

Université du Québec
Institut national de la recherche scientifique
Centre Eau, Terre et Environnement
(INRS-ETE)

DÉPÔT ET MOBILITÉ DE L'ANTIMOINE DANS LES SÉDIMENTS DE LACS DU BOUCLIER CANADIEN

par
Marie-Noëlle Bernatchez

Mémoire présenté pour l'obtention
du grade de Maître ès sciences (M. Sc.)
en Sciences de l'eau

Jury d'évaluation

Examinatrice externe	Montserrat Filella, Université de Genève
Examineur interne	Peter G. C. Campbell, INRS-ETE
Directeur de recherche	Charles Gobeil, INRS-ETE
Codirecteur de recherche	André Tessier, INRS-ETE

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier du fond du cœur mes parents, Diana et Yvan, pour m'avoir supportée tout au long de mon cheminement académique et personnel. C'est entre autres grâce à vous que j'ai su traverser les périodes les plus difficiles de ma vie.

Aussi, je remercie infiniment mon conjoint, Jean-François, pour m'avoir soutenue et encouragée pendant tout ce temps. Je t'en serai toujours reconnaissante.

J'aimerais également remercier mon directeur de recherche, M. Charles Gobeil. Merci Charles pour m'avoir donné la chance de participer aux travaux de recherche en géochimie. Grâce à cela, j'ai découvert un secteur de la chimie dont je veux faire carrière et j'en suis fière. Merci également à mon co-directeur de recherche, M. André Tessier. J'ai apprécié et j'ai su tenir compte des conseils et des commentaires que tu m'as apportés.

Merci également à Lucie Laforte pour les données précieuses sur l'antimoine dont j'ai pu bénéficier dans l'exécution de ce projet. Ne l'ayant toutefois jamais rencontrée en personne, je suis convaincue de son talent et de sa rigueur dans ce domaine.

Également, je tiens à remercier les personnes qui m'ont soutenue au laboratoire et dans la compréhension de notions théoriques: Pauline Fournier, Michelle Bordeleau, Sébastien Duval, René Rodrigue et Lise Rancourt. Merci de votre patience, de votre gentillesse et sachez que vous êtes des personnes sans qui la recherche n'aurait pas la même couleur.

J'exprime aussi toute ma gratitude à Madame Montserrat Filella de l'université de Genève et à Peter Campbell de l'INRS-ETE qui ont bien voulu accepter d'évaluer mon mémoire. Leurs critiques très pertinentes, en particulier concernant mes calculs de spéciation, m'ont permis de corriger des erreurs que j'avais commises dans la première version de mon manuscrit. Je leur en suis très reconnaissante.

Résumé

Nous avons mesuré l'antimoine (Sb) ainsi que plusieurs variables géochimiques dans des carottes de sédiments datées (^{210}Pb ; ^{137}Cs) et dans des échantillons d'eaux interstitielles prélevés dans la partie la plus profonde de deux bassins du lac Tantaré, lequel est situé à 40 km de la ville de Québec, et du seul bassin du lac Vose, lequel se trouve à 25 km de la fonderie Horne de Rouyn-Noranda. L'hypolimnion d'un des bassins échantillonnés du lac Tantaré est oxygéné en permanence, tandis que celui de l'autre est saisonnièrement anoxique; l'hypolimnion du lac Vose est également saisonnièrement anoxique. Dans ces deux lacs du Bouclier canadien dont les bassins versants n'ont pas été perturbés par des activités humaines, l'antimoine d'origine anthropique provient essentiellement de l'atmosphère. Les formes chimiques spécifiques les plus probables de Sb dans les eaux interstitielles et dans les eaux sus-jacentes aux sédiments ont été estimées par des calculs thermodynamiques avec le logiciel MINEQL+. À l'aide d'un modèle diagénétique de transport-réaction appliqué aux profils de Sb dans les eaux interstitielles, nous avons déterminé les vitesses nettes des réactions impliquant Sb (R_{net}^{Sb}) en fonction de la profondeur dans les sédiments. Les valeurs de R_{net}^{Sb} ont alors été utilisées pour calculer la teneur de Sb ajoutée aux sédiments (ou soustraite de ces derniers) par la diagenèse, ce qui a permis ultimement de reconstituer les variations chronologiques du flux du dépôt atmosphérique de Sb anthropique à chacun des sites d'étude depuis le début de l'ère industrielle.

Les résultats montrent que les teneurs en Sb dans les sédiments sont, selon les lacs, de 18 à 31 fois supérieures à l'abondance de cet élément dans la croûte continentale supérieure. Au bassin oxygéné en permanence du lac Tantaré, la modélisation des profils de Sb dans les eaux interstitielles révèle une zone de production de Sb dissous entre 2 et 4 cm de profondeur, laquelle est comprise entre deux zones de consommation. Au bassin saisonnièrement anoxique du lac Tantaré et au lac Vose, nos résultats indiquent toutefois que Sb dissous diffuse de la colonne d'eau vers le sédiment où il se fixe à la phase solide par des réactions qui n'ont pas pu être identifiées. Dans tous les cas, la teneur en Sb ajoutée aux sédiments par les processus diagénétiques ne représente cependant qu'une petite fraction des teneurs mesurées. La reconstitution chronologique du flux du dépôt de Sb d'origine anthropique dans les sédiments

montre qu'au lac Tantaré, ce flux a augmenté fortement à partir de la fin du 19^{ième} siècle, puis a atteint jusqu'à 200-250 pmol cm⁻² a⁻¹ vers le milieu du 20^{ième} siècle, et a ensuite diminué par environ 75 % entre cette époque et le début des années 2000. Au lac Vose, le flux maximum du dépôt de Sb est légèrement supérieur à celui enregistré au lac Tantaré. Les valeurs de ce flux ont augmenté lentement à partir du début du 20^{ième} siècle, ont atteint un sommet vers la fin des années 1970, puis ont diminué abruptement par la suite. Nos données mènent à la conclusion que la combustion du charbon et les émissions dans l'atmosphère de la fonderie Horne de Rouyn-Noranda ont respectivement constituées la principale source de contamination en Sb au lac Tantaré et au lac Vose.

TABLE DES MATIÈRES

Remerciements	iii
Résumé	v
Table des matières	vii
Liste des figures	ix
Liste des tableaux	xi
1. Introduction	1
1.1. Contamination de l’atmosphère par l’antimoine.....	1
1.2. Enregistrements sédimentaires de la contamination par les éléments traces.....	4
1.3. L’antimoine: Un élément non essentiel à la vie.....	5
1.4. Objectif général et objectifs spécifiques.....	6
2. Méthodologie	7
2.1. Sites d’étude.....	7
2.1.1. <i>Lac Tantaré</i>	7
2.1.2. <i>Lac Vose</i>	8
2.2. Prélèvements des échantillons.....	8
2.3. Analyse des sédiments.....	13
2.4. Analyse des eaux sus-jacentes aux sédiments et des eaux interstitielles.....	13
2.5. Datation et taux d’accumulation des sédiments.....	14
3. Résultats	17
3.1. Distribution verticale en Sb, Fe et Mn dans les sédiments.....	17
3.2. Distribution verticale en Sb, Fe, Mn, SO_4^{2-} et $\Sigma\text{S}(-\text{II})$ dans les eaux interstitielles.....	20
3.2.1. <i>Lac Tantaré (bassin A, hypolimnion oxygéné en permanence)</i>	20
3.2.2. <i>Lac Tantaré (bassin B, hypolimnion saisonnièrement anoxique)</i>	21
3.2.3. <i>Lac Vose (hypolimnion saisonnièrement anoxique)</i>	23
3.3. Calculs de la spéciation de Sb en phase aqueuse.....	23
4. Discussion	27
4.1. Modélisation des profils de Sb dans les eaux interstitielles.....	27
4.1.1. <i>Détermination des coefficients D_w, D_s, D_B et α</i>	29
4.1.2. <i>Taux nets des réactions diagénétiques impliquant Sb</i>	31
4.1.3. <i>Analyse de la robustesse des résultats découlant de la modélisation</i>	33
4.2. Réactions susceptibles d’impliquer Sb lors de la diagenèse précoce.....	33
4.3. Quantification de la redistribution post-dépôt.....	35
4.4. Variations chronologiques des flux du dépôt atmosphérique de Sb d’origine anthropique.....	39
4.4.1. <i>Lac Tantaré</i>	40
4.4.2. <i>Lac Vose</i>	41
5. Conclusions	43

6. Bibliographie.....	45
Annexe A.....	53
Annexe B.....	91
Annexe C.....	97

LISTE DES FIGURES

- Figure 1.** Emplacement géographique approximatif dans la province de Québec et profil bathymétrique des lacs Tantaré (bassins A et B) et Vose. Les sites d'échantillonnage sont représentés par les points.
- Figure 2.** Carotte de sédiment prélevée en plongée avec un cylindre en butyrate de 9,5 cm de diamètre. Les carottes avaient une longueur d'au moins 30 cm.
- Figure 3.** Représentation schématique (gauche) et photographie (droite) d'un échantillonneur permettant de prélever les eaux interstitielles des sédiments par dialyse *in situ*.
- Figure 4.** Profils du rapport Sb/Al (**a-c**) et des teneurs en Sb (**d-f**), Fe (**g-i**) et Mn (**j-l**) dans les sédiments des bassins A et B du lac Tantaré et dans ceux du lac Vose. Les dates de prélèvements des carottes de sédiment sont également indiquées.
- Figure 5.** Profils de [Sb] (**a-d**), [Fe] (**e-h**), [Mn] (**i-l**), [$\Sigma S(0)$] (**m-p**), [SO_4^{2-}] et [$\Sigma S(-II)$] (**q-t**) dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles des sédiments du bassin A du lac Tantaré en juillet 2003 (hypolimnion oxygéné), du bassin B du même lac en septembre 2006 (hypolimnion anoxique) et en juillet 2007 (hypolimnion oxygéné), ainsi que du lac Vose en septembre 2003 (hypolimnion anoxique). Il est à noter que lorsque les éléments furent mesurés dans un échantillon provenant d'un même dialyseur, les données sont représentées par un symbole unique.
- Figure 6.** Spéciation calculée de Sb en fonction de la profondeur dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles des sédiments du bassin A du lac Tantaré en juillet 2003 (**a** et **b**), du bassin B du même lac en septembre 2006 (**c** et **d**) et en juillet 2007 (**e** et **f**), ainsi que du Lac Vose en septembre 2003 (**g** et **h**). Dans la colonne de gauche sont représentées les variations en fonction de la profondeur des pourcentages des espèces $HSb^{III}Sb^VS_5^-$ (\blacksquare), $Sb(OH)_3^0$ (\blacklozenge) et $Sb(OH)_6^-$ (\bullet) par rapport à Sb total. Dans la colonne de droite les traits pleins vert et gris représentent respectivement le pourcentage de Sb total sous forme de Sb(III) et de Sb(V). Enfin, la ligne horizontale pointillée représente l'interface eau-sédiment.
- Figure 7.** Teneurs de Sb dissous prédites et mesurées en fonction de la profondeur au bassin A du lac Tantaré (**a**), au bassin B du même lac en septembre 2006 (**b**) et en juillet 2007 (**c**) et au lac Vose (**d**). Les losanges gris sont les valeurs moyennes mesurées ($n=3$) de [Sb], les lignes courbes rouges représentent les meilleurs ajustements entre les valeurs mesurées et les valeurs modélisées avec PROFILE (les valeurs de r^2 sont celles de ces ajustements), le trait rectiligne bleu définit les zones pour lesquelles les taux nets des réactions de production et de consommation de Sb dissous ont été obtenus et la ligne horizontale pointillée représente l'interface eau-sédiment.

Figure 8. Logarithme du produit d'activité ionique calculé ($\log \text{PAI}$) pour la stibnite ($\text{Sb}_2\text{S}_3(\text{s})$) à chacun des sites. Le trait pointillé vertical représente la valeur du produit de solubilité de $\text{Sb}_2\text{S}_3(\text{s})$ ($\log K_S = -91,868$; Filella et May, 2003) et le trait pointillé horizontal indique l'interface eau-sédiment.

Figure 9. Profils verticaux de $\{\text{Sb}\}_{\text{diag}}$ (○), de $\{\text{Sb}\}_{\text{mes}}$ (■) et de $\{\text{Sb}\}_{\text{hist}}$ (●) en fonction de la profondeur dans les carottes de sédiment des bassins A (a) et B (b) du lac Tantaré et du lac Vose (c).

Figure 10. Chronologie des flux du dépôt atmosphérique de Sb d'origine anthropique ($^{\text{Sb}}J_{\text{atm}}$) aux bassins A et B du lac Tantaré (a) et au lac Vose (b). En (a), la somme de 13 des plus importants hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), telle que rapportée par Gallon (2005), est également représentée par le trait plein rouge. En (b), les flux de Pb provenant de la fonderie Horne de Rouyn-Noranda (Gallon *et al.*, 2006) sont représentés par le trait plein rose.

LISTE DES TABLEAUX DU MÉMOIRE

- Tableau 1.** Constantes d'équilibre (force ionique $I = 0$, $T = 25^{\circ}\text{C}$) des réactions considérées lors des calculs de spéciation.
- Tableau 2.** R_{net}^{Sb} en fonction de la profondeur déterminé avec le programme informatique PROFILE pour les bassins A et B du lac Tantaré, ainsi que pour le lac Vose.

LISTE DES TABLEAUX DE L'ANNEXE A

- Tableau A1.** Composition sédimentaire du bassin A du lac Tantaré.
- Tableau A2.** Composition sédimentaire du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006).
- Tableau A3.** Composition sédimentaire du lac Vose (août 2002).
- Tableau A4.** Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin A du lac Tantaré (juillet 2003).
- Tableau A5.** Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin A du lac Tantaré (juillet 2003).
- Tableau A6.** Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006).
- Tableau A7.** Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006).
- Tableau A8.** Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (juillet 2007).
- Tableau A9.** Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (juillet 2007).
- Tableau A10.** Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du lac Vose (septembre 2003).
- Tableau A11.** Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du lac Vose (septembre 2003).

Tableau A12. Masse sèche, porosité, vitesse d'accumulation et datation des sédiments du bassin A du lac Tantaré.

Tableau A13. Masse sèche, porosité, vitesse d'accumulation et datation des sédiments du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006).

Tableau A14. Masse sèche, porosité, vitesse d'accumulation et datation des sédiments du lac Vose (août 2002).

LISTE DES TABLEAUX DE L'ANNEXE B

Tableau B1. Résultats des calculs de la spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le bassin A du lac Tantaré.

Tableau B2. Résultats des calculs de la spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le bassin B du lac Tantaré lorsque l'hypolimnion est anoxique (septembre 2006).

Tableau B3. Résultats des calculs de la spéciation pour le bassin B du lac Tantaré lorsque l'hypolimnion est oxygéné (juillet 2007).

Tableau B4. Résultats des calculs de la spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le lac Vose lorsque l'hypolimnion est anoxique (septembre 2003).

LISTE DES TABLEAUX DE L'ANNEXE C

Tableau C1. Émissions mondiales de Sb (tonnes a⁻¹) dans l'environnement par secteur industriel et par continent (Pacyna et Pacyna, 2001).

Tableau C2. Analyse de robustesse des modèles de prédiction en faisant varier les concentrations de Sb dissous ([Sb]) et la densité du chironome *Sergentia coracina* (voir section 4.1.3).

Tableau C3. Emplacements et caractéristiques générales des sites d'étude.

Tableau C4. Précision et justesse des méthodes analytiques telles que déterminées suite à l'analyse (n = 3) du standard de sédiment MESS-3, ainsi que du standard d'eau TM-DWS lorsque nous avons analysé les échantillons du bassin B du lac Tantaré.

1. INTRODUCTION

1.1. Contamination de l'atmosphère par l'antimoine

Les éléments traces émis dans l'atmosphère par les activités humaines peuvent être transportés sur de longues distances avec les masses d'air avant de se déposer sur la surface terrestre. Conséquemment, même les sols et les milieux aquatiques situés loin des sources d'émissions sont contaminés par divers métaux et métalloïdes traces, et ce, tant aux échelles régionale que globale (Carignan et Nriagu, 1985; Carignan *et al.*, 1994; Gélinas *et al.*, 2000; Barbante *et al.*, 2004; Couillard *et al.*, 2004; Telmer *et al.*, 2004; Gallon *et al.*, 2005; Clemente *et al.*, 2008). Plusieurs études ont notamment démontré que les régions polaires des hémisphères nord et sud sont contaminées par le Pb (Ng et Patterson, 1981; Boutron *et al.*, 1995; Outridge *et al.*, 2002; Shotyk *et al.*, 2005) et le Hg (Vandal *et al.*, 1993; Semkin *et al.*, 2005; Shotyk *et al.*, 2005; Bargagli *et al.*, 2007). Récemment, l'analyse d'une carotte de glace de l'île Devon dans l'Archipel de l'Arctique canadien révélait aussi que plus de 99 % du dépôt atmosphérique de l'antimoine (Sb) à cette latitude proviendrait de l'activité anthropique mondiale (Krachler *et al.*, 2005, 2008). Dans l'ensemble, cependant, il y a encore très peu de données sur la contamination de l'environnement par de nombreux éléments traces, dont Sb, et sur l'évolution temporelle de cette contamination.

Le Sb est émis dans l'atmosphère sous formes de gaz (SbH_3), d'ions (SbO_2^-) et de particules (Sb, Sb_2O_3 ou Sb_2O_5), principalement à cause de la combustion des carburants fossiles, surtout le charbon, de l'extraction et de la fonte des métaux et de l'incinération des déchets (Ragaini *et al.*, 1977; MARC Report No. 30, 1983; Pacyna et Pacyna, 2001; Paoletti *et al.*, 2001; Telmer *et al.*, 2004; Wilson *et al.*, 2004). D'autres sources non négligeables de contamination environnementale en Sb ont aussi été identifiées. Par exemple, des études ont montré que Sb contenu dans les plantes croissant à proximité des autoroutes et des zones urbaines provient presque exclusivement du trafic routier (Dietl *et al.*, 1997; Weckwerth, 2001). Selon Weckwerth (2001), cette situation est due au fait que de fines particules enrichies en Sb sont libérées dans l'atmosphère lors de l'usure des sabots de freins des véhicules.

Antimoine: Histoire, propriétés chimiques et utilisations¹

L'antimoine est connu depuis le iv^{ème} millénaire av. J.-C.; il l'était notamment des Babyloniens. Ce mot provient de *anti* et *monos* en grec, lesquels signifient « ne se retrouve pas seul ». En effet, l'antimoine a toujours été associé à d'autres métaux. Dans l'Antiquité, on utilisait le mot grec *stimmi* qui désignait un sulfure d'antimoine (stibnite). Le mot *stibium*, qui est à l'origine du symbole Sb, aurait été évoqué par Pline l'Ancien, un important écrivain et naturaliste romain. Ensuite, au Moyen Âge, le mot latin *antimonium* est apparu dans le langage des alchimistes de l'époque, et son origine proviendrait d'une succession de décès survenus parmi les moines qui effectuaient des travaux de recherche sur Sb.

L'antimoine est un élément chimique de la famille des pnictogènes², de numéro atomique 51, et est classé comme métalloïde. Les principaux états d'oxydation rencontrés sont +3 et +5. À l'état minéral, on retrouve l'antimoine principalement sous forme de sulfure (Sb_2S_3), combiné ou non avec d'autres métaux, et sous forme d'oxyde (Sb_2O_3).

Dans l'Antiquité, l'antimoine était utilisé comme médicament et comme composant des premiers cosmétiques, comme le mascara. De nos jours, on s'en sert surtout pour former des alliages avec le plomb, ceux-ci étant destinés à la fabrication d'accumulateurs dans les automobiles. L'ajout de Sb dans ces alliages augmente leur résistance (McCutcheon, 2002). L'antimoine métallique entre en outre dans la fabrication de diverses pièces pour les automobiles, entre autres les roulements mécaniques, et sert aussi de brasure pour l'assemblage de métaux. On peut noter que le recyclage des accumulateurs au plomb dans les véhicules automobiles et les batteries de secours est pratique courante et permet de récupérer une bonne partie de Sb.

Le plomb antimonié est de plus employé comme revêtement protecteur dans les conduites, les valves et les pompes utilisées dans l'industrie chimique. Les alliages contenant de l'antimoine sont en outre utilisés dans la fabrication de caractères d'imprimerie, de cartouches de munitions pour la chasse et de semi-conducteurs (InSb et GaSb) (McCutcheon, 2002). Lorsqu'il est ajouté aux matières plastiques sous la forme d'oxyde (Sb_2O_3), Sb rend ces matériaux moins inflammables.

