter KA. Contamination-free sample collection and handling protocols for trace elements in natural freshwaters. *Austr J Mar Freshwater Res* 1990;41:713–720.
- Barbosa AC, Garcia AM, deSouza J. Mercury contamination

- in hair of riverine populations of Apiacas Reserve in the Brazilian Amazon. *Water Air Soil Pollut.* 1997;97:1–8.
- Barbosa AC, Silva SRL, Dórea JG. Concentration of mercury in hair of indigenous mothers and infants from the Amazon basin. *Arch Environ Contam Toxicol* 1998;34:100–105.
- Barbosa A.C., Dórea, J.G., Indices of mercury contamination during breast feeding in the Amazon basin. *Toxicol Pharmacol*, 1998, in press.
- Bastos WR, Malm O, Pfeiffer WC, Cleary D. Establishment and analytical quality control of laboratories for mercury determination in biological and geological samples in the Amazon — Brazil. *Ciencia e Cultura* 1998;50:4.
- Benes P, Havlik B. Speciation of mercury in natural waters. In: Nriagu JO, editor. *The Biogeochemistry of Mercury in the Environment*. Amsterdam: Elsevier North-Holland Biomedical Press, 1979:175–202.
- Cordier S, Grasmick C. Etude de l'imprégnation par le mercure dans la population guyanaise. France: Réseau National de Santé Publique, 1994:28.
- Gaudet C, Lingard S, Cureton P, Keenleyside K, Smith S, Raju G. Canadian environmental quality guidelines for mercury. *Water Air Soil Pollut* 1995;80:1149–1159.
- Guyot, J.L. Hydrogeochemistry of the Bolivian Amazonian Rivers. Ph.D. dissertation. ORSTOM France, editors 1995; pp. 261.
- Hérail G, Argollo J, Fornari M, Laubacher G, Viscarra G. El distrito de Tipuani, geología e historia. *Khrynos* 1986; 2:9–15.
- Kehrig HA, Malm O, Akagi H. Methylmercury in hair samples from different riverine groups, Amazon, Brazil. *Water, Air Soil Pollut* 1997;97:17–29.
- Lacerda LD, Pfeiffer WC, Ott AT, Silveira EG. Mercury contamination in the Madeira river, Amazon — Hg inputs to the environment. *Biotropica* 1989;21(1):91–93.
- Langston WJ. The distribution of mercury in British estuarine sediments and its availability to deposit-feeding bivalves. *J Mar Biol Assoc UK* 1982;62:667–684.
- Lebel J, Roulet M, Mergler D, Lucotte M, Larribe F. Fish diet and mercury exposure in a riparian Amazonian population. *Water, Air Soil Pollut* 1999;97:31–44.
- Lebel J, Mergler D, Branches F et al. Neurotoxic effects of low-level mercury contamination in the Amazonian basin. *Environ Res* 1998;A79:20–32.
- Lowe-McConnell RH. *Ecological studies in tropical fish communities*. Cambridge, England: Cambridge Tropical Biology Series, 1987:382.
- Malm O, Pfeiffer WC, Souza CMM, Reuther R. Mercury pollution due to gold mining in the Madeira river basin, Brazil. *AMBIO* 1990;19(1):11–15.
- Malm O, Branches FJP, Akagi H et al. Mercury and methylmercury in fish and human hair from the Tapajós river basin, Brazil. *Sci Total Environ* 1995;175:141–150.
- Maurice-Bourgoin L, Guyot JL, Seyler P, Quintanilla J, Courau P. Mercury distribution in Madeira and Amazonas river drainage basin. In: Webb B, editor. *Freshwater Contamination, Fifth IAHS Symposium*, 23 April–3 May 1997, Rabat, Morocco. IAHS Publication no.243, 1997:85–92.
- Maurice-Bourgoin L, Quiroga I, Guyot JL, Malm O. Mercury pollution in the upper Beni River basin, Bolivia. *AMBIO* 1999;28(4):302–306.
- Mendes dos Santos, G., Jegu, M., de Merona B. *Catálogo de peixes comerciais do baixo rio Tocantins*. Projeto Tucuruí, Manaus, ElectroNorte SA, editors. 1984; p. 83.
- Nolting RF, DeJong JTM. Sampling and analytical methods for the determination of trace metals in surface seawaters. *Int J Environ Anal Chem* 1994;57:189–196.
- Nriagu J.O., Pfeiffer, W.C., Malm, O., Souza, C.M.M., Mierle, G., Mercury pollution in Brazil. *Nature (London)*, 1992; 356–389.
- Pfeiffer WC, Lacerda LD, Salomons W, Malm O. Environmental fate of mercury from gold-mining in the Brazilian Amazon. *Environ Rev* 1993;1:26–37.
- Quémenerais B, Cossa D. Procedures for sampling and analysis of mercury in natural waters. Environment Canada, Environment Conservation, Centre Saint Laurent, Rapport ST-31E, 1995:39.
- Rae JE, Aston SR. The role of suspended solids in the estuarine geochemistry of mercury. *Water Res* 1982; 16:649–654.
- Rice DC. Delayed neurotoxicity in monkeys exposed developmentally to methylmercury. *Neurotoxicology* 1989;10: 645–650.
- Roulet M, Lucotte M. Geochemistry of mercury in pristine and flooded ferrallitic soils of a dense tropical forest in French Guiana. *Water, Air Soil Pollut* 1995;80:1079–1088.
- Roulet M, Lucotte M, Canuel R et al. Distribution and partition of total mercury in waters of the Tapajós River Basin, Brazilian Amazon. *Sci Total Environ* 1998;231: 203–211.
- Roulet M, Lucotte M, Farella N et al. Effects of recent human colonization on the presence of mercury in Amazonian ecosystems. *Water, Air Soil Pollut* 1999;112:297–313.
- Silva Fomberg, M.C., Fomberg, B. R., Zeidemann, V.K., Mercury contamination in humans linked to river chemistry in the Amazon basin. *AMBIO* 1999; 6 (in press)
- Villavicencio, A., *Diagnostico socio-economico de la region del rio K'aka*. Int. report MEDMIN, editors. Prog. de Manejo integrado del Medio Ambiente en la pequeña Minería, La Paz, Bolivia, 1995; pp. 56.
- WHO, *Environmental Health Criteria. I. Mercury*. World Health Org., Geneva 1976; 1–131.