Encadré 1. Antimoine: Histoire, propriétés chimiques et utilisations.

¹ Certaines notions de chimie générale sont tirées de la banque de données Wikipédia offerte sur internet.

² Les pnictogènes sont les éléments de la quinzième colonne de la classification périodique des éléments et incluent, entre autres, l'azote (N) et l'arsenic (As).

Selon les travaux de Nriagu et Pacyna (1988) et de Pacyna et Pacyna (2001), lesquels s'appuient sur les données disponibles sur la consommation et la production industrielle dans de nombreux pays, les émissions de Sb dues à la combustion du charbon, la production primaire de cuivre et d'autres métaux non-ferreux et l'incinération des déchets municipaux, ont considérablement augmenté au cours du 20^{ième} siècle, atteignant un sommet de près de 4000 tonnes par année en 1983 (tableau C1). Nriagu (1990) et Cal-Prieto *et al.* (2001) ont indiqué qu'en 1990, les rejets de Sb d'origine anthropique dans l'atmosphère surpassaient de 100 à 200 fois ceux provenant de sources naturelles, notamment des volcans.

Cependant, probablement en raison des efforts déployés par plusieurs pays industrialisés pour réduire leurs rejets polluants (Pacyna et Pacyna, 2001), les émissions de Sb dans l'atmosphère causées par la combustion des carburants fossiles auraient décliné d'environ 50 % entre 1983 et 1995 (tableau C1). Celles dues à la production primaire du cuivre et de métaux non-ferreux auraient aussi diminué respectivement de 70 % et de 60 % au cours de la même période. Selon Pacyna et Pacyna (2001), les émissions de la plupart des éléments traces dans l'atmosphère auraient en outre continué à diminuer après 1995 en Amérique du Nord, probablement à cause des politiques environnementales de plus en plus efficaces. En Asie, une tendance inverse semble par contre se dessiner, laquelle serait probablement liée à la demande sans cesse croissante de carburants fossiles pour la production d'énergie dans ce continent en émergence (Pacyna et Pacyna, 2001). Les mesures directes dans l'environnement qui confirmeraient ou infirmeraient les tendances temporelles énoncées précédemment, ou qui feraient ressortir les disparités régionales de la contamination en Sb, sont toutefois presque inexistantes dans la littérature scientifique. Cette constatation s'applique particulièrement à la province de Québec; l'activité minière et métallurgique a pourtant été et est toujours importante dans cette province. Le territoire québécois est en outre affecté par les émissions dues à la combustion du charbon pour la production d'énergie en Ontario et dans le nord des États-Unis (Gallon *et al.*, 2005; Couture *et al.*, 2008; Chappaz *et al.*, 2008).

1.2. Enregistrements sédimentaires de la contamination par les éléments traces

Les éléments traces qui sont introduits dans les milieux aquatiques ont souvent tendance à s'associer aux particules en suspension et à se déposer à l'interface eau-sédiment. Les sédiments lacustres sont en l'occurrence d'importants réservoirs de métaux traces et peuvent être utilisés pour reconstituer l'évolution temporelle de la contamination de l'environnement (Nriagu *et al.*, 1982; Carignan et Nriagu, 1985; Kada et Heit, 1992; Gélinas *et al.*, 2000; El Bilali *et al.*, 2002; Couillard *et al.*, 2004; Yang et Rose, 2005; Grahn *et al.*, 2006; Biester *et al.*, 2007; Mayer *et al.*, 2007). Cette information est entre autres nécessaire pour évaluer le succès des mesures et des politiques environnementales adoptées pour réduire les émissions polluantes. Il y a des avantages évidents à utiliser les sédiments lacustres comme archives environnementales pour évaluer la contamination de l'atmosphère. En effet, on peut choisir des lacs isolés dont les bassins versants sont restés intacts et où les seuls apports de contaminants proviennent par conséquent de l'atmosphère. De plus, les taux de sédimentation en milieu lacustre permettent souvent de décrire l'évolution temporelle de la contamination sur des dizaines, voire même des centaines d'années.

L'interprétation des enregistrements sédimentaires d'un élément donné en termes de variations temporelles de son dépôt à l'interface eau-sédiment est cependant complexe, car plusieurs processus contribuent à façonner les enregistrements sédimentaires (Boudreau, 1999). On doit considérer les variations temporelles des taux d'accumulation des sédiments, la focalisation des sédiments à l'intérieur même des lacs (Kada et Heit, 1992), ainsi que la redistribution post-dépôt de l'élément étudié à cause du mélange des sédiments, de la bio-irrigation et des réactions dans lesquelles l'élément est impliqué au voisinage de l'interface eau-sédiment (Carignan et Nriagu, 1985; Boudreau, 1997). On a notamment suggéré que Sb s'associe aux oxyhydroxydes de Fe et de Mn qui se forment dans les sédiments (Belzile *et al.*, 2001; Chen *et al.*, 2003) et qu'il pourrait aussi précipiter sous la forme de sulfures en milieu anoxique (Helz *et al.*, 2002; Filella *et al.*, 2002b; Filella et May, 2003). L'interprétation adéquate des profils d'éléments traces dans les sédiments dépend donc de notre capacité à prendre en compte ces processus. Or, de nombreux travaux publiés dans la littérature scientifique négligent de le faire. Dans le but d'évaluer avec une certaine fiabilité la contribution

relative d'un élément trace provenant de sources anthropiques à partir de carottes de sédiments datées, la redistribution post-dépôt de l'élément se doit notamment d'être quantifiée en modélisant sa distribution dans les eaux interstitielles (Alfaro-De la Torre et Tessier, 2002; Gallon, 2005; Gallon *et al.*, 2004, 2005, 2006; Clemente *et al.*, 2008; Chappaz *et al.*, 2008; Couture *et al.*, 2008).

1.3. L'antimoine: un élément non essentiel à la vie

Sb n'est pas un élément essentiel au fonctionnement des organismes vivants (Fowler et Goering, 1991; Bienert *et al.*, 2007). Plus particulièrement, Sb trivalent (Sb(III)) est davantage toxique que Sb pentavalent (Sb(V)) (Winship, 1987; Gebel, 1997). Une étude toxicologique de De Boeck *et al.* (2003) indique que le Sb, administré chez les rats sous la forme de Sb_2O_3 , pourrait nuire à la réplication de l'ADN cellulaire mammalienne. Également, d'autres études toxicologiques ont démontré, par des tests *in vivo*, que Sb engendrerait des dommages importants à l'ADN cellulaire chez le hamster, lorsqu'administré sous la forme de SbCl_3 (Huang *et al.*, 1998; Takahashi *et al.*, 2002). Il y a cependant peu d'études approfondies en ce qui a trait à l'impact de Sb sur la santé humaine. Il apparaît toutefois qu'une exposition prolongée aux composés dérivés de Sb peut causer une irritation du système respiratoire et que, selon McCallum (2005), l'exposition à l'antimoine ou à ses dérivés peut provoquer des dermatites, des kératites, des conjonctivites et des gastrites. On peut aussi souligner que l'Agence de Protection Environnementale des États-Unis (« USEPA ») inclut Sb, notamment sous sa forme Sb_2O_3 , dans le groupe des polluants prioritaires et potentiellement cancérigènes pour l'être humain (USEPA, 2009).

Selon le Ministère de la Santé du Canada, les concentrations en Sb dans les eaux de surface du pays se situent généralement entre 1 et 10 $\mu\text{g L}^{-1}$. La norme qualifiée de « provisoire » recommandée par ce ministère en ce qui concerne la concentration maximale acceptable en Sb dans l'eau potable est de 6 $\mu\text{g L}^{-1}$ (Santé Canada, 1999). En outre, les eaux naturelles contiennent typiquement moins de 1 $\mu\text{g L}^{-1}$ de Sb (Filella *et al.*, 2002b). Des travaux récents ont par ailleurs démontré que la concentration de Sb dans les eaux embouteillées dans

des contenants en polyéthylène téréphthalate (PET) augmente jusqu'à près de 100 fois pendant l'entreposage, car le trioxyde d'antimoine est utilisé comme catalyseur dans la fabrication de ce polymère (Shotyk *et al.*, 2006; Shotyk et Krachler, 2007). Les concentrations mesurées après l'entreposage de l'eau dans les bouteilles, soit environ 150-200 ng L⁻¹, demeurent néanmoins nettement inférieures à la norme recommandée par le Ministère de la Santé du Canada.

1.4. Objectif général et objectifs spécifiques

Étant donné que Sb est un élément non essentiel aux organismes, qu'il est de plus en plus utilisé dans les procédés industriels et qu'il y a peu d'études concernant ses émissions anthropiques, il s'avère pertinent d'entreprendre des travaux sur la contamination de l'environnement par cet élément. L'objectif général de cette étude est d'approfondir nos connaissances sur la diagenèse de Sb dans les sédiments lacustres, et d'évaluer les variations chronologiques du dépôt atmosphérique de Sb dans deux lacs isolés du Québec à partir des enregistrements sédimentaires. Les objectifs spécifiques sont:

- 1) de quantifier la redistribution post-dépôt de Sb dans la colonne sédimentaire par le biais de la modélisation de sa distribution dans les eaux interstitielles des sédiments;
- 2) d'évaluer l'importance relative des contributions naturelles et anthropiques de Sb dans les sédiments et de reconstituer l'historique du flux de dépôt de Sb d'origine atmosphérique aux sites d'étude;
- 3) et de cibler les principales sources anthropiques de Sb en comparant les profils des flux de Sb à ceux d'autres éléments provenant de sources connues.

2. MÉTHODOLOGIE

2.1. Sites d'étude

Le choix des sites d'étude, soit les lacs Tantaré et Vose (figure 1), a été effectué en fonction des trois critères de sélection suivants:

- 1) le rapport entre la surface du lac et celle du bassin versant devait être élevé, de manière à ce que le flux de Sb provenant du bassin versant soit le plus faible possible relativement au dépôt atmosphérique de Sb;
- 2) le bassin versant ne devait jamais avoir été habité par l'homme ou perturbé par des coupes de bois massives ou des feux de forêt, ce qui aurait pu altérer le taux de sédimentation et, par conséquent, rendre plus complexe l'interprétation des enregistrements sédimentaires;
- 3) enfin, l'irrigation et le mélange des sédiments par les organismes benthiques devaient être minimales, ce qui est souvent le cas dans les sédiments qui s'accumulent dans les bassins lacustres où l'hypolimnion est saisonnièrement anoxique, de manière à minimiser des modifications des enregistrements sédimentaires par la bio-irrigation et la bio-perturbation.

2.1.1. Lac Tantaré (47°04' N, 71°32' O)

Le lac Tantaré est situé dans une réserve écologique à environ 40 km au nord-ouest de la ville de Québec (figure 1). Ses coordonnées géographiques et quelques-unes de ses caractéristiques physico-chimiques sont données au tableau C3. Aucune activité humaine importante n'est venue perturber le bassin versant de ce lac et aucun feu de forêt n'y est jamais survenu depuis qu'il existe des enregistrements à cet effet, soit depuis 1940. Une seule coupe de bois sélective y a été effectuée entre 1961 et 1972; celle-ci n'a affecté qu'environ 2 % de la superficie du bassin versant. Le lac Tantaré est un petit lac de tête (1,1 km²), acide (pH de la colonne d'eau entre 5,3 et 5,6) et oligotrophe (production primaire de 50 mg C m⁻² j⁻¹; Hare *et al.*, 1994), qui comporte quatre bassins séparés par des seuils peu profonds. Le rapport entre la surface de ce lac et celle de son bassin versant est de 0,12 (Laforte *et al.*, 2005).

La présente étude a pris place dans les parties les plus profondes des bassins A (15 m) et B (21 m), lesquels sont identifiés à la figure 1. Durant les périodes de stratification de la colonne

d'eau, la concentration en O₂ diminue progressivement dans l'hypolimnion, celui-ci pouvant devenir saisonnièrement anoxique par endroit, ce qui est notamment le cas au bassin B. Cette anoxie saisonnière nous permet de présumer que la bio-irrigation et la bio-diffusion (ou bio-perturbation) sont peu importantes, voire négligeables, dans les sédiments de ce bassin. Moins profond, le bassin A demeure cependant oxygéné en permanence. Selon Hare *et al.* (1994), les sédiments y sont colonisés par une faune benthique constituée majoritairement du chironome *Sergentia coracina*, dont la population est de 1080±140 animaux par m². La bio-diffusion n'y occasionne toutefois pas d'altération significative des enregistrements sédimentaires des métaux (Alfaro-De la Torre et Tessier, 2002; Laforte *et al.*, 2005; Gallon *et al.*, 2004). Tel que nous le discuterons ci-après, l'effet de la bio-irrigation sur l'accumulation de Sb dans les sédiments est également très faible.

2.1.2. Lac Vose (48°28' N, 78°50' O)

Le lac Vose se situe dans le parc d'Aiguebelle à environ 25 km au nord-est de la fonderie de cuivre Horne de Rouyn-Noranda, laquelle est en opération depuis 1927 (figure 1). Ses coordonnées géographiques et quelques-unes de ses caractéristiques physico-chimiques sont données au tableau C3. Le bassin versant de ce lac, qui se trouve dans la direction des vents dominants par rapport à cette fonderie (Quirion, 2004), n'a lui aussi jamais été affecté par des coupes de bois ou par un incendie de forêt. Il s'agit d'un petit lac (0,12 km²) oligotrophe et légèrement acide (pH de la colonne d'eau entre 6,4 et 6,7). Le rapport entre la surface du lac Vose et celle de son bassin versant est de 0,03 (Laforte *et al.*, 2005). L'hypolimnion de ce lac devient saisonnièrement anoxique, ce qui entrave la colonisation des sédiments par des organismes benthiques perturbateurs. La figure 1 montre son emplacement géographique, ainsi que sa bathymétrie.

2.2. Prélèvements des échantillons

Des carottes de sédiments furent prélevées en juin 2002 et en juillet 2003 au bassin A du lac Tantaré, en septembre 2006 au bassin B du même lac et en août 2002 au lac Vose. Les prélèvements furent effectués par des plongeurs munis de cylindres en butyrate de 9,5 cm de

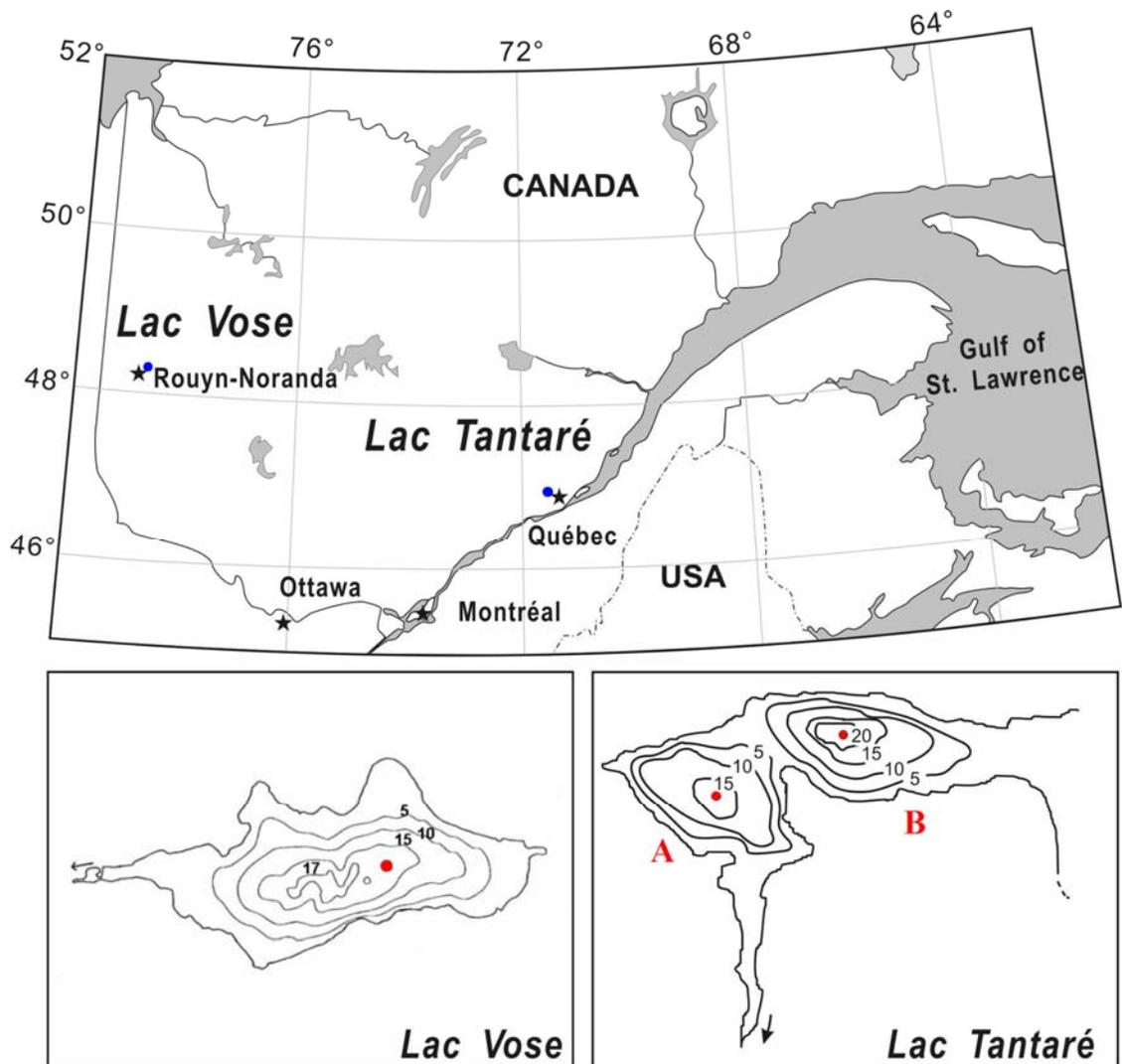


Figure 1. Emplacement géographique approximatif dans la province de Québec et profil bathymétrique des lacs Tantaré (bassins A et B) et Vose. Les sites d'échantillonnage sont représentés par les points.

diamètre (figure 2). Les carottes, dont la longueur atteignait au moins 30 cm, furent immédiatement sectionnées en couches de 0,5 cm d'épaisseur entre la surface et 10 cm ou 15 cm de profondeur, puis en couches de 1 cm d'épaisseur jusqu'à 25 ou 30 cm de profondeur. Les échantillons de sédiments furent entreposés dans des contenants en plastique et transportés dans une glacière jusqu'au laboratoire. Ils furent alors congelés, lyophilisés, homogénéisés par broyage, puis stockés dans des contenants en plastique.



Figure 2. Carotte de sédiment prélevée en plongée avec un cylindre en butyrate de 9,5 cm de diamètre. Les carottes avaient une longueur d'au moins 30 cm.

Les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles furent prélevées en juillet 2003 au bassin A du lac Tantaré, en septembre 2006 (hypolimnion anoxique) et en juillet 2007 (hypolimnion oxygéné) au bassin B du même lac et en septembre 2003 au lac Vose (hypolimnion anoxique). Dans tous les cas, les prélèvements furent effectués à environ 5 m du point de carottage par la technique de dialyse *in situ* (Carignan et Nriagu, 1985). Conçus pour échantillonner les eaux interstitielles avec une résolution de 1 cm, les échantillonneurs (dialyseurs) comportaient deux loges pouvant contenir chacune un volume de 4 mL d'eau par niveau de profondeur échantillonné (figure 3); une membrane à dialyse de type Gelman HT-200

(porosité de 0,2 μm) fut utilisée. Les dialyseurs furent insérés dans les sédiments durant trois semaines, de manière à obtenir des échantillons représentatifs de l'eau se trouvant entre 5 cm au dessus de l'interface eau-sédiment et 10 cm de profondeur sous cette interface. Lors de chaque prélèvement, trois échantillonneurs étaient déployés au même site de manière à pouvoir obtenir trois profils indépendants de chacune des variables géochimiques mesurées, soit le pH, les concentrations en cations et anions majeurs, Sb, les sulfures totaux ($\Sigma\text{S}(-\text{II})$), le soufre élémentaire total ($\Sigma\text{S}(0)$), ainsi que le C organique et inorganique dissous.

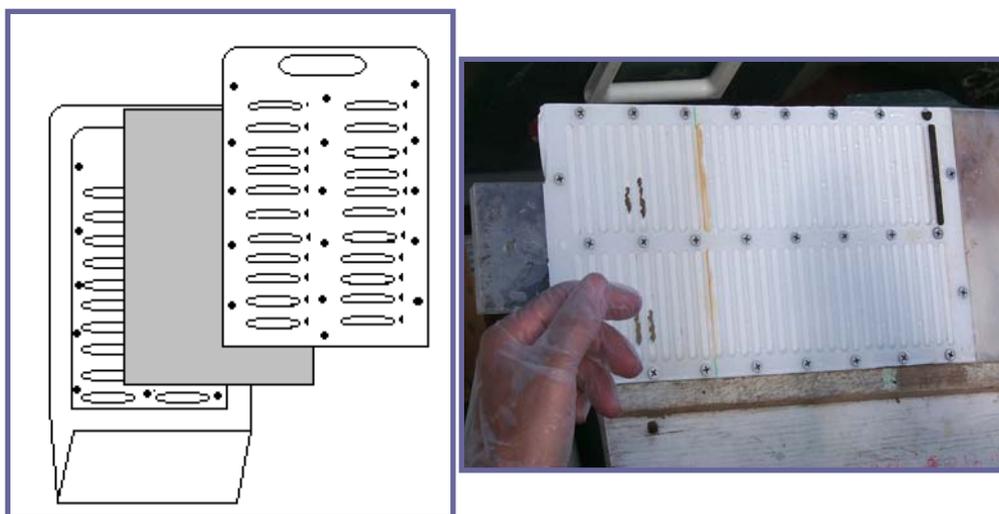


Figure 3. Représentation schématique (gauche) et photographie (droite) d'un échantillonneur permettant de prélever les eaux interstitielles des sédiments par dialyse *in situ*.

Il est à noter que, préalablement à leur déploiement au fond des lacs, les échantillonneurs furent préparés avec soin. Ils furent d'abord lavés à l'acide, rincés abondamment, puis remis sous une atmosphère d'azote durant deux semaines dans des caissons étanches spécialement conçus à cet effet. Les loges de 4 mL furent ensuite remplies d'eau déminéralisée et scellées avec la membrane à dialyse. Ensuite, le tout fut de nouveau remis sous une atmosphère d'azote renouvelée régulièrement pendant au moins trois semaines, et ce, jusqu'au moment des prélèvements.

Immédiatement après avoir retiré les dialyseurs du fond des lacs, des sous-échantillons de 2,5 mL furent recueillis pour la mesure des sulfures totaux ($\Sigma S(-II)$) et du soufre élémentaire total ($\Sigma S(0)$) à l'aide de seringues préalablement purgées à l'azote. De ce volume, 1,0 mL fut destiné à la mesure des sulfures totaux. Ces sous-échantillons de 1,0 mL furent conservés dans des contenants en verre ambré de 2 mL purgés à l'azote et scellés avec des septa en polytétrafluoroéthylène (« Teflon »). Nous avons préalablement ajouté à ces contenants 40 μ L d'une solution à 0,0027 M de sulfate de N,N'-diméthyl-*p*-phénylènediamine et 40 μ L d'une solution à 0,0055 M de FeCl₃. Les sous-échantillons restants de 1,5 mL furent destinés à la mesure du soufre élémentaire total. Ces derniers furent alors conservés dans des vials en verre ambré de 4 mL pré-pesés, auxquels nous avons ajouté 2,0 mL d'éthanol, 0,4 mL de nitrate de sodium (1 M), 40 μ L de tétrahydrofurane récemment distillé et 1 μ L d'acide nitrique (1 M). Des solutions témoins furent préparées avec de l'eau ultra-pure en y incorporant les mêmes réactifs.

Des sous-échantillons de 3 mL furent réservés pour mesurer l'antimoine dissous et les éléments majeurs (Na, K, Ca, Mg, Fe, Al et Mn). Ceux-ci furent prélevés en perçant la membrane filtrante des dialyseurs à l'aide d'une pipette munie d'un embout en plastique préalablement lavé avec HNO₃ (15 %). Ils furent conservés dans des contenants en polyéthylène à haute densité (« HDPE »), lesquels furent aussi prélavés à l'acide. Des solutions témoins furent préparées avec de l'eau déminéralisée et le même acide que celui utilisé pour les échantillons. Des sous-échantillons de 1,5 mL pour le dosage des anions SO₄²⁻, Cl⁻ et NO₃⁻ furent par ailleurs réservés dans des tubes à micro-centrifugation en polyéthylène rincés au préalable à l'eau déminéralisée.

Pour déterminer la concentration en C organique dissous, nous avons prélevé des sous-échantillons de 3 mL à l'aide d'une pipette munie d'un embout nettoyé préalablement avec une solution de persulfate de potassium, qui furent ensuite conservés dans des contenants en verre ambré, auxquels nous avons incorporé au préalable 30 μ L de HCl (1 M). Pour déterminer la teneur en C inorganique dissous, un volume de 500 μ L fût prélevé avec des seringues en polypropylène préalablement purgées avec N₂. Ces sous-échantillons furent stockés dans des éprouvettes étanches (Vaccutainer #6397) de 3 mL purgés à l'hélium, auxquelles nous avons ajouté 20 μ L de HCl (1 M).

Enfin, 1 mL d'échantillon fut utilisé pour la mesure du pH sur le terrain à l'aide d'un pH-mètre (HANNA Instruments) équipé d'une mini-électrode, laquelle était calibrée systématiquement après 15 mesures consécutives.

2.3. Analyse des sédiments

Des échantillons d'environ 0,25 g de sédiment sec et un standard certifié MESS-3 (« National Research Council of Canada, NRCC ») furent minéralisés dans des béchers en polytétrafluoroéthylène avec des acides ultra-purs (HNO_3 , HF et HClO_4) chauffés sur une plaque à une température légèrement inférieure au point d'ébullition. Après minéralisation complète, les acides furent évaporés presque à sec et le résidu, dissous dans 1,25 mL de HNO_3 concentré, fut récupéré et dilué à 50 mL avec de l'eau déminéralisée (McLaren *et al.*, 1995). Des solutions témoins furent préparées avec les mêmes acides en suivant la même procédure. L'antimoine dans les solutions finales fut mesuré à l'aide d'un spectromètre de masse couplé à un plasma induit par haute fréquence de type quadripôle (ICP-MS; Thermo Instrument X7), en utilisant un standard externe et un standard interne de rhodium (Rh) pour la calibration. L'Al, le Fe et le Mn furent mesurés à l'aide d'un spectromètre d'émission atomique couplé à un plasma induit par haute fréquence (ICP-AES, Vista AC CCD). Cette analyse fut réalisée en utilisant du chlorure de césium comme suppresseur d'ionisation. La précision et l'exactitude des mesures telles que déterminées par l'analyse répétée ($n=3$) du standard MESS-3, étaient de l'ordre de 5 %. Des informations complètes concernant les précisions et les justesses des mesures obtenues lors de l'analyse des sédiments du bassin A du lac Tantaré et du lac Vose sont disponibles dans Laforte (2005); les mêmes informations pour l'analyse des sédiments du bassin B du lac Tantaré sont données au tableau C4.

2.4. Analyse des eaux sus-jacentes aux sédiments et des eaux interstitielles

Trois profils indépendants dans les eaux interstitielles du pH et des concentrations en Sb, sulfure total ($\Sigma\text{S}(-\text{II})$), soufre élémentaire total ($\Sigma\text{S}(0)$), C organique et inorganique dissous,

cations majeurs (Na, K, Ca, Mg, Fe, Al, Mn), sulfate (SO_4^{2-}), chlorure (Cl^-) et nitrate (NO_3^-), furent déterminés à chaque site, et ce, lors de chacune des sorties sur le terrain.

L'antimoine dans les eaux interstitielles fut mesuré sans dilution préalable par ICP-MS en utilisant des étalons externes de Sb et un standard interne de Rh. Étant donné le faible volume d'eau interstitielle disponible (3 mL), un micro-nébuliseur a été employé pour minimiser la consommation d'échantillon. Les cations majeurs (Na, K, Ca, Mg, Fe, Al et Mn) furent dosés par ICP-AES avec un étalon externe. La précision et l'exactitude des mesures, telles que déterminées par l'analyse répétée ($n=3$) du standard TM-DWS étaient de l'ordre de 5-10 %. Des informations complètes concernant les précisions et les justesses des mesures obtenues lors de l'analyse des eaux interstitielles du bassin A du lac Tantaré et du lac Vose sont disponibles dans Laforte (2005); les mêmes informations pour l'analyse des eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré sont données au tableau C4.

Le sulfure total a été dosé par la méthode colorimétrique de Cline (1969) à l'aide d'un auto-analyseur (Lachat Quikchem, FIA⁺ 8000 de Zellweger Analytics) dans un délai de 24 heures après les prélèvements. Le soufre élémentaire total fut dosé moins de 48 heures après les prélèvements par la méthode polarographique élaborée par Wang *et al.* (1998). Les concentrations en sulfate, chlorure et nitrate furent déterminées par chromatographie ionique (Dionex DX-300 avec supprimeur d'ions AMMS-2, colonne IONPAC AG-14 et pré-colonne AS-14), celles en C inorganique par chromatographie en phase gazeuse (CombiPal 3800 de Varian) et celles en C organique dissous avec un analyseur de carbone (Shimadzu VCPH).

2.5. Datation et taux d'accumulation des sédiments

L'âge et les taux d'accumulation des sédiments furent déterminés par Couture *et al.* (2008) dans le cas des carottes des bassins A et B du Lac Tantaré, ainsi que par Laforte *et al.* (2005) pour celle du lac Vose. Ci-dessous, je résume brièvement la démarche des auteurs.

Des sous-échantillons de sédiments secs ont été placés dans des contenants scellés au moins un mois avant les analyses dans le but d'atteindre l'équilibre séculaire entre le ^{214}Pb et le ^{226}Ra . Les activités des radio-isotopes ^{210}Pb , ^{137}Cs et ^{214}Pb furent ensuite déterminées par spectrométrie γ (gamma) et corrigées pour la géométrie des échantillons et l'auto-absorption par le sédiment des radiations émises (Appleby *et al.*, 1986; Appleby *et al.*, 1992; Appleby et Piliposian, 2004; Schelske *et al.*, 1994; Carignan *et al.*, 1994). Il fut considéré que l'activité de ^{210}Pb en excès, i.e. le ^{210}Pb non produit par la désintégration du ^{226}Ra , est égale à la différence entre les activités mesurées du ^{210}Pb et celles du ^{214}Pb . L'interprétation des données de ^{210}Pb pour déterminer l'âge et le taux d'accumulation des sédiments a été effectuée selon les modèles géochronologiques conventionnels (Robbins, 1978) en présumant que le mélange des sédiments est négligeable. Cette présomption s'appuie, selon les lacs, sur les observations suivantes:

- 1) l'activité de ^{210}Pb en excès diminue linéairement en fonction de l'augmentation de la masse cumulée des sédiments;
- 2) l'année, telle que déterminée par la méthode de ^{210}Pb , du dépôt des sédiments dans lesquels l'activité de ^{137}Cs est maximale coïncide avec l'année pendant laquelle les retombées atmosphériques de ce radioélément artificiel furent les plus élevées (~1963);
- 3) la forme non évasée du pic sub-surface dans le profil de ^{137}Cs ;
- 4) ainsi que de l'absence notée, après l'inspection visuelle des échantillons, d'organismes benthiques dans les sédiments des trois lacs.

Les taux d'accumulation des sédiments (ω) varient entre 4,0 et 7,3 $\text{mg cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ au bassin A du lac Tantaré, entre 7,8 et 16,4 $\text{mg cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ au lac Vose et il est de 10,8 $\text{mg cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ au bassin B du lac Tantaré (Couture *et al.*, 2008; Laforte *et al.*, 2005).

3. RÉSULTATS

Je précise d'abord que les résultats de Sb obtenus pour les sédiments et les eaux interstitielles du lac Vose, de même que ceux pour les sédiments prélevés en juin 2002 et les eaux interstitielles prélevées en juillet 2003 au bassin A du lac Tantaré, furent acquis par Laforte (2005). Les données pour les sédiments prélevés en juillet 2003 au bassin A du lac Tantaré et toutes celles pour les sédiments et les eaux interstitielles prélevés en septembre 2006 et en juillet 2007 au bassin B du lac Tantaré, furent spécifiquement acquises dans le cadre du présent travail. Dans la suite de ce mémoire, [X] représente la concentration de la variable géochimique X dans la phase aqueuse, soit l'eau interstitielle ou l'eau sus-jacente aux sédiments, et {X} sa teneur dans la phase solide, en l'occurrence le sédiment. À moins d'indication contraire, les erreurs mentionnées sont des écarts-types. Afin d'alléger le texte, l'abréviation IES sera utilisée pour désigner l'interface eau-sédiment. Les principaux résultats sont illustrés sous forme de graphiques dans la présente section. Des tableaux de tous les résultats analytiques se retrouvent à l'annexe A.

3.1. Distribution verticale en Sb, Fe et Mn dans les sédiments

Les profils de {Sb} sont présentés à la figure 4 pour les bassins A et B du lac Tantaré et pour le lac Vose. Dans tous les cas, les teneurs minimales sont trouvées en bas de carotte, soit $0,66 \pm 0,12$, $0,47 \pm 0,18$ et $0,87$ nmol g⁻¹ respectivement aux bassins A et B du lac Tantaré et au lac Vose. Ces teneurs sont inférieures à celles rapportées pour des sédiments d'autres lacs du Bouclier canadien (1-2 nmol g⁻¹; Chen *et al.*, 2003) et pour la croûte continentale supérieure (2,5 nmol g⁻¹; Wedepohl, 1995). Elles sont toutefois similaires à la valeur moyenne de {Sb} dans les couches profondes d'une carotte du lac Hertel au Québec ($\sim 0,4$ - $0,8$ nmol g⁻¹; Gélinas *et al.*, 2000). Le rapport entre la teneur d'un élément trace et celle de l'Al, lequel est peu réactif dans les sédiments et y représente un constituant majeur, est souvent utilisé pour apprécier le niveau d'enrichissement de l'élément trace dans les sédiments (e.g. Alfaro-De la Torre et Tessier, 2002; Furuta *et al.*, 2005). Une valeur élevée de ce rapport, en comparaison avec la moyenne du même rapport dans la croûte terrestre, peut signifier un enrichissement diagénétique ou une

contamination due à l'activité humaine. Aux lacs Tantaré et Vose, les teneurs en Al (tableaux A1-A3) sont très constantes en fonction de la profondeur.

Dans la partie profonde des carottes, les rapports molaires Sb/Al sont respectivement de $2,35 \times 10^{-6}$, $1,61 \times 10^{-6}$ et $3,02 \times 10^{-6}$ aux bassins A et B du lac Tantaré et au lac Vose (figure 4a-c). Ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celles rapportées pour la croûte continentale supérieure ($3,87 \times 10^{-6}$; Wedepohl, 1995). Par contre, le rapport molaire Sb/Al maximum atteint dans chacune des carottes est de 18 à 31 fois supérieures à celui de la croûte continentale supérieure.

Les profils de {Sb} pour les deux carottes du bassin A du lac Tantaré, lesquelles furent prélevées à un an d'intervalle, sont pratiquement identiques (figure 4d). Les teneurs en Sb sont relativement constantes ($0,66 \pm 0,12 \text{ nmol g}^{-1}$ en juin 2002 et $0,47 \pm 0,18 \text{ nmol g}^{-1}$ en juillet 2003) en profondeur dans les carottes, puis augmentent en direction de l'IES pour atteindre près de 30 nmol g^{-1} à 4,25 cm de profondeur, pour ensuite diminuer d'environ 50 % entre cette profondeur et la surface du sédiment. Dans ce bassin où l'hypolimnion est oxygéné en permanence, on remarque un enrichissement en Fe au voisinage de l'IES (figure 4g), lequel est typique de la formation d'oxyhydroxydes de Fe dans ce bassin. Il n'y a cependant pas d'enrichissement en Mn dans les sédiments de surface (figure 4j); on notera que le pH acide du lac Tantaré (~5,3-5,6) ne permet pas la formation d'oxyhydroxydes de Mn (Laforte *et al.*, 2005). Bien que certains auteurs suggèrent que Sb s'associe aux oxyhydroxydes de Fe dans les systèmes lacustres (Belzile *et al.*, 2001; Chen *et al.*, 2003), on ne constate cependant pas d'enrichissement en Sb dans la couche des sédiments de surface où la concentration en Fe est élevée.

Au bassin B du lac Tantaré, le profil de {Sb} diffère sensiblement de celui des sédiments du bassin A (figure 4e). Ainsi, les teneurs dans les sédiments de surface et les teneurs maximales sub-surfaces y sont plus faibles, et ces dernières apparaissent plus en profondeur, soit vers 10 cm plutôt que 4 cm au bassin A. Par ailleurs, il n'y a pas de couche de surface enrichie en Fe dans les sédiments du bassin B, dont l'hypolimnion est saisonnièrement anoxique.

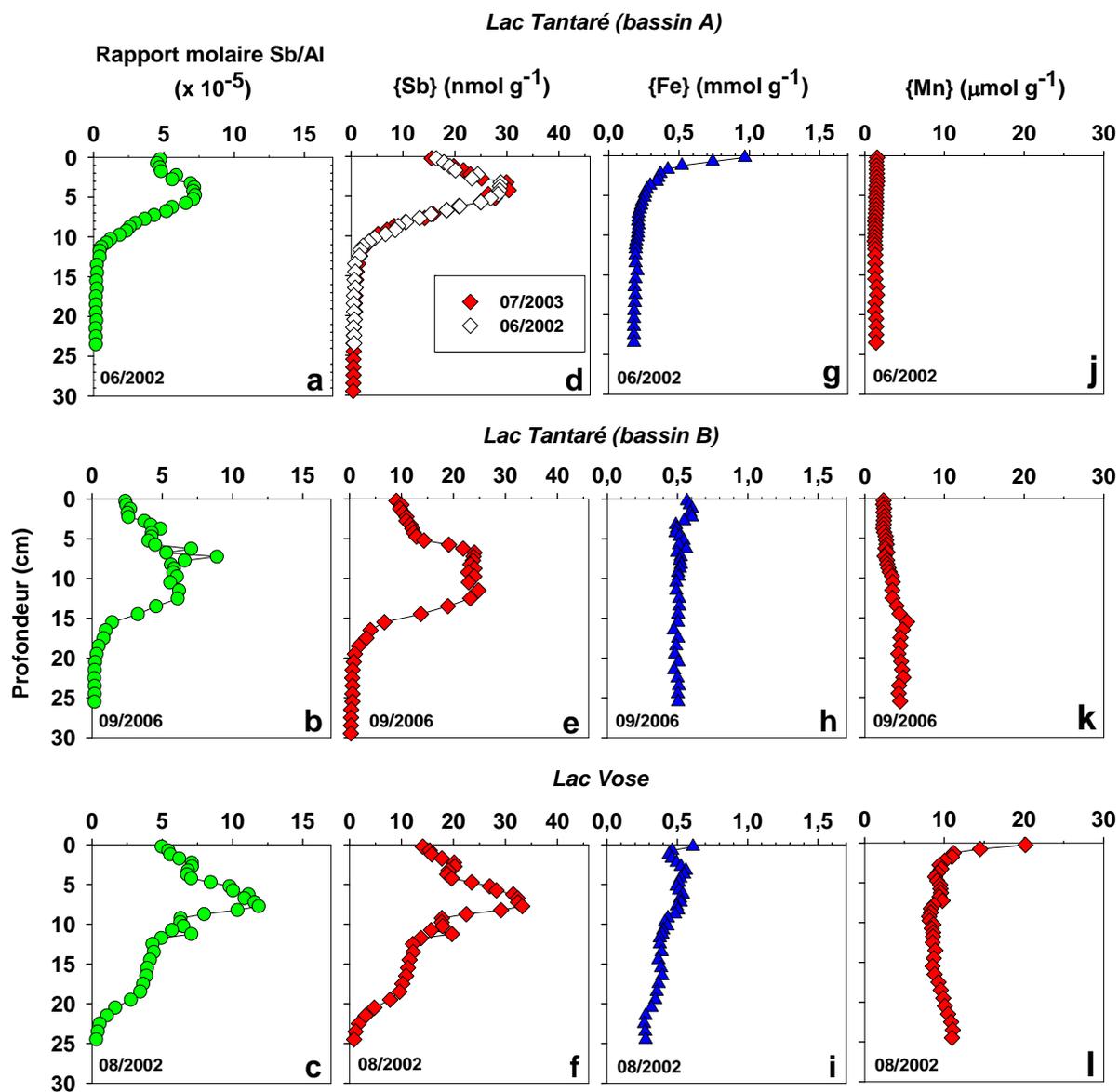


Figure 4. Profils du rapport Sb/Al (a-c) et des teneurs en Sb (d-f), Fe (g-i) et Mn (j-l) dans les sédiments des bassins A et B du lac Tantaré et dans ceux du lac Vose. Les dates de prélèvements des carottes de sédiment sont également indiquées.

Enfin, le profil de {Sb} au lac Vose montre aussi des valeurs peu élevées et constantes en profondeur, soit $0,87 \text{ nmol g}^{-1}$ (figure 4f), des valeurs maximales entre 5 et 10 cm de profondeur et une diminution marquée des teneurs entre cette profondeur et l'IES. Par ailleurs, on y observe un enrichissement en Fe dans les sédiments de surface (figure 4i); cet enrichissement est toutefois moins important que celui observé dans les sédiments du bassin A du lac Tantaré (figure 4g). Il y a aussi un enrichissement en Mn dans les sédiments de surface du lac Vose; le pH des eaux de ce dernier ($\sim 6,4-6,7$) est supérieur à celui des eaux du lac Tantaré, ce qui pourrait autoriser la formation d'oxyhydroxydes de Mn et ainsi expliquer l'enrichissement de surface en Mn, et ce malgré le caractère anoxique de l'hypolimnion au moment de l'échantillonnage.

3.2. Distribution verticale en Sb, Fe, Mn, SO_4^{2-} et $\Sigma\text{S(-II)}$ dans les eaux interstitielles

Les profils de Sb, Fe, Mn, SO_4^{2-} et $\Sigma\text{S(-II)}$ selon la profondeur dans les eaux interstitielles des sédiments des lacs Tantaré (bassins A et B) et Vose sont illustrés à la figure 5. Les concentrations en Sb varient entre environ 150 et 400 pM (figure 5a-d). Ces concentrations sont inférieures à celles mesurées dans la colonne d'eau de lacs situés en Ontario ($\sim 600-4100 \text{ pM}$; Filella *et al.*, 2002a); elles sont aussi jusqu'à 10 fois inférieures à celles rapportées par Chen *et al.* (2003) pour les eaux interstitielles de lacs du Bouclier canadien. Par contre, elles sont similaires à celles mesurées dans les eaux de surface du lac Pavin en France ($\sim 260 \text{ pM}$; Filella *et al.*, 2002a).

3.2.1. Lac Tantaré (bassin A, hypolimnion oxygéné en permanence)

Les concentrations en Sb mesurées dans les eaux sus-jacentes aux sédiments du bassin A du lac Tantaré sont pour ainsi dire constantes ($209 \pm 0,9 \text{ pM}$). Sous l'IES, les concentrations tendent cependant à augmenter avec la profondeur, atteignant $\sim 300 \text{ pM}$ entre 2 et 4 cm, puis à diminuer sous cet horizon (figure 5a). Le profil de [Fe] (figure 5e) indique que cet élément est remobilisé sous environ 2 cm de profondeur et précipite entre l'IES et cet horizon, ce qui est en accord avec ce qu'on observe dans la phase solide (figure 4g). Donc, on peut noter une certaine coïncidence dans la position du gradient de concentration en Fe dissous et celui en Sb dissous.

Enfin, les profils de $[\text{SO}_4^{2-}]$ (figure 5q) et de $[\Sigma\text{S(-II)}]$ (figure 5q) sont typiques de ceux d'un bassin lacustre ayant un hypolimnion oxygéné: $[\text{SO}_4^{2-}]$ décroît avec la profondeur sous l'IES, tandis que $[\Sigma\text{S(-II)}]$ est près de la limite de détection dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et tend à augmenter avec la profondeur dans les sédiments.

3.2.2. Lac Tantaré (bassin B, hypolimnion saisonnièrement anoxique)

Au bassin B du lac Tantaré, les profils de $[\Sigma\text{S(-II)}]$ et de $[\text{SO}_4^{2-}]$ (figure 5r-s) sont différents en septembre 2006 et en juillet 2007. Ainsi, dans les eaux sus-jacentes aux sédiments, les concentrations en $[\Sigma\text{S(-II)}]$ atteignaient plus de 1 μM en septembre 2006, mais elles étaient près de la limite de détection de 4 nM en juillet 2007. Les concentrations en $[\text{SO}_4^{2-}]$ étaient, dans le cas de deux profils sur trois, beaucoup plus faibles en septembre 2006 qu'en juillet 2007. Ces observations sont cohérentes avec la présence d'un hypolimnion anoxique en septembre 2006 et d'un hypolimnion oxygéné en juillet 2007.

Les trois profils de $[\text{Fe}]$ (figure 5f-g), $[\text{SO}_4^{2-}]$ et $[\Sigma\text{S(-II)}]$ (figure 5r-s) mesurées lors d'une même période d'échantillonnage au bassin B du lac Tantaré ne sont pas parfaitement reproductibles, et ce, tant en septembre 2006 qu'en juillet 2007. Ceci suggère une hétérogénéité à courte échelle spatiale au site d'échantillonnage, peut-être causée par le fait que les caractéristiques physico-chimiques de l'hypolimnion venaient de changer lorsque nous avons effectué notre échantillonnage. Par contre, les profils en Sb dans les eaux interstitielles montrent des différences moins marquées; les concentrations (130-150 pM) et leurs variations verticales sont assez semblables en septembre 2006 et en juillet 2007. Les concentrations diminuent progressivement par environ 30 à 40 % entre l'IES et 5 cm de profondeur, puis demeurent constantes par la suite (figure 5b-c). Les profils en Fe (figure 5f-g) et Mn (figure 5j-k) dissous exhibent par ailleurs une faible remobilisation dans les eaux interstitielles et une certaine diffusion à travers l'interface eau-sédiment.

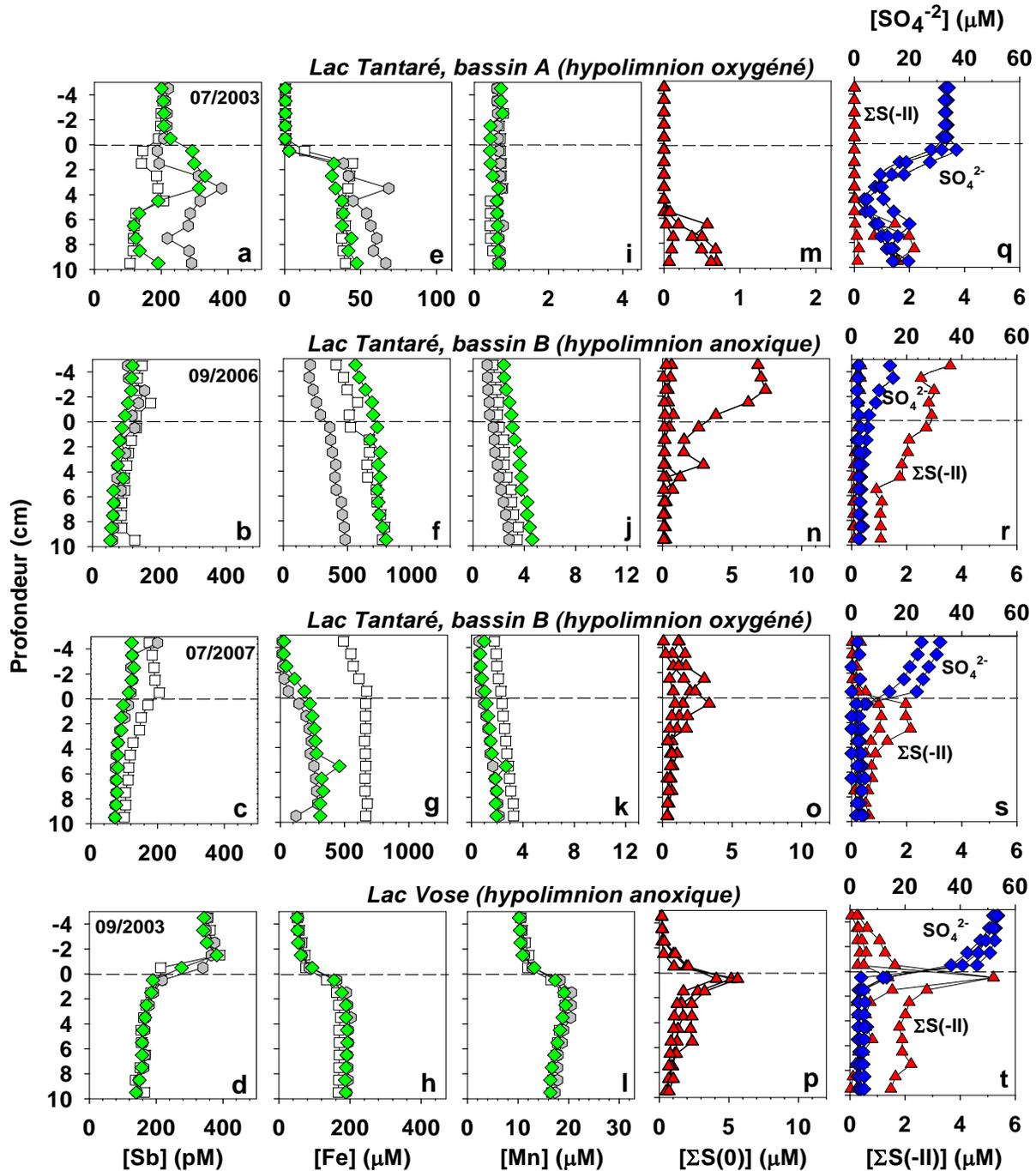


Figure 5. Profils de [Sb] (a-d), [Fe] (e-h), [Mn] (i-l), [$\Sigma S(0)$] (m-p), [SO_4^{2-}] et [$\Sigma S(-II)$] (q-t) dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles des sédiments du bassin A du lac Tantaré en juillet 2003 (hypolimnion oxygéné), du bassin B du même lac en septembre 2006 (hypolimnion anoxique) et en juillet 2007 (hypolimnion oxygéné), ainsi que du lac Vose en septembre 2003 (hypolimnion anoxique). Il est à noter que lorsque les éléments furent mesurés dans un échantillon provenant d'un même dialyseur, les données sont représentées par un symbole unique.

3.2.3. Lac Vose (*hypolimnion saisonnièrement anoxique*)

Les profils de [Sb] au lac Vose sont très différents de ceux du lac Tantaré. Les concentrations de Sb, lesquelles atteignent près de 400 pM dans les eaux sus-jacentes aux sédiments, diminuent abruptement d'un facteur 2 au niveau de l'IES, devenant inférieures à 200 pM à 1 cm de profondeur (figure 5d). Cette tendance contraste avec celle qu'on observe dans les profils en [Fe] (figure 5h) et [Mn] (figure 5l). Les profils de [Fe] et de [Mn], de même que ceux de {Fe} et de {Mn} (figure 4i et 4l), suggèrent par ailleurs un recyclage de ces éléments au voisinage de l'IES. On notera toutefois que l'enrichissement en Fe n'est pas aussi important que celui observé au bassin A du lac Tantaré, dont l'hypolimnion est oxygéné en permanence.

3.3. Calculs de la spéciation de Sb en phase aqueuse

Les formes chimiques spécifiques les plus probables de Sb dans les eaux interstitielles et dans les eaux sus-jacentes aux sédiments ont été estimées par des calculs thermodynamiques à l'aide du programme informatique MINEQL+ (Schecher et McAvoy, 1998). Pour ce faire, nous avons pris en considération la plupart des données disponibles pour nos échantillons, soit le pH et les concentrations en Sb, Fe, Mn, Mg, Ca, Na, C inorganique dissous, SO_4^{2-} , Cl^- , NO_3^- , $\Sigma\text{S}(-\text{II})$ et $\Sigma\text{S}(0)$. Nous avons aussi contraint MINEQL+ à utiliser les formes de base $\text{Sb}(\text{OH})_3^0$ et $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ dans les calculs de spéciation. La base de données thermodynamiques de MINEQL+ a par ailleurs été mise à jour pour les réactions données au tableau 1. Seules les données de C organique dissous n'ont pas été considérées, car MINEQL+ ne l'autorise pas et nous ne disposons pas de constantes de formation de complexes organo-antimoniés. On a présumé que le potentiel d'oxydoréduction dans les eaux sus-jacentes aux sédiments était fixé par les couples $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$ et $\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$ lorsque l'hypolimnion était respectivement oxygéné et anoxique (Chappaz *et al.*, 2008). Dans les eaux interstitielles, le potentiel d'oxydoréduction était toutefois fixé par les couples $\text{Fe}(\text{II})/\text{Fe}(\text{OH})_{3(\text{s})}$ lorsque les teneurs en $\Sigma\text{S}(-\text{II})$ étaient inférieures à 0,1 μM , et par $\text{SO}_4^{2-}/\text{HS}^-$ lorsqu'elles étaient supérieures à 0,1 μM (Chappaz *et al.*, 2008). Nous avons aussi présumé que les réactions d'oxydation et de réduction de Sb sont rapides; cette hypothèse est implicite dans de tels calculs de spéciation (Helz *et al.*, 2002; Filella *et al.*, 2002b; Filella *et al.*,

Tableau 1. Constantes d'équilibre (force ionique I = 0, T = 25°C) des réactions considérées lors des calculs de spéciation.

Réaction	log K	Référence
$\text{Sb(OH)}_3^0 + \text{H}^+ = \text{Sb}^{\text{III}}(\text{OH})_2^+ + \text{H}_2\text{O}$	-1,371	a
$\text{Sb(OH)}_3^0 + \text{H}_2\text{O} = \text{Sb}^{\text{III}}(\text{OH})_4^- + \text{H}^+$	-11,70	a
$\text{Sb(OH)}_6^- + 2\text{H}^+ = \text{Sb}^{\text{V}}(\text{OH})_4^+ + 2\text{H}_2\text{O}$	0,54	a
$\text{Sb(OH)}_6^- + \text{H}^+ = \text{Sb(OH)}_5 + \text{H}_2\text{O}$	2,82	a
$\text{Sb(OH)}_3^0 + 3\text{H}^+ = \text{Sb}^{3+} + 3\text{H}_2\text{O}$	-0,019	a
$\text{Sb(OH)}_3^0 + 2\text{H}^+ = \text{Sb}^{\text{III}}(\text{OH})_2^{2+} + 2\text{H}_2\text{O}$	1,19	a
$2\text{Sb(OH)}_3^0 + 4\text{H}^+ = \text{Sb}_2^{\text{III}}(\text{OH})_2^{4+} + 4\text{H}_2\text{O}$	3,545	a
$\text{Sb(OH)}_6^- + \text{Sb(OH)}_3^0 + 4\text{HS}^- + 6\text{H}^+ + 2\text{e}^- + \text{S(0)}_{\text{aq}} = \text{HSb}^{\text{III}}\text{Sb}^{\text{V}}\text{S}_5^- + 9\text{H}_2\text{O}$	85,42	b
$2\text{Sb(OH)}_6^- + 4\text{HS}^- + 8\text{H}^+ + 4\text{e}^- + 2\text{S(0)}_{\text{aq}} = \text{Sb}_2^{\text{V}}\text{S}_6^{2-} + 12\text{H}_2\text{O}$	109,17	b
$2\text{Sb(OH)}_3^0 + 3\text{H}^+ + 4\text{HS}^- = \text{HSb}_2^{\text{III}}\text{S}_4^- + 6\text{H}_2\text{O}$	52,17	b
$2\text{Sb(OH)}_3^0 + 2\text{H}^+ + 4\text{HS}^- = \text{Sb}_2^{\text{III}}\text{S}_4^{2-} + 6\text{H}_2\text{O}$	42,37	b
$2\text{Sb(OH)}_3^0 + 4\text{HS}^- + 4\text{H}^+ = \text{H}_2\text{Sb}_2^{\text{III}}\text{S}_4 + 6\text{H}_2\text{O}$	56,91	b
$2\text{Sb(OH)}_3^0 + 3\text{H}^+ + 3\text{HS}^- = \text{Sb}_2\text{S}_3(\text{s}) + 6\text{H}_2\text{O}$	53,11	b
$\text{Sb(OH)}_3^0 + 3\text{H}_2\text{O} = 2\text{e}^- + 3\text{H}^+ + \text{Sb(OH)}_6^-$	-25,15	a
$\text{SO}_4^{2-} + 9\text{H}^+ + 8\text{e}^- = \text{HS}^- + 4\text{H}_2\text{O}$	33,66	c
$\text{HS}^- = \text{S}^{2-} + \text{H}^+$	-12,9	a

- a. Filella et May (2003); les valeurs indiquées sont celles recommandées par ces auteurs.
b. Les constantes ont été calculées à partir des réactions proposées par Helz *et al.* (2002).
c. Schecher et McAvoy (1998).

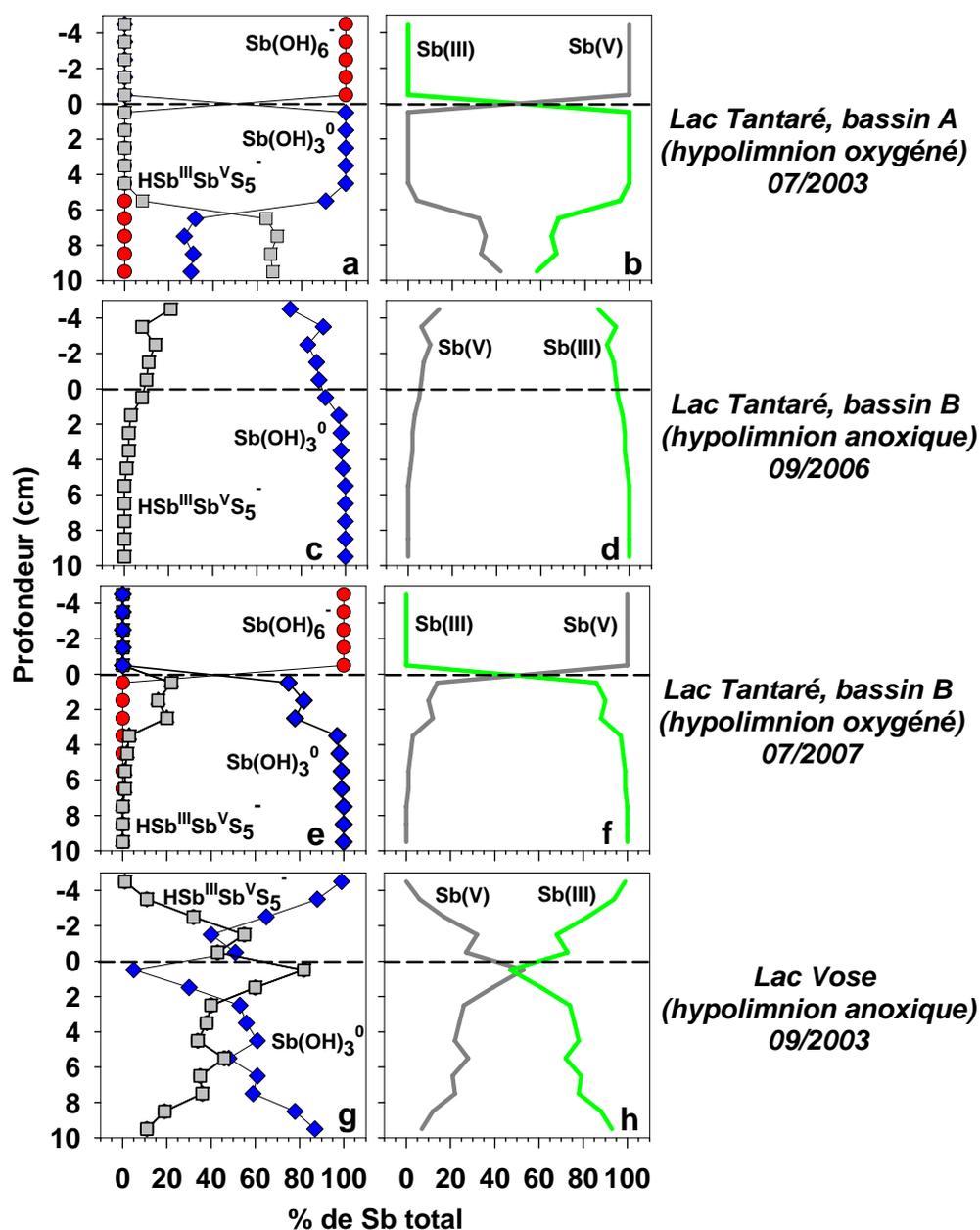


Figure 6. Spéciation calculée de Sb en fonction de la profondeur dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles des sédiments du bassin A du lac Tantaré en juillet 2003 (**a** et **b**), du bassin B du même lac en septembre 2006 (**c** et **d**) et en juillet 2007 (**e** et **f**), ainsi que du Lac Vose en septembre 2003 (**g** et **h**). Dans la colonne de gauche sont représentées les variations en fonction de la profondeur des pourcentages des espèces $\text{HSb}^{\text{III}}\text{Sb}^{\text{V}}\text{S}_5^-$ (\square), $\text{Sb}(\text{OH})_3^0$ (\blacklozenge) et $\text{Sb}(\text{OH})_6^-$ (\bullet) par rapport à Sb total. Dans la colonne de droite les traits pleins vert et gris représentent respectivement le pourcentage de Sb total sous forme de Sb(III) et de Sb(V). Enfin, la ligne horizontale pointillée représente l'interface eau-sédiment.

2007), bien qu'elle ne soit généralement pas vérifiée pour la plupart des réactions et, qu'en conséquence, les prédictions thermodynamiques ne s'avèrent pas toujours exactes.

Les résultats obtenus sont illustrés à la figure 6 et sont rapportés sous forme de tableaux à l'annexe B. Les calculs de spéciation démontrent que Sb(V), sous forme de Sb(OH)_6^- , dominerait dans les eaux sus-jacentes aux sédiments lorsque l'hypolimnion est oxygéné, comme c'est le cas au bassin A du lac Tantaré (figure 6b) et au bassin B du même lac en juillet 2007 (figure 6f). Par contre, dans les eaux interstitielles de chaque bassin (figure 6b,d,f,h) et dans les eaux sus-jacentes aux sédiments des bassins anoxiques, Sb(III) serait sous la forme de Sb(OH)_3^0 et constituerait l'espèce majoritaire (toujours plus de 50 % de Sb total). Ces résultats calculés sont en accord avec ceux également calculés de la littérature, lesquels stipulent que, dans les eaux naturelles comme les lacs, Sb(V) sous forme de Sb(OH)_6^- et Sb(III) sous forme de Sb(OH)_3^0 sont dominants respectivement dans les milieux oxygénés et anoxiques (Latimer, 1952; Vasil'ev et Shorokhova 1972; Bard *et al.*, 1985; Filella *et al.*, 2002a,b). Nos calculs thermodynamiques suggèrent en outre la présence de $\text{HSb}^{\text{III}}\text{Sb}^{\text{V}}\text{S}_5^-$, qui pourrait représenter jusqu'à 15 à 50 % de Sb total dans certains cas (figure 6b,d,f,h). Ce résultat est en accord avec les travaux de Helz *et al.* (2002); ces derniers ont aussi déterminé par calculs thermodynamiques que $\text{HSb}^{\text{III}}\text{Sb}^{\text{V}}\text{S}_5^-$ peut se former dans les écosystèmes aquatiques. Je souligne toutefois qu'il n'existe aucune donnée dans la littérature, à ma connaissance, qui démontrerait analytiquement la présence de tels complexes de Sb dans les eaux naturelles. Par contre, différents auteurs ont été en mesure de différencier analytiquement Sb(III) et Sb(V) dans les eaux naturelles (Quentel et Filella, 2002; Cabon et Madec, 2004; De Gregori *et al.*, 2005).

4. DISCUSSION

Nous avons vu que les valeurs du rapport Sb/Al dans les sédiments sont, selon les lacs, de 18 à 31 fois plus élevées que la valeur de ce rapport dans la croûte continentale supérieure. Afin de savoir si les valeurs élevées de ce rapport sont occasionnées par les activités humaines, il faut évaluer l'impact de la diagenèse sur les teneurs en Sb dans chaque couche de sédiments. En effet, on ne peut exclure d'emblée qu'une redistribution post-dépôt de l'élément due aux processus biologiques, chimiques et physiques qui ont cours dans les sédiments soit à l'origine des variations importantes de ce rapport dans la colonne sédimentaire (Boudreau, 1997). Dans les prochaines sections, je modélise les profils de [Sb] pour déterminer les taux nets des réactions impliquant Sb au cours de la diagenèse précoce, et je quantifie par la suite les teneurs en Sb ajoutées à (ou soustraites de) cette dernière pour chaque couche de sédiments; les variations chronologiques du dépôt de Sb à l'IES sont ensuite discutées.

4.1. Modélisation des profils de Sb dans les eaux interstitielles

Les mesures de la concentration d'un élément dans les eaux interstitielles sont des indicateurs plus sensibles des réactions qui se produisent dans la colonne sédimentaire, comparativement aux mesures faites dans les sédiments eux-mêmes. En effet, une petite variation de la teneur d'un élément en phase solide se traduit par une variation plus importante dans les eaux interstitielles, car >99 % de Sb se retrouve dans la phase solide des sédiments. Les profils d'un élément dans les eaux interstitielles sont non seulement le résultat des réactions qui ajoutent l'élément aux eaux interstitielles ou qui en enlèvent, mais aussi celui du transport de l'élément par les processus suivants (Boudreau, 1997):

- 1) la bio-irrigation, i.e. le pompage d'eau dans les sédiments effectué par les organismes benthiques pour satisfaire leur besoin en O₂, qui peut se traduire par un flux net de Sb du sédiment vers la colonne d'eau ou *vice versa*;
- 2) la diffusion, i.e. le transport par déplacement de Sb dissous dans les eaux interstitielles vers un point de fixation dans la phase solide;
- 3) la bio-diffusion, i.e. le transport résultant du mélange simultané des eaux interstitielles et des sédiments par les organismes benthiques;

- 4) ainsi que l'advection, i.e. le transport résultant de l'enfouissement, de l'écoulement d'eau souterrain et de la compaction des sédiments.

Si nous considérons que le transport par advection est négligeable dans les lacs étudiés (Gallon *et al.*, 2004; Gallon *et al.*, 2006), alors la distribution verticale de Sb dissous dans les sédiments peut être décrite par l'équation de conservation de masse unidimensionnelle ci-dessous (Boudreau, 1997) :

$$\left(\frac{\partial \phi [Sb]}{\partial t} \right)_x = \frac{\partial}{\partial x} \left(\phi (D_s + D_B) \frac{\partial [Sb]}{\partial x} \right) + \phi \alpha ([Sb]_{galerie} - [Sb]) + R_{net}^{Sb} \quad (\text{Éq. 1})$$

où x représente la profondeur dans le sédiment (cm; positive vers le bas), t le temps (s), ϕ la porosité, D_s le coefficient de diffusion effectif ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$) de Sb qu'on présume égale à $\phi^2 D_w$, où D_w est le coefficient de diffusion en phase aqueuse de l'espèce majoritaire (Boudreau, 1999; Berner, 1980). Également, D_B représente le coefficient de bio-diffusion ($\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$), α le coefficient de bio-irrigation (s^{-1}), $[Sb]_{galerie}$ la concentration de Sb dissous dans les galeries creusées par des animaux benthiques que l'on considère égale à celle des eaux surnageantes aux sédiments, $[Sb]$ sa concentration dans les eaux interstitielles, et R_{net}^{Sb} le taux net de production ou de consommation de Sb dans les eaux interstitielles ($\text{mol cm}^{-3} \text{s}^{-1}$). Un taux de réaction net positif indique un gain de Sb dans les eaux interstitielles, tandis qu'une valeur négative signifie son enlèvement des eaux interstitielles au profit de la phase solide.

Afin de déterminer les taux nets des réactions (R_{net}^{Sb}) auxquelles participe Sb, l'équation 1 peut être solutionnée pour le profil moyen ($n=3$) de Sb obtenu pour chacune des périodes d'échantillonnage. Nous présumons alors que ce profil moyen de $[Sb]$ est à l'état stationnaire, i.e. que $(\partial \phi [Sb] / \partial t)_x$ tend vers 0, ou du moins que l'échelle de temps sur laquelle les profils varient est longue relativement aux taux nets des réactions (Morford *et al.*, 2007). Cette approche a été adoptée auparavant pour modéliser les profils du Pb (Gallon *et al.*, 2004), du Tl

(Laforte *et al.*, 2005), du Mo (Chappaz *et al.*, 2008) et aussi de l'As (Couture *et al.*, 2008) dans les eaux interstitielles d'écosystèmes lacustres.

Le programme informatique PROFILE (Berg *et al.*, 1998) permet de résoudre l'équation 1 par itérations numériques, afin de trouver les taux nets des réactions (R_{net}^{Sb}) lorsque les coefficients de diffusion, de bio-diffusion et de bio-irrigation sont connus. Les calculs exécutés fournissent les valeurs de R_{net}^{Sb} pour le meilleur ajustement possible, par la méthode des moindres carrés, des valeurs modélisées aux valeurs expérimentales de [Sb]. Les calculs nécessitent les données moyennes (n=3) de [Sb] et de ϕ pour chaque profondeur dans les sédiments, ainsi que les valeurs des coefficients D_w , D_B et α estimées tel que décrit ci-dessous.

4.1.1. Détermination des coefficients D_w , D_s , D_B et α

Le coefficient de diffusion (D_w) utilisé pour les calculs est celui de l'espèce majoritaire de Sb présente dans les eaux interstitielles, en l'occurrence $Sb(OH)_3^0$ (voir la section 3.3). Ce coefficient n'ayant jamais été déterminé expérimentalement auparavant pour cette espèce neutre, nous l'avons estimé pour une température de 4°C, grâce à la relation d'Einstein-Stokes suivante (Boudreau, 1999):

$$D_w = \frac{\kappa T}{6\pi\mu r_0} \quad (\text{Éq. 2})$$

où κ représente la constante de Boltzmann ($1,3806 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$), T la température absolue *in situ* (277°K), μ la viscosité dynamique³ de l'eau (Pa s) et r_0 le rayon approximatif de $Sb(OH)_3^0$. La viscosité dynamique de l'eau (μ) peut être calculée en utilisant la formule suivante (Kestin *et al.*, 1978):

$$\log\left(\frac{\mu}{1002,0}\right) = \frac{20 - \tau}{\tau + 96} \{1,2364 - 1,37 \times 10^{-3} (20 - \tau) + 5,7 \times 10^{-6} (20 - \tau)^2\} \quad (\text{Éq. 3})$$

³ La viscosité dynamique se définit comme étant le coefficient de proportionnalité μ de la force s'appliquant entre deux couches de vitesses différentes d'un fluide (Kestin *et al.*, 1978).

où τ est la température en °C. À 4°C (277°K), la viscosité dynamique de l'eau est égale à 1568 Pa s. Le rayon approximatif de $\text{Sb}(\text{OH})_3^0$, tiré de Pokrovski *et al.* (2006), est égal à $1,97 \times 10^{-10}$ m. La valeur de D_w ainsi estimée pour $\text{Sb}(\text{OH})_3^0$ est de $6,57 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$. Lorsqu'on connaît aussi la porosité, cette valeur permet de calculer le coefficient de diffusion effectif de $\text{Sb}(\text{OH})_3^0$ dans les sédiments ($D_s = \phi^2 D_w$); ce calcul peut être effectué par PROFILE.

Considérant que le bassin B du lac Tantaré et le lac Vose sont saisonnièrement anoxiques et en se basant sur certaines informations fournies à la section 2.5 à propos du mélange négligeable des sédiments, nous avons présumé que la bio-irrigation et la bio-diffusion sont des processus négligeables à nos sites de prélèvement dans ces lacs. Dans un tel cas, l'équation 1 se simplifie comme suit:

$$\left(\frac{\partial \phi[\text{Sb}]}{\partial t} \right)_x = \frac{\partial}{\partial x} \left(\phi D_s \frac{\partial [\text{Sb}]}{\partial x} \right) + R_{net}^{\text{Sb}} \quad (\text{Éq. 4})$$

Par contre, au bassin A du lac Tantaré, lequel est oxygéné en permanence, il est opportun de tenir compte de la présence des organismes benthiques dans les sédiments. La valeur de D_B y a été estimée à $2,2 \times 10^{-9} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$ par Alfaro-De la Torre et Tessier (2002) en considérant les éléments suivants :

- 1) les données de Hare *et al.* (1994) indiquant que la communauté benthique est majoritairement composée du chironome *Sergentia coracina* (1080 ± 140 individus m^{-2}) à notre site d'étude;
- 2) et le coefficient de bio-diffusion pour les chironomes déterminé par Matisoff et Wang (2000).

Par ailleurs, nous avons admis que le coefficient de bio-irrigation (α) variait linéairement avec la profondeur et devenait nul à 10 cm sous l'IES (Matisoff et Wang, 1998). Sa valeur à l'interface eau-sédiment (α^0), en l'occurrence $4,44 \times 10^{-7} \text{ s}^{-1}$, a été déterminée avec l'équation qui suit (Boudreau, 1984):

$$\alpha^0 = \frac{D_w r_1}{(r_2^2 - r_1^2)(r_a - r_1)} \quad (\text{Éq. 5})$$

où r_1 représente le rayon d'une galerie creusée par un animal fouisseur dans les sédiments (0,1 cm pour les chironomes), r_2 la demi-distance entre deux galeries adjacentes (1,5 cm, en supposant une distribution uniforme des galeries) et r_a la distance radiale moyenne d'une galerie, soit $r_2/2$ (0,75 cm). Notre démarche est identique à celle adoptée par Gallon *et al.* (2004).

4.1.2. Taux nets des réactions diagénétiques impliquant Sb

La figure 7 montre les profils modélisés de [Sb] et de R_{net}^{Sb} pour chacune des périodes d'échantillonnage. Dans tous les cas, les valeurs de [Sb] modélisées avec PROFILE sont en accord ($r^2 = 0,89-0,99$) avec les valeurs moyennes des concentrations mesurées (n=3) (figure 7a-d). Au bassin A du lac Tantaré, le modèle définit une importante zone de production de Sb dissous entre 2 et 4 cm de profondeur (figure 7a, tableau 2), laquelle est comprise entre deux zones de consommation: l'une entre l'IES et 2 cm de profondeur, l'autre entre 4 cm et 10 cm de profondeur.

Au bassin B du lac Tantaré et au lac Vose, les variations de R_{net}^{Sb} avec la profondeur sont cependant différentes puisqu'il n'y a pas de zone de production (figure 7b-d). Si on accepte que la concentration en Sb dans les eaux interstitielles au bassin B du lac Tantaré est constante sous 5 cm de profondeur, autant en septembre 2006 qu'en juillet 2007, PROFILE indique que Sb provenant des eaux sus-jacentes aux sédiments est consommé dans une zone se situant entre l'IES et approximativement 5 cm de profondeur (figure 7b,c). Le taux de consommation est toutefois deux fois plus important en septembre 2006, lorsque l'hypolimnion était anoxique, qu'en juillet 2007, alors qu'il était oxygéné (tableau 2). Au lac Vose, où la concentration en Sb dans les eaux interstitielles peut aussi être considérée constante sous 5 cm de profondeur, les résultats de la modélisation avec PROFILE indiquent encore une fois que Sb est soustrait des eaux interstitielles entre l'IES et environ 5 cm de profondeur; le taux de consommation de Sb dissous entre l'IES et 2 cm de profondeur y est toutefois d'un ordre de grandeur supérieur à ceux du bassin B du lac Tantaré (tableau 2). Une telle différence est cohérente avec le fait que le gradient de concentration en Sb dissous près de l'IES est plus prononcé au lac Vose qu'au bassin B de Tantaré, peut-être parce que, lorsque nos prélèvements furent effectués, l'hypolimnion était anoxique depuis une plus longue période de temps au lac Vose qu'au bassin B de Tantaré.

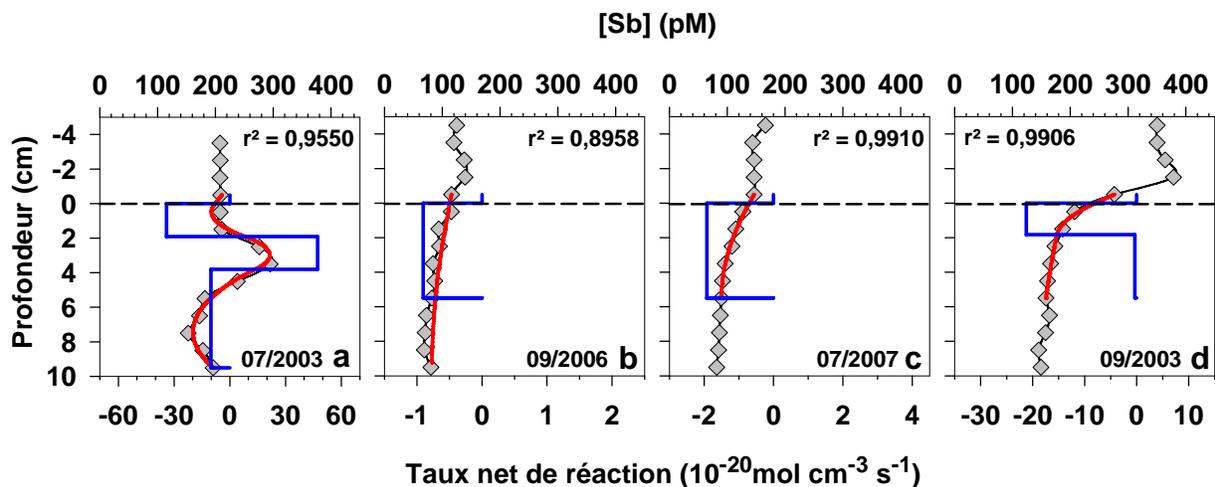


Figure 7. Teneurs de Sb dissous prédites et mesurées en fonction de la profondeur au bassin A du lac Tantaré (**a**), au bassin B du même lac en septembre 2006 (**b**) et en juillet 2007 (**c**) et au lac Vose (**d**). Les losanges gris sont les valeurs moyennes mesurées ($n=3$) de [Sb], les lignes courbes rouges représentent les meilleurs ajustements entre les valeurs mesurées et les valeurs modélisées avec PROFILE (les valeurs de r^2 sont celles de ces ajustements), le trait rectiligne bleu définit les zones pour lesquelles les taux nets des réactions de production et de consommation de Sb dissous ont été obtenus et la ligne horizontale pointillée représente l'interface eau-sédiment.

Tableau 2. R_{net}^{Sb} en fonction de la profondeur déterminé avec le programme informatique PROFILE pour les bassins A et B du lac Tantaré, ainsi que pour le lac Vose.

Site d'étude et date de prélèvement	Intervalle de profondeur (cm)	R_{net}^{Sb} ($10^{-18} \text{ mol cm}^{-3} \text{ s}^{-1}$)
Lac Tantaré, Bassin A (07/2003)	0-1,90	-0,34
	1,90-3,80	0,47
	3,80-9,50	-0,10
Lac Tantaré, Bassin B (07/2007)	0-5,5	-0,019
Lac Tantaré, Bassin B (09/2006)	0-5,5	-0,009
Lac Vose (09/2003)	0-1,83	-0,21
	1,83-5,5	-0,037

4.1.3. Analyse de la robustesse des résultats découlant de la modélisation

Afin d'évaluer le niveau de confiance qu'on peut accorder aux résultats de notre effort de modélisation avec PROFILE, nous avons comparé les valeurs de R_{net}^{Sb} et l'ajustement des profils de [Sb] obtenus selon la méthode décrite précédemment à ceux qu'on a obtenus en faisant varier les teneurs moyennes (n=3) de [Sb] de $\pm 3\sigma$ (σ = écart-type), et la densité des chironomes au bassin A du lac Tantaré de 1080 à 2000 individus m^{-2} et à 0 individu m^{-2} , ce qui équivalait à faire varier respectivement α^0 de $4,44 \times 10^{-7} s^{-1}$ à $7,93 \times 10^{-7} s^{-1}$ et de $4,44 \times 10^{-7} s^{-1}$ à 0. Nous n'avons par contre pas vérifié l'influence des variations de D_B , étant donné que $D_S \gg D_B$ et que seules des valeurs irréalistes de D_B auraient un effet sur les résultats modélisés.

Les changements apportés à la densité des animaux benthiques et aux concentrations de Sb dissous modifient peu le coefficient de corrélation (r^2) entre les teneurs mesurées et celles modélisées avec PROFILE; ce coefficient demeure supérieur à 0,89 dans tous les cas (tableau C2). Les signes des taux nets des réactions (R_{net}^{Sb}), ainsi que les définitions des zones de consommation et de production demeurent inchangées. Notre analyse démontre en outre que, même si l'on fait varier les concentrations moyennes en Sb de $\pm 3\sigma$ (σ = écart-type), les valeurs de R_{net}^{Sb} varient au plus de 7 % dans tous les cas.

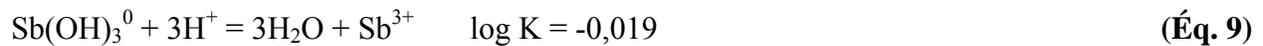
4.2. Réactions susceptibles d'impliquer Sb lors de la diagenèse précoce

Il a été suggéré que la précipitation de la stibnite, en l'occurrence $Sb_2S_3(s)$, puisse se produire dans les écosystèmes aquatiques lorsque les conditions sont favorables (Helz *et al.*, 2002; Chen *et al.*, 2003; Filella et May, 2003). Or, les résultats de notre étude permettent de vérifier si les eaux interstitielles des lacs étudiés étaient sursaturées, saturées ou insaturées par rapport à ce solide. La réaction de formation de la stibnite, ainsi que l'expression de son produit d'activité ionique ($PAI_{Sb_2S_3(s)}$) peuvent s'écrire :



$$PAI_{Sb_2S_3(s)} = (Sb^{3+})^2 (S^{2-})^3 \quad (\text{Éq. 7})$$

où (X) dans l'équation 7 correspond à l'activité de l'espèce X. La réaction de l'équation 6 provient de la combinaison des deux réactions suivantes données par Filella et May (2003):



Les valeurs nécessaires au calcul de $PAI_{Sb_2S_3(s)}$ ont été obtenues avec MINEQL+ pour $[Sb^{3+}]$ et à partir de l'équation 10 pour $[S^{2-}]$. Il est à noter que la constante de la réaction 10 est celle que l'on peut déduire de l'étude de Filella et May (2003), de laquelle le K_S de la stibnite a été obtenu. Les constantes d'équilibre choisies pour les calculs sont donc compatibles entre elles.



Tel qu'illustré à la figure 8, les valeurs de $PAI_{Sb_2S_3(s)}$ sont toujours inférieures par plusieurs ordres de grandeur au produit de solubilité (K_S) de $Sb_2S_3(s)$, en l'occurrence $10^{-91,868}$. Ainsi, selon la thermodynamique, les eaux interstitielles sont insaturées vis-à-vis de ce solide.

Les données de cette recherche ne permettent pas d'identifier avec certitude les réactions susceptibles de contrôler la production et la consommation de Sb dans les eaux interstitielles, mais des hypothèses peuvent être émises. Une réaction susceptible d'impliquer Sb lors de la diagenèse est son association avec les oxyhydroxydes de Fe (Belzile *et al.*, 2001; Chen *et al.*, 2003). Une telle association est suggérée par un certain parallèle entre les profils de Fe et de Sb dissous dans les eaux interstitielles entre l'IES et 4 cm de profondeur au bassin A du lac Tantaré. Ainsi, Sb pourrait être libéré dans les eaux interstitielles lorsque les oxyhydroxydes de Fe sont réduits, entre 2 et 4 cm, et consommé par adsorption sur ces composés lorsqu'ils se forment entre l'IES et environ 2 cm de profondeur. Cependant, bien que ce comportement puisse être effectif, seule une petite fraction de Sb total serait impliquée dans ce processus, puisqu'on ne constate pas d'enrichissement en Sb dans la couche de sédiments de surface riche en Fe. Un autre processus

pouvant potentiellement impliquer Sb dans les sédiments est sa sorption sur le sulfure de Fe. Chen *et al.* (2003) ont en effet émis l'hypothèse que le sulfure de Fe amorphe pourrait contrôler la solubilité de Sb dans les eaux interstitielles des sédiments lacustres, mais ne l'ont pas démontrée expérimentalement. Le sulfure de Fe amorphe est aussi reconnu pour jouer un rôle vis-à-vis de la fixation d'autres éléments traces dans les sédiments, en l'occurrence le Mo (Vorlicek *et al.*, 2004).

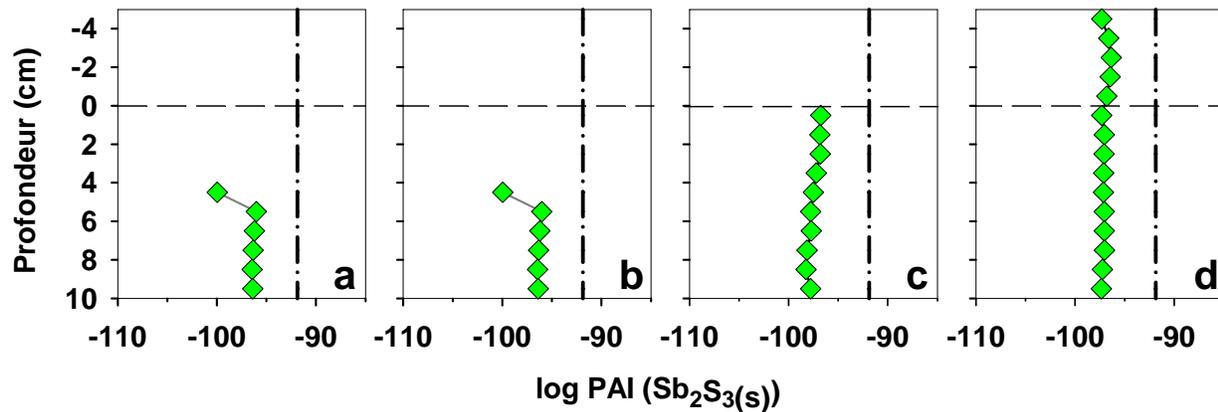


Figure 8. Logarithme du produit d'activité ionique calculé (log PAI) pour la stibnite ($\text{Sb}_2\text{S}_3(\text{s})$) à chacun des sites. Le trait pointillé vertical représente la valeur du produit de solubilité de $\text{Sb}_2\text{S}_3(\text{s})$ ($\log K_S = -91,868$; Filella et May, 2003) et le trait pointillé horizontal indique l'interface eau-sédiment.

4.3. Quantification de la redistribution post-dépôt

Considérant que les sédiments ne sont pas mélangés (voir section 2.5), les enregistrements sédimentaires de Sb présentés à la figure 4 reflètent à la fois les changements chronologiques du dépôt de Sb avec les particules qui se déposent à l'interface eau-sédiment, ainsi que les modifications encourues par les sédiments en raison de la diagenèse, i.e l'ajout de Sb à (ou son enlèvement de) la phase solide. Les taux nets des réactions (R_{net}^{Sb}) déterminés précédemment (tableau 2) peuvent servir à estimer la contribution diagénétique de Sb ($\{\text{Sb}\}_{diag}$) aux valeurs mesurées ($\{\text{Sb}\}_{mes}$) (Gallon *et al.*, 2004). Les réactions de production/consommation de Sb dans les eaux interstitielles sont en effet directement liées à celles de dissolution/précipitation et de désorption/sorption de Sb dans les sédiments, les taux nets des

réactions de Sb dans les eaux interstitielles étant équivalents aux valeurs négatives des taux nets des réactions dans les sédiments (Laforte *et al.*, 2005):

$$R_{net}^{Sb} = \left(\frac{d[Sb]}{dt} \right)_{réaction} = -\frac{m}{\phi} \left(\frac{d\{Sb\}}{dt} \right)_{réaction} \quad (\text{Éq. 11})$$

De cette équation découle:

$$d\{Sb\} = -R_{net}^{Sb} \frac{\phi}{DBD} dt = -R_{net}^{Sb} \frac{\phi}{DBD \times v_s} dx \quad (\text{Éq. 12})$$

où v_s et DBD (« dry bulk density ») représentent respectivement le taux de sédimentation (cm s^{-1}) et la densité du sédiment sec par unité de volume dans une couche de sédiment (g cm^{-3}). Ainsi, la teneur en $\{Sb\}$ gagnée ou perdue par la phase solide ($\{Sb\}_{diag}$) dans une couche de sédiment durant son enfouissement entre l'interface eau-sédiment et 10 cm de profondeur, peut être déterminée à l'aide de l'équation 14 :

$$\{Sb\}_{diag} = -\int_{x=0}^{x=x_i} R_{net}^{Sb} \frac{\phi}{DBD \times v_s} dx \quad (\text{Éq. 13})$$

Dans la pratique, nous utilisons toutefois la forme simplifiée suivante pour déterminer $\{Sb\}_{diag}$:

$$\{Sb\}_{diag} \approx -\sum_{x=0}^{x=x_i} R_{net}^{Sb} \frac{\phi}{DBD \times v_s} \Delta x \quad (\text{Éq. 14})$$

En soustrayant les valeurs de $\{Sb\}_{diag}$ à celles de $\{Sb\}_{mes}$, nous obtenons la teneur en Sb dans les particules de sédiment au moment de leur dépôt ($\{Sb\}_{hist}$). La figure 9 montre les profils en $\{Sb\}_{diag}$, $\{Sb\}_{mes}$ et $\{Sb\}_{hist}$. Au bassin B du lac Tantaré et au lac Vose, la contribution de $\{Sb\}_{diag}$ représente toujours une petite fraction de $\{Sb\}_{mes}$, en l'occurrence moins de 3 % et de 6% respectivement. Au bassin A du lac Tantaré, la contribution de $\{Sb\}_{diag}$ est par contre un peu plus importante, pouvant représenter jusqu'à 25 % de $\{Sb\}_{mes}$ entre l'IES et 4 cm de profondeur,

probablement à cause de l'implication de Sb dans le cycle des oxyhydroxydes de Fe près de l'IES. Bien que les valeurs absolues de $\{Sb\}_{diag}$ demeurent faibles sous 5 cm de profondeur au bassin A du lac Tantaré, la proportion de $\{Sb\}_{diag}$ par rapport à $\{Sb\}_{mes}$ tend à augmenter avec la profondeur, devenant même supérieure à 100 % sous 10 cm de profondeur (<1900). En apparence aberrant, ce résultat est vraisemblablement causé par une surestimation de $\{Sb\}_{diag}$ due au non respect de la condition de l'état stationnaire à une échelle de temps de l'ordre de quelques décennies. En d'autres termes, la distribution des concentrations en Sb dans les eaux interstitielles au début du 20^{ième} siècle n'était pas identique à celle que nous avons mesurée en 2003. Si on fait exception de ce résultat déraisonnable, on peut cependant conclure que $\{Sb\}_{diag}$ représente généralement moins de 3-6 % de $\{Sb\}_{mes}$, mais qu'il peut atteindre à l'occasion jusqu'à 25%. On peut donc conclure que les profils de $\{Sb\}$ représentent de manière fiable la chronologie du dépôt à l'IES (figure 9). J'ajoute que la redistribution post-dépôt de Sb dans la colonne sédimentaire des lacs étudiés est plus élevée que celle déterminée pour le Pb (Gallon *et al.*, 2004, 2006), mais généralement moins importante que celle pour le Tl, le Mo et l'As (Laforte *et al.*, 2005, Chappaz *et al.*, 2008; Couture *et al.*, 2008).

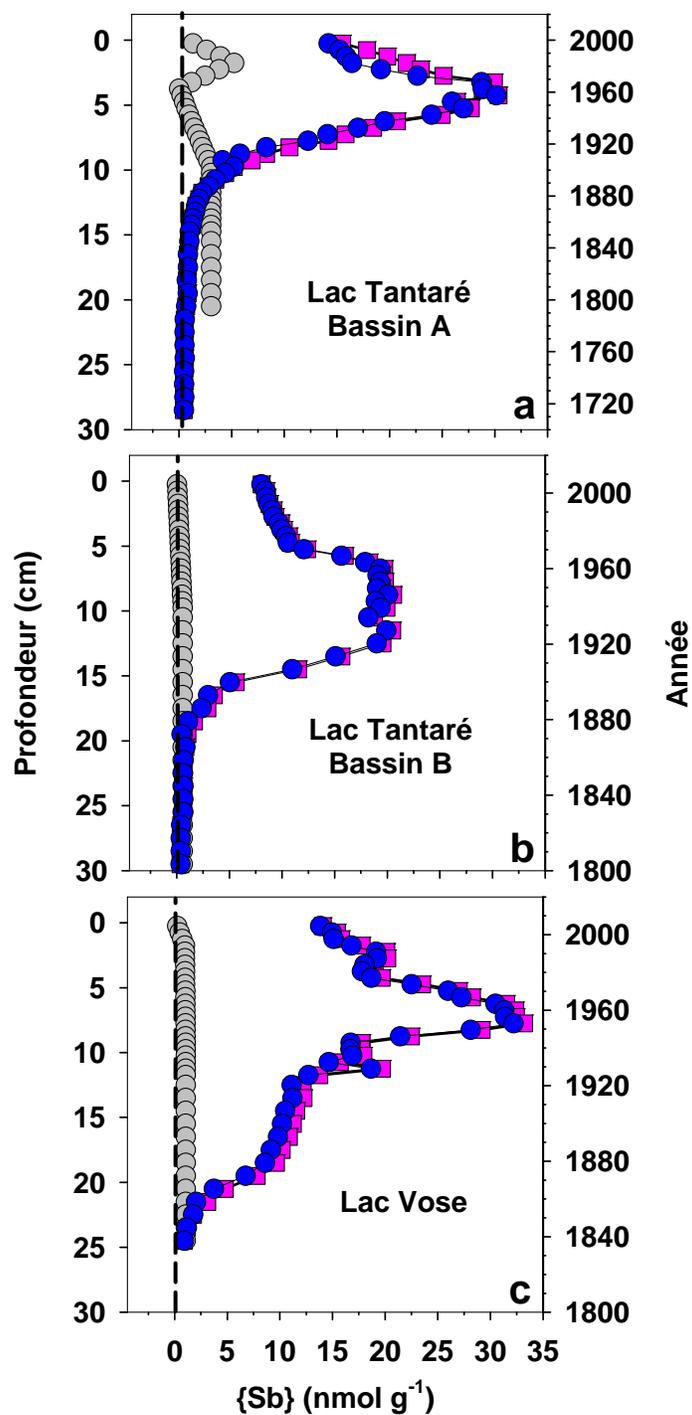


Figure 9. Profils verticaux de $\{Sb\}_{diag}$ (\odot), de $\{Sb\}_{mes}$ (\blacksquare) et de $\{Sb\}_{hist}$ (\bullet) en fonction de la profondeur dans les carottes de sédiment des bassins A (a) et B (b) du lac Tantaré et du lac Vose (c).

4.4. Variations chronologiques des flux du dépôt atmosphérique de Sb d'origine anthropique

Les changements temporels des flux du dépôt de Sb d'origine anthropique dans les sédiments ($^{Sb}J_{anth}$) à nos sites d'étude peuvent être déterminés à partir des résultats obtenus précédemment. Ce flux est donné par la relation suivante:

$$\boxed{^{Sb}J_{anth} = (\{Sb\}_{hist} - \{Sb\}_{<1850})\omega} \quad (\text{Éq. 15})$$

où ω représente le taux d'accumulation des sédiments ($\text{g cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$) et $\{Sb\}_{<1850}$ la teneur naturelle de Sb dans les sédiments à chacun des sites d'étude, laquelle est définie comme la moyenne des teneurs en $\{Sb\}_{hist}$ sous l'horizon correspondant approximativement à l'année 1850 dans les sédiments. Aux bassins A et B du lac Tantaré et au lac Vose, $\{Sb\}_{<1850}$ est respectivement égale à $0,66 \pm 0,12 \text{ nmol g}^{-1}$, $0,47 \pm 0,18 \text{ nmol g}^{-1}$ et $0,87 \text{ nmol g}^{-1}$. Étant donné que Sb d'origine anthropique ne peut que provenir de l'atmosphère à chacun des sites d'étude, soit par dépôt directement sur le lac, soit indirectement par la mobilisation géochimique de Sb déposé sur le bassin versant, nous pouvons, à partir de $^{Sb}J_{anth}$, estimer le flux du dépôt atmosphérique de Sb ($^{Sb}J_{atm}$) en utilisant la relation suivante:

$$\boxed{^{Sb}J_{atm} = ^{Sb}J_{anth} \left(\frac{{}^{210}\text{Pb } I_{atm}}{{}^{210}\text{Pb } I_{séd}} \right)} \quad (\text{Éq. 16})$$

où ${}^{210}\text{Pb } I_{atm}$ représente la valeur théorique du ${}^{210}\text{Pb}$ cumulé provenant de l'atmosphère, lequel est considéré identique à l'inventaire du ${}^{210}\text{Pb}$ dans les sols du Bouclier précambrien dans l'est de l'Ontario ($0,44 \text{ Bq cm}^{-2}$; Cornett *et al.*, 1984), et ${}^{210}\text{Pb } I_{séd}$ est l'inventaire du ${}^{210}\text{Pb}$ en excès mesuré dans la colonne sédimentaire aux sites d'échantillonnage, soit $0,365 \text{ Bq cm}^{-2}$, $0,584 \text{ Bq cm}^{-2}$ et $0,753 \text{ Bq cm}^{-2}$ respectivement aux bassins A et B du lac Tantaré (Couture *et al.*, 2008) et au lac Vose (Laforte *et al.*, 2005). Le terme ${}^{210}\text{Pb } I_{atm} / {}^{210}\text{Pb } I_{séd}$ constitue un coefficient qui permet de corriger pour des différences entre les sites en ce qui concerne la focalisation des sédiments à l'intérieur même des lacs (« sediment focusing »), l'érosion du bassin versant et le temps de résidence de l'eau (Kada et Heit, 1992). En appliquant cette méthode, on admet que les

processus qui affectent le comportement de Sb et du ^{210}Pb sont similaires. Cette présomption est justifiée par le fait que Sb et Pb ont chacun une forte affinité pour les particules.

4.4.1. *Lac Tantaré*

Les valeurs maximales de $^{Sb}J_{atm}$ déterminées au lac Tantaré ($\sim 200\text{-}250 \text{ pmol cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$; figure 10a) sont du même ordre de grandeur que celles rapportées pour le lac Hertel situé à 30 km à l'est de Montréal ($542 \text{ pmol cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$; Gélinas *et al.*, 2000) et pour une tourbière ombrotrophique en Écosse ($330 \text{ pmol cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$; Cloy *et al.*, 2005). Par contre, elles sont supérieures d'un ordre de grandeur à celles estimées par Krachler *et al.* (2008) à partir de l'analyse d'une carotte de glace de l'Arctique ($28\pm 22 \text{ pmol cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$). Au bassin A du lac Tantaré, le dépôt atmosphérique de Sb anthropique a augmenté considérablement entre la fin du 19^{ième} siècle et le milieu du 20^{ième} siècle ($\sim 1950\text{-}1965$). Au cours des années subséquentes et jusqu'à aujourd'hui, $^{Sb}J_{atm}$ a diminué par environ 75 % (figure 10a). Au bassin B du même lac, on remarque une tendance temporelle similaire, bien qu'un certain décalage existe entre les profils chronologiques des flux d'accumulation de Sb atmosphérique. Je suggère que cette différence puisse être attribuée au fait que la correction diagénétique est imparfaite, notamment parce que l'hypothèse de l'état stationnaire n'est pas parfaitement respectée, qu'il y a aussi une incertitude sur la datation (± 20 ans vers l'année 1900) et que la correction appliquée aux taux de dépôt pour tenir compte des caractéristiques spécifiques des différents bassins lacustres est également imparfaite, entre autres parce que le comportement de Sb n'est pas tout à fait identique à celui du ^{210}Pb .

La source de contamination la plus probable de Sb atmosphérique déposé au lac Tantaré serait la combustion du charbon. En effet, il est connu que ce type de combustion est l'une des plus importantes sources de Sb atmosphérique (Pacyna et Pacyna, 2001) et que ce combustible a été largement utilisé pour le chauffage des maisons au Québec durant la première moitié du 20^{ième} siècle (Gallon *et al.*, 2005). L'utilisation du charbon a beaucoup diminué par la suite alors que le chauffage à l'électricité a gagné en importance dans la société québécoise, ce qui pourrait expliquer la forte diminution de $^{Sb}J_{atm}$ aux environs des années 1950-1960. La combustion du charbon comme source importante de Sb anthropique au lac Tantaré est également suggérée par

la similitude des profils de $^{Sb}J_{atm}$ à celui des flux d'accumulation des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les sédiments (figure 10a). Ces dernières données proviennent de l'analyse d'une carotte du bassin A effectuée par Gallon *et al.* (2005). Tel que discuté par ces auteurs, la principale source de HAP dans le lac Tantaré est la combustion du charbon.

4.4.2. *Lac Vose*

Au lac Vose, les flux maximum du dépôt de Sb sont légèrement supérieurs à ceux enregistrés au lac Tantaré. Les valeurs de $^{Sb}J_{atm}$ augmentent lentement à partir du début du 20^{ième} siècle, atteignent un maximum vers la fin des années 1970, puis diminuent abruptement jusqu'au début des années 2000 (figure 10b). Cette tendance est similaire à l'historique des émissions polluantes de la fonderie Horne de Rouyn-Noranda. Cette dernière a débuté ses activités en 1927, puis sa capacité de production a augmentée de façon marquée dans les décennies subséquentes. Il est toutefois bien documenté qu'à partir du début des années 1980, la fonderie Horne a considérablement réduit ses émissions polluantes de métaux dans l'atmosphère après qu'elle eut apporté des changements technologiques et modernisé ses équipements. Ceci coïncida avec la mise en place de nouvelles politiques environnementales, notamment la Loi sur la qualité de l'environnement en 1972 et le Règlement sur la qualité de l'atmosphère en 1979. Dans l'ensemble de la société Noranda, de meilleures pratiques en gestion environnementale ont été implantées à partir du début des années 1980. Ainsi, il est raisonnable de conclure que la contamination en Sb au lac Vose est essentiellement attribuable à la fonderie Horne. Cette conclusion est de plus appuyée par le fait que les variations chronologiques du flux du dépôt du Pb spécifiquement émis par la fonderie Horne, telles qu'elles ont été estimées grâce à des mesures des isotopes stables du Pb (Gallon *et al.*, 2006) sont semblables aux variations chronologiques de $^{Sb}J_{atm}$ (figure 10b).

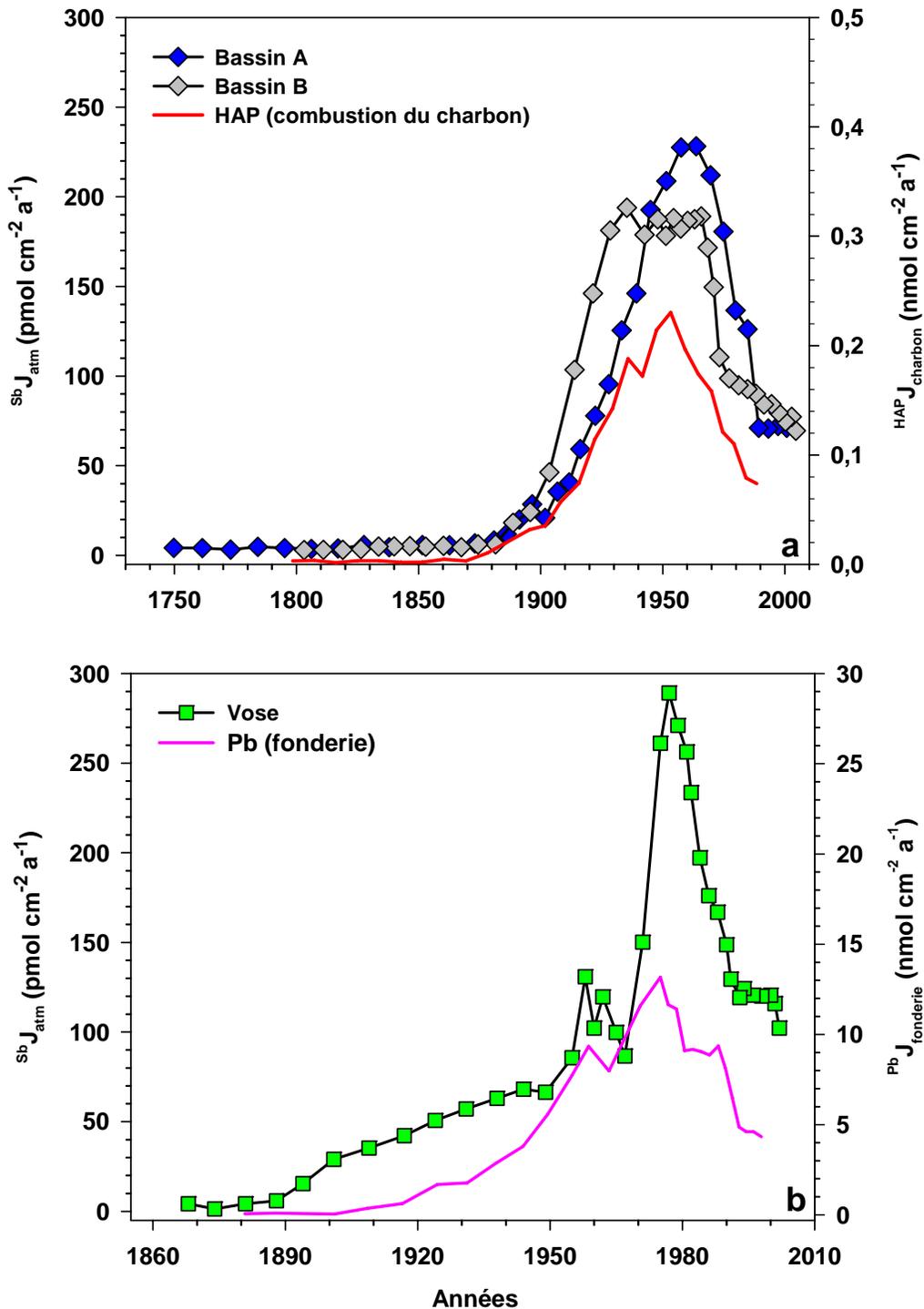


Figure 10. Chronologie des flux du dépôt atmosphérique de Sb d'origine anthropique ($Sb J_{atm}$) aux bassins A et B du lac Tantaré (a) et au lac Vose (b). En (a), la somme de 13 des plus importants hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), telle que rapportée par Gallon (2005), est également représentée par le trait plein rouge. En (b), les flux de Pb provenant de la fonderie Horne de Rouyn-Noranda (Gallon et al., 2006) sont représentés par le trait plein rose.

5. CONCLUSIONS

L'utilisation d'un modèle diagénétique de transport-réaction, lequel a été appliqué aux profils de Sb dans les eaux interstitielles des sédiments de deux lacs typiques du Bouclier canadien, a permis pour la première fois de définir objectivement les zones de réaction de cet élément dans les sédiments et de déterminer les vitesses nettes des réactions impliquant Sb dans ces zones. Au bassin A du lac Tantaré, dont l'hypolimnion est oxygéné en permanence, nous avons suggéré qu'une petite fraction de Sb dans les sédiments est recyclée dans les eaux interstitielles lorsque les oxyhydroxydes de Fe sont réduits entre 2 et 4 cm de profondeur sous l'interface eau-sédiment, et est consommé par adsorption sur ces composés, entre l'IES et environ 2 cm de profondeur. Par ailleurs, nous en sommes venus à la conclusion que la précipitation de la stibnite ($\text{Sb}_2\text{S}_{3(s)}$) dans les lacs étudiés était improbable, mais nous avons proposé que Sb puisse s'adsorber sur le sulfure de Fe dans les sédiments.

Les données acquises sur les zones et les vitesses nettes des réactions impliquant Sb dans les sédiments ont servi à quantifier la contribution diagénétique (Sb_{diag}) au profil de Sb sédimentaire mesuré à chacun des sites et à reconstituer les variations chronologiques du flux du dépôt dans les sédiments de Sb d'origine anthropique. Aux bassins A et B du lac Tantaré, les variations du dépôt de Sb atmosphérique et les valeurs maximales ($\sim 200\text{-}250 \text{ pmol cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$) atteintes vers les années 1950-1960 sont très similaires. Au lac Vose, les valeurs maximales ($\sim 290 \text{ pmol cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$) sont légèrement supérieures à celles du lac Tantaré et ont été atteintes vers la fin des années 1970. Au lac Tantaré, la comparaison entre les enregistrements du flux du dépôt de Sb atmosphérique et de celui des HAP suggère que la combustion du charbon a été la source la plus probable de la contamination atmosphérique par Sb à ce site. Au lac Vose, par contre, l'enregistrement sédimentaire du flux du dépôt de Sb anthropique est cohérent avec l'historique des émissions de la fonderie Horne de Rouyn-Noranda, notamment avec une réduction importante de ces émissions à partir du début des années 1980, après qu'une modernisation de la fonderie ait eu lieu. L'origine très probable de la fonderie Horne comme source principale de contamination au lac Vose est appuyée par la comparaison de nos résultats pour Sb à ceux obtenus pour le Pb par Gallon *et al.* (2006).

Finally, I suggest that research on the biogeochemistry of Sb in aquatic environment continues for the following reasons:

- 1) global Sb emissions will probably continue to increase in the coming years, and this is due to the increased economic development in several emerging countries;
- 2) the use of antimony for the production of various products continues to increase;
- 3) the deleterious effects of Sb on aquatic organisms remain to this day very little known.

6. BIBLIOGRAPHIE

- Alfaro-De la Torre M. C. et Tessier A. (2002) Cadmium deposition and mobility in the sediments of an acidic oligotrophic lake. *Geochimica et Cosmochimica. Acta* **66**, 3549-3562.
- Appleby P. G., Nolan P. J., Gifford D. W., Godfrey M. J., Oldfield F., Anderson N. J. et Battarbee R. W. (1986) ^{210}Pb dating by low-background gamma counting. *Hydrobiologia* **143**, 21-27.
- Appleby P. G., Richardson N. et Nolan P. J. (1992) Self-absorption corrections for well-type germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods B* **71**, 228-233.
- Appleby P. G. et Piliposian G. T. (2004) Efficiency corrections for variable sample height in well-type germanium gamma detectors. *Nuclear Instruments and Methods B* **225**, 423-433.
- Barbante C., Schwikowski M., Döring T., Gäggeler H. W., Schotterer U., Tobler L., Van de Velde K., Ferrari C., Cozzi G., Turetta A., Rosman K., Bolshov M., Capodaglio G., Cescon P. et Boutron C. (2004) Historical record of European emissions of heavy metals to the atmosphere since the 1650s from alpine snow/ice cores drilled near Monte Rosa. *Environmental Science and Technology* **38**, 4085-4090.
- Bard A. J., Parsons R. et Jordan J. (1985) *Standard potentials in aqueous solutions*, International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC), CRC Press, New York, 834 pages
- Bargagli R., Monaci F. et Bucci C. (2007) Environmental biogeochemistry of mercury in Antarctic ecosystems. *Soil Biology and Biochemistry* **39**, 352-360.
- Belzile N., Chen Y.-W. et Wang Z. (2001) Oxidation of antimony(III) by amorphous iron and manganese oxyhydroxides. *Chemical Geology* **174**, 379-387.
- Berg P., Risgaard-Petersen N. et Rysgaard S. (1998) Interpretation of measured concentration profiles in sediment pore water. *Limnology and Oceanography* **43**, 1500-1510.
- Berner R. A. (1980) *Early Diagenesis: A Theoretical Approach*. Princeton University Press, Princeton, NJ, 241 pages.
- Bienert G. P., Schüssler M. D., Jahn T. P. (2007) Metalloids: essential, beneficial or toxic? Major intrinsic proteins sort it out. *Trends in Biochemical Sciences* **33**, 20-26.
- Biester H., Bindler R., Martinez-Cortizas A., Engstrom D. R. (2007) Modeling the past atmospheric deposition of mercury using natural archives. *Environmental Science and Technology* **41**, 4851-4860.
- Bonner N. A. et Goishi W. (1961) Antimony in HCl solutions. Kinetics of complex exchange and hydrolysis reactions. *Journal of American Chemical Society* **83**, 85-99.

- Boudreau B. P. (1984) On the equivalence of nonlocal and radial diffusion models for porewater irrigation. *Journal of Marine Research* **42**, 731-735.
- Boudreau B. P. (1997) *Diagenetic models and their implementation: modelling transport and reactions in aquatic sediments*. Springer-Verlag, 414 pages.
- Boudreau B. P. (1999) Metals and models: Diagenetic modeling in freshwater lacustrine sediments. *Journal of Paleolimnology* **22**, 227-251.
- Boutron C. F., Candelone J.-P. et Hong S. (1995) Greenland snow and ice cores: unique archives of large-scale pollution of the troposphere of the Northern Hemisphere by lead and other heavy metals. *Science of the Total Environment* **160-161**, 233-241.
- Cabon J.-Y. et Madec C. L. (2004) Determination of major antimony species in seawater by continuous flow injection hydride generation atomic absorption spectrometry. *Analytica Chimica Acta* **504**, 209-215.
- Cal-Prieto M. J., Carlosena A., Andrade J. M., Martínez M. L., Muniategui S., López-Mahía P. et Prada D. (2001) Antimony as a tracer of the anthropogenic influence on soils and estuarine sediments. *Water, Air and Soil Pollution* **129**, 333-348.
- Carignan R. et Nriagu J. O. (1985) Trace metal deposition and mobility in the sediments of two lakes near Sudbury, Ontario. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **49**, 1753-1764.
- Carignan R., Lorrain S. et Lum K. A. (1994) A 50-yr record of pollution by nutrients, trace metals, and organic chemicals in the St. Lawrence River. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences* **51**, 1088-1100.
- Chappaz A., Gobeil C. et Tessier A. (2008) Geochemical and anthropogenic enrichments of Mo in sediments from perennially oxic and seasonally anoxic lakes in Eastern Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **72**, 170-184.
- Cheek C. H., Bonner N. A. et Wahl A. C. (1961) Antimony(III)-antimony(V) exchange reaction in HCl solutions. *Journal of American Chemical Society* **83**, 80-84.
- Chen Y.-W., Deng T.-L., Filella M. et Belzile N. (2003) Distribution and early diagenesis of antimony species in sediments and porewaters of freshwater lakes. *Environmental Science and Technology* **37**, 1163-1168.
- Clemente R., Dickinson N. M. et Lepp N. W. (2008) Mobility of metals and metalloids in a multi-element contaminated soil 20 years after cessation of the pollution source activity. *Environmental Pollution* **155**, 254-261.
- Cline J. D. (1969) Spectrophotometric determination of hydrogen sulphide in natural waters. *Limnology and Oceanography* **39**, 454-458.

- Cloy J. M., Farmer J. G., Graham M. C., MacKenzie A. B. et Cook G. T. (2005) A comparison of antimony and lead profiles over the past 2500 years in Flanders Moss ombrotrophic peat bog, Scotland. *Journal of Environmental Monitoring* **7**, 1137-1147.
- Cornett R. J., Chant L. et Link D. (1984) Sedimentation of Pb-210 in Laurentian Shield lakes. *Water Pollution Research Journal of Canada* **19**, 97-109.
- Couillard Y., Courcelles M., Cattaneo A. et Wunsam S. (2004) A test of the integrity of metal records in sediment cores based on the documented history of metal contamination in Lac Dufault (Québec, Canada). *Journal of Paleolimnology* **32**, 149-162.
- Couture R.-M., Gobeil C. et Tessier A. (2008) Chronology of atmospheric deposition of arsenic inferred from reconstructed sedimentary records. *Environmental Science and Technology* **42**, 6508-6513.
- De Boeck M., Kirsch-Volders M. et Lison D. (2003) Cobalt and antimony: genotoxicity and carcinogenicity. *Mutation Research/Fundamental and Molecular Mechanisms of Mutagenesis* **533**, 135-152.
- De Gregori I., Quiroz W., Pinochet H., Pannier F. et Potin-Gautier M. (2005) Simultaneous speciation analysis of Sb(III), Sb(V) and (CH₃)₃SbCl₂ by high performance liquid chromatography-hydride generation-atomic fluorescence spectrometry detection (HPLC-HG-AFS): Application to antimony speciation in sea water. *Journal of Chromatography A* **1091**, 94-101.
- Dietl C., Reifenhäuser W. et Peichl L. (1997) Association of antimony with traffic – occurrence in airborne dust, deposition and accumulation in standardized grass cultures. *Science of The Total Environment* **205**, 235-244.
- El Bilali L., Rasmussen P. E., Hall G.E.M. et Fortin D. (2002) Role of sediment composition on trace metal distribution in lake sediments. *Applied Geochemistry* **17**, 1171-1181.
- Filella M., Belzile N. et Chen Y.-W. (2002a) Antimony in the environment: A review focused on natural waters. I. Occurrence. *Earth-Science Reviews* **57**, 125-176.
- Filella M., Belzile N. et Chen Y.-W. (2002b) Antimony in the environment: A review focused on natural waters; II. Relevant solution chemistry. *Earth-Science Reviews* **59**, 265-285.
- Filella M. et May P. M. (2003) Computer simulation of the low-molecular-weight inorganic species distribution of antimony(III) and antimony(V) in natural waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **67**, 4013-4031.
- Filella M., Belzile N. et Lett M.-C. (2007) Antimony in the environment: A review focused on natural waters III. Microbiota relevant interactions. *Earth-Science Reviews* **80**, 195-217.

- Fowler B. A. et Goering P. L. (1991) Antimony. Dans: Merian E. (Ed), *Metals and their compounds in the environment: Occurrence, analysis, and biological relevance*. Weinheim, VCH, pp. 743-750.
- Furuta N., Iijima A., Kambe A., Sakai K. et Sato K. (2005) Concentrations, enrichment and predominant sources of Sb and other trace elements in size classified airborne particulate matter collected in Tokyo from 1995 to 2004. *Journal of Environmental Monitoring* **7**, 1155-1161.
- Gallon C., Tessier A., Gobeil, C. et Alfaro-De la Torre M. C. (2004) Modeling diagenesis of lead in sediments of a Canadian Shield lake. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **68**, 3531-3545.
- Gallon C. (2005) Diagenèse, chronologie et origine du plomb dans les sédiments de lacs du Bouclier canadien. Thèse de doctorat No 302. INRS-ETE, Université de Québec.
- Gallon C., Tessier A., Gobeil C. et Beaudin L. (2005) Sources and chronology of atmospheric lead deposition to a Canadian Shield lake: Inferences from Pb isotopes and PAH profiles. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **69**, 3199-3210.
- Gallon C., Tessier A. et Gobeil C. (2006) Historical perspective of industrial lead emissions to the atmosphere from a Canadian smelter. *Environmental Science and Technology* **40**, 741-747.
- Gebel T. (1997) Arsenic and antimony: comparative approach on mechanistic toxicology. *Chemico-Biological Interactions* **107**, 131-144.
- Gélinas Y., Lucotte M. et Schmit J.-P. (2000) History of the atmospheric deposition of major and trace elements in the industrialized St. Lawrence Valley, Quebec, Canada. *Atmospheric Environment* **34**, 1797-1810.
- Grahn E., Karlsson S., Karlsson U. et Düker A. (2006) Historical pollution of seldom monitored trace elements in Sweden – Part B: Sediment analysis of silver, antimony, thallium and indium. *Journal of Environmental Monitoring* **8**, 732-744.
- Hare L., Carignan R. et Huerta-Diaz M. A. (1994) A field study of metal toxicity and accumulation by benthic invertebrates: implications for the acid-volatile sulphide (AVS) model. *Limnology and Oceanography* **39**, 1653-1668.
- Helz R. G., Valerio S. M. et Capps E. N. (2002) Antimony speciation in alkaline sulfide solutions: role of zerovalent sulphur. *Environmental Science and Technology* **36**, 943-948.
- Huang H., Shu S. C., Shih J. H., Kuo C. J. et Chiu I. D. (1998) Antimony trichloride induces DNA damage and apoptosis in mammalian cells. *Toxicology* **129**, 113-123.

- Kada J. et Heit M. (1992) The inventories of anthropogenic Pb, Zn, As, Cd, and the radionuclides ^{137}Cs and excess ^{210}Pb in lake sediments of the Adirondack region, USA. *Hydrobiologia* **246**, 231-241.
- Kestin J., Sokolov M. et Wakeham W. A. (1978) Viscosity of liquid water in the range -8°C to 150°C . *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **7**, 941-948.
- Krachler M., Zheng J., Koerner R., Zdanowicz C., Fisher D. et Shotyk W. (2005) Increasing atmospheric antimony contamination in the northern hemisphere: snow and ice evidence from Devon Island, Arctic Canada. *Journal of Environmental Monitoring* **7**, 1169-1176.
- Krachler M., Zheng J., Fisher D. et Shotyk W. (2008) Atmospheric Sb in the Arctic during the past 16,000 years: Responses to climate change and human impacts. *Global Biogeochemical Cycles* **22**, GB1015, doi: 10.1029/2007GB002998.
- Laforte L. (2005) Thallium et indium dans les sédiments de deux lacs du Bouclier canadien: sources, géochimie et potentiel comme traceurs. Mémoire de maîtrise. INRS-ETE, Université de Québec.
- Laforte L., Tessier A., Gobeil C. et Carignan R. (2005) Thallium diagenesis un lacustrine sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **69**, 5295-5306.
- Latimer W. M. (1952) *The oxidation states of the elements and their potentials in aqueous solutions*, 2e edition, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, pp. 116-121.
- Loi sur la qualité de l'environnement (1972) [en ligne] www.menv.gouv.qc.ca/air/qualite/air.pdf (consulté le 8 août 2008)
- Matisoff G. et Wang X. (1998) Solute transport in sediments by freshwater infaunal bioirrigators. *Limnology and Oceanography* **43**, 1487-1499.
- Matisoff G. et Wang X. (2000) Particle mixing by freshwater infaunal bioirrigators: Midges (Chironomidae: Diptera) and mayflies (Ephemeroidea: Ephemeroptera). *Journal of Great Lakes Research* **26**, 174-182.
- Mayer B., Alpay S., Gould W. D., Lortie L. et Rosa F. (2007) The onset of anthropogenic activity recorded in lake sediments in the vicinity of the Horne smelter in Quebec, Canada: Sulfur isotope evidence. *Applied Geochemistry* **22**, 397-414.
- McCallum R. I. (2005) Occupational exposure to antimony compounds. *Journal of Environmental Monitoring* **7**, 1245-1250.
- McCutcheon B. Antimoine (2002) [en ligne] www.nrcan.gc.ca/mms/cmy/contenu/2002/11.pdf (consulté le 7 février 2007)

- McLaren J. W., Methven B. A. J., Lam J. W. H. et Berman S. S. (1995) The use of inductively coupled plasma mass spectrometry in the production of environmental certified materials. *Microchimica Acta* **119**, 287-295.
- MARC (Monitoring and Assessment Research Centre). (1983) *Exposure commitment assessments of environmental pollutants*. MARC Report Volume 3, No. 30, Chelsea College, University of London, pp. 32-52.
- Morford J. L., Martin W. R., Kalnejais L. H., François R., Bothner M. et Karle I.-M. (2007) Insight on geochemical cycling of U, Re and Mo from seasonal sampling in Boston Harbor, Massachusetts, USA. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **71**, 895-917.
- Mosselmans J. F. W., Helz G. R., Patrick R. A. D., Charnock J. M. et Vaughan D. J. (2000) A study of speciation of Sb in bisulfide solutions by X-ray absorption spectroscopy. *Applied Geochemistry* **15**, 879-889.
- Ng A. et Patterson C. (1981) Natural concentrations of lead in ancient Arctic and Antarctic ice. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **45**, 2109-2121.
- Nriagu J. O. (1990) Natural and anthropogenic emissions of trace metals to the atmosphere. *Environment* **32**, 7.
- Nriagu J. O. et Pacyna J. M. (1988) Quantitative assessment of worldwide contamination of air, water and soils by trace metals. *Nature* **333**, 134-139.
- Nriagu J. O., Wong H. K. T. et Coker R. D. (1982) Deposition and chemistry of pollutant metals in lakes around the smelters at Sudbury, Ontario. *Environmental Science and Technology* **16**, 551-560.
- Outridge P. M., Hermanson M. H. et Lockart W. L. (2002) Regional variations in atmospheric deposition and sources of anthropogenic lead in lake sediments across the Canadian Arctic. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **66**, 3521-3531.
- Pacyna J. M. et Pacyna E. G. (2001) An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide. *Environmental Reviews* **9**, 269-298.
- Paoletti F., Sirini P., Seifert H. et Vehlow J. (2001) Fate on antimony in municipal solid waste incineration. *Chemosphere* **42**, 533-543.
- Pokrovski G. S., Borisova A. Y., Roux J., Hazemann J.-L., Petdang A., Tella M. et Testemale D. (2006) Antimony speciation in saline hydrothermal fluids: A combined X-ray absorption fine structure spectroscopy and solubility study. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **70**, 4196-4214.

- Quentel F. et Filella M. (2002) Determination of inorganic antimony species in seawater by differential pulse anodic stripping voltammetry: stability of the trivalent state. *Analytica Chimica Acta* **452**, 237-244,
- Quirion R. (2004) Déposition et mobilité de Ag dans les sédiments de lacs du Bouclier canadien. Mémoire de maîtrise. INRS-ETE, Université de Québec.
- Ragaini R. C., Ralston H. R. et Roberts N. (1977) Environmental trace metal contamination in Kellogg, Idaho, near a lead smelting complex. *Environmental Science and Technology* **11**, 773-781.
- Règlement sur la qualité de l'atmosphère (1979) [en ligne] www.menv.gouv.qc.ca/air/qualite/air.pdf (consulté le 8 août 2008)
- Robbins J. A. (1978) *Geochemical and geophysical applications of radioactive lead*. Dans: The biogeochemistry of lead in the Environment (éd. J. O. Nriagu). Elsevier, Amsterdam, pp. 285-393.
- Santé Canada, Recommandations pour la qualité de l'eau potable au Canada: Antimoine (1999) [en ligne] <http://www.hc-sc.gc.ca/ewh-semt/pubs/water-eau/antimony-antimoine/guideline-recommandations-fra.php> (consulté le 11 avril 2008)
- Schecher M. E. et McAvoy D. (1998) MINEQL+. Environmental Research Software.
- Schelske C. L., Peplow A., Brenner M. et Spencer C. N. (1994) Low-background gamma counting: applications for ^{210}Pb dating in sediments. *Journal of Paleolimnology* **10**, 115-128.
- Semkin R. G., Mierle G. et Neureuther R. J. (2005) Hydrochemistry and mercury cycling in a High Arctic watershed. *Science of The Total Environment* **342**, 199-221.
- Shotyk W., Goodsite M. E., Roos-Barraclough F., Givelet N., Leroux G., Weiss D., Cheburkin A. K., Knudsen K., Heinemeier J., van Der Knaap W. O., Norton S. A. et Lohse C. (2005) Accumulation rates and predominant atmospheric sources of natural and anthropogenic Hg and Pb on the Faroe Islands. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **69**, 1-17.
- Shotyk W., Krachler M. et Chen B. (2006) Contamination of Canadian and European bottled waters with antimony from PET containers. *Journal of Environmental Monitoring* **8**, 288-292.
- Shotyk W. et Krachler M. (2007) Contamination of bottled waters with antimony leaching from polyethylene terephthalate (PET) increases upon storage. *Environmental Science and Technology* **41**, 1560-1563.
- Takahashi S., Sato H., Kubota Y., Utsumi H., Bedford J. S. et Okayasu R. (2002) Inhibition of DNA-double strand break repair by antimony compounds. *Toxicology* **180**, 249-256.

- Telmer K., Bonham-Carter G. F., Kliza D. A. et Hall G. E. M. (2004) The atmospheric transport and deposition of smelter emissions: Evidence from the multi-element geochemistry of snow, Quebec, Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **68**, 2961-2980.
- USEPA, Clean Water Act Analytical Test Methods: Priority pollutants (2009) [en ligne] <http://www.epa.gov/waterscience/methods/pollutants.htm> (consulté le 7 janvier 2009)
- Vandal G. M., Fitzgerald W. F., Boutron C. F. et Candelone J. P. (1993) Variations in mercury deposition to the Antarctic over the past 34,000 years. *Nature* **362**, 621-623.
- Vasil'ev V. P. et Shorokhova V. I. (1972) Determination of the standard thermodynamic characteristics of the antimonyl ion SbO^+ and antimony oxide by a potentiometric method. *Elektrokhimiya* **8**, 178-183.
- Vorlicek T. P., Kahn M. D., Kasuya Y. et Helz G. R. (2004) Capture of molybdenum in pyrite-forming sediments: role of ligand-induced reduction by polysulfides. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **68**, 547-556.
- Wang F., Tessier A. et Buffle J. (1998) Voltammetric determination of elemental sulfur in pore waters. *Limnology and Oceanography* **43**, 1353-1361.
- Weckwerth G. (2001) Verification of traffic emitted aerosol components in the ambient air of Cologne (Germany). *Atmospheric Environment* **35**, 5525-5536.
- Wedepohl K. H. (1995) The composition of the continental crust. *Geochimica et Cosmochimica Acta* **59**, 1217-1232.
- Wilson N. J., Craw D. et Hunter K. (2004) Antimony distribution and environmental mobility at an historic antimony smelter site, New Zealand. *Environmental Pollution* **129**, 257-266.
- Winship K. A. (1987) Toxicity of antimony and its compounds. *Adverse Drug Reactions and Acute Poisoning Reviews* **6**, 67-90.
- Yang H. et Rose N. (2005) Trace element pollution records in some UK lake sediments, their history, influence factors and regional differences. *Environment International* **31**, 63-75.

ANNEXE A

RÉSULTATS ANALYTIQUES

Tableau A1. Composition sédimentaire du bassin A du lac Tantaré.

Profondeur cm	{Sb} nmol g ⁻¹ (06/2002)	{Sb} nmol g ⁻¹ (07/2003)	{Fe} mmol g ⁻¹ (06/2002)	{Al} mmol g ⁻¹ (06/2002)	{Mn} umol g ⁻¹ (06/2002)
0,25	16,4	15,5	0,97	1,56	1,56
0,75	17,9	17,8	0,74	1,79	1,45
1,25	19,0	19,8	0,52	1,83	1,48
1,75	20,1	21,6	0,42	1,89	1,51
2,25	24,4	23,0	0,37	1,87	1,49
2,75	23,3	25,1	0,35	1,88	1,51
3,25	28,8	29,9	0,34	1,88	1,57
3,75	28,7	28,9	0,29	1,81	1,48
4,25	28,6	30,4	0,27	1,82	1,45
4,75	28,3	26,4	0,26	1,77	1,47
5,25	26,9	27,7	0,25	1,71	1,40
5,75	25,0	24,9	0,24	1,72	1,47
6,25	20,9	20,7	0,23	1,69	1,44
6,75	18,4	18,4	0,22	1,61	1,43
7,25	15,4	15,8	0,21	1,61	1,39
7,75	13,2	14,2	0,21	1,63	1,36
8,25	10,6	10,5	0,21	1,61	1,28
8,75	9,06	8,29	0,21	1,59	1,34
9,25	8,52	6,90	0,21	1,64	1,34
9,75	6,63	5,21	0,21	1,62	1,30
10,25	4,59	4,38	0,20	1,71	1,30
10,75	3,45	3,46	0,19	1,71	1,23

Tableau A1. (suite)

Profondeur cm	{Sb} nmol g ⁻¹ (06/2002)	{Sb} nmol g ⁻¹ (07/2003)	{Fe} mmol g ⁻¹	{Al} mmol g ⁻¹	{Mn} umol g ⁻¹
11,25	2,34	2,81	0,19	1,93	1,30
11,75	1,83	2,20	0,19	1,93	1,33
12,5	1,62	1,77	0,19	1,69	1,33
13,5	0,81	1,42	0,19	1,56	1,32
14,5	0,83	1,10	0,20	1,51	1,53
15,5	0,68	0,978	0,19	1,66	1,34
16,5	0,85	0,839	0,18	1,55	1,29
17,5	0,57	0,840	0,19	1,55	1,42
18,5	0,54	0,736	0,19	1,48	1,44
19,5	0,60	0,814	0,18	1,66	1,43
20,5	0,70	0,676	0,18	1,59	1,42
21,5	0,48	0,547	0,18	1,59	1,40
22,5	0,60	0,521	0,18	1,66	1,40
23,5	0,61	0,508	0,18	1,66	1,46

Tableau A2. Composition sédimentaire du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006).

Profondeur cm	{Sb} nmol g ⁻¹	{Fe} mmol g ⁻¹	{Al} mmol g ⁻¹	{Mn} umol g ⁻¹
0,25	9,02	0,568	1,54	2,35
0,75	9,99	0,587	1,57	2,32
1,25	9,70	0,605	1,43	2,43
1,75	10,3	0,593	1,57	2,34
2,25	10,9	0,603	1,60	2,45
2,75	11,0	0,547	1,13	2,40
3,25	11,7	0,541	1,07	2,37
3,75	12,1	0,489	0,94	2,32
4,25	12,3	0,495	1,13	2,43
4,75	12,8	0,487	1,15	2,61
5,25	14,3	0,515	1,39	2,67
5,75	19,1	0,545	1,60	2,75
6,25	21,9	0,511	1,17	2,59
6,75	24,0	0,562	1,68	2,86
7,25	23,8	0,497	0,99	2,51
7,75	23,8	0,524	1,35	2,79
8,25	23,3	0,516	1,57	2,84
8,75	24,0	0,526	1,59	2,98
9,25	22,8	0,517	1,52	3,13
9,75	24,0	0,504	1,49	3,42
10,5	22,9	0,509	1,52	3,50
11,5	24,8	0,492	1,49	3,45

Tableau A2. (suite)

Profondeur	{Sb}	{Fe}	{Al}	{Mn}
cm	nmol g ⁻¹	mmol g ⁻¹	mmol g ⁻¹	umol g ⁻¹
12,5	23,2	0,492	1,45	3,46
13,5	18,9	0,513	1,55	4,01
14,5	13,7	0,505	1,59	4,37
15,5	6,71	0,502	1,77	5,32
16,5	4,00	0,474	1,63	4,76
17,5	3,25	0,505	1,60	4,48
18,5	1,79	0,491	1,56	4,48
19,5	1,01	0,482	1,42	4,24
20,5	0,812	0,508	1,59	4,56
21,5	0,593	0,476	1,56	4,69
22,5	0,507	0,500	1,61	4,85
23,5	0,569	0,511	1,55	4,31
24,5	0,559	0,502	1,52	4,27
25,5	0,556	0,505	1,58	4,44
26,5	0,315	0,464	1,55	4,60
27,5	0,276	0,483	1,63	5,10
28,5	0,285	0,478	1,65	5,45
29,5	0,258	0,473	1,57	4,84

Tableau A3. Composition sédimentaire du lac Vose (août 2002).

Profondeur cm	{Sb} nmol g ⁻¹	{Fe} mmol g ⁻¹	{Al} mmol g ⁻¹	{Mn} umol g ⁻¹
0,25	14,1	0,611	1,28	20,2
0,75	15,4	0,464	1,28	14,5
1,25	15,8	0,441	1,28	11,2
1,75	17,8	0,462	1,29	11,0
2,25	20,1	0,496	1,28	10,1
2,75	20,2	0,527	1,28	9,41
3,25	19,0	0,562	1,26	9,63
3,75	18,8	0,549	1,25	9,20
4,25	19,7	0,522	1,26	8,86
4,75	23,5	0,511	1,26	9,13
5,25	27,0	0,496	1,25	9,48
5,75	28,3	0,512	1,27	9,53
6,25	31,5	0,541	1,28	9,58
6,75	32,4	0,520	1,35	9,40
7,25	32,4	0,525	1,27	9,77
7,75	33,2	0,497	1,27	8,70
8,25	29,2	0,505	1,27	8,31
8,75	22,5	0,483	1,27	8,31
9,25	17,8	0,433	1,27	8,11
9,75	17,7	0,412	1,27	8,17
10,25	17,9	0,430	1,25	8,65
10,75	15,7	0,400	1,25	8,42
11,25	19,7	0,393	1,26	8,60

Tableau A3. (suite)

Profondeur cm	{Sb} nmol g ⁻¹	{Fe} mmol g ⁻¹	{Al} mmol g ⁻¹	{Mn} umol g ⁻¹
11,75	13,8	0,376	1,26	8,58
12,5	12,2	0,376	1,28	8,55
13,5	12,2	0,388	1,26	8,88
14,5	11,6	0,366	1,26	8,69
15,5	11,2	0,385	1,29	8,52
16,5	10,9	0,392	1,27	8,81
17,5	10,2	0,368	1,26	9,29
18,5	9,6	0,354	1,27	9,56
19,5	7,8	0,343	1,28	9,87
20,5	4,8	0,317	1,30	10,1
21,5	3,1	0,274	1,31	10,5
22,5	1,8	0,265	1,44	10,9
23,5	1,2	0,272	1,28	11,1
24,5	0,9	0,274	1,31	11,0

Tableau A4. Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin A du lac Tantaré (juillet 2003) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
429-1	-4,5	22,2	9,67	4,94	33,5	208	0,410	3,19	0,629
429-2	-3,5	21,6	9,49	4,84	43,8	205	0,420	3,03	0,637
429-3	-2,5	21,2	9,52	4,86	60,2	200	0,430	2,77	0,784
429-4	-1,5	21,6	9,56	4,96	50,3	199	0,510	3,09	0,669
429-5	-0,5	22,3	9,72	5,31	60,8	192	0,760	3,44	0,700
429-6	0,5	22,6	10,1	5,79	61,7	145	13,1	3,35	0,705
429-7	1,5	23,6	11,0	6,31	62,1	141	44,6	3,73	0,720
429-8	2,5	23,8	11,1	6,44	61,7	186	42,8	3,75	0,719
429-9	3,5	24,0	11,1	6,54	61,5	190	41,6	3,92	0,759
429-10	4,5	23,8	11,0	6,43	22,4	208	38,8	4,89	0,434
429-11	5,5	24,1	11,0	6,50	22,3	124	37,8	4,05	0,435
429-12	6,5	24,1	11,4	6,46	21,9	119	40,0	5,17	0,430
429-13	7,5	24,0	11,3	6,37	21,6	117	37,6	4,63	0,440
429-14	8,5	24,0	11,5	6,39	21,9	116	38,4	4,57	0,499
429-15	9,5	24,2	11,7	6,40	26,2	106	40,1	5,00	0,646

Tableau A4. (suite) - 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
430-1	-4,5	21,8	9,62	4,87	46,3	222	0,380	3,21	0,611
430-2	-3,5	22,0	9,55	4,92	52,4	213	0,380	3,09	0,616
430-3	-2,5	21,8	9,53	4,90	55,1	218	0,400	3,46	0,627
430-4	-1,5	22,1	9,82	4,98	57,0	217	0,420	3,16	0,625
430-5	-0,5	21,9	9,91	5,02	57,0	208	0,470	3,67	0,647
430-6	0,5	22,1	10,4	5,33	56,6	188	2,83	5,07	0,666
430-7	1,5	21,7	9,94	5,27	58,4	194	38,8	4,64	0,705
430-8	2,5	22,9	10,4	5,55	58,1	311	41,9	4,20	0,700
430-9	3,5	22,9	11,7	5,85	58,1	381	68,6	6,71	0,732
430-10	4,5	23,0	10,8	5,52	33,5	316	45,0	4,56	0,629
430-11	5,5	23,5	11,5	5,76	43,8	287	54,0	4,67	0,637
430-12	6,5	23,4	11,5	5,80	60,2	281	56,7	5,26	0,784
430-13	7,5	23,0	11,6	5,76	50,3	218	60,6	5,60	0,669
430-14	8,5	23,2	11,6	5,88	60,8	283	58,4	5,95	0,700
430-15	9,5	23,3	11,8	5,88	61,7	291	66,5	6,35	0,705

Tableau A4. (suite) - 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
431-1	-4,5	21,9	9,56	5,04	62,1	201	0,39	3,27	0,720
431-2	-3,5	21,9	9,57	4,99	61,7	206	0,40	4,04	0,719
431-3	-2,5	21,4	9,41	4,84	61,5	208	0,38	3,19	0,759
431-4	-1,5	21,2	9,32	4,92	22,4	208	0,36	3,32	0,434
431-5	-0,5	21,6	9,80	5,00	22,3	228	0,36	3,62	0,435
431-6	0,5	21,3	10,0	5,07	21,9	293	2,92	2,51	0,430
431-7	1,5	22,7	10,4	5,51	21,6	299	32,4	2,80	0,440
431-8	2,5	22,5	10,2	5,46	21,9	331	31,1	2,80	0,499
431-9	3,5	22,4	10,2	5,48	26,2	314	33,5	3,23	0,646
431-10	4,5	22,8	10,3	5,79	46,3	191	37,8	3,87	0,611
431-11	5,5	23,1	10,5	5,99	52,4	134	38,6	3,85	0,616
431-12	6,5	22,2	10,4	5,72	55,1	118	37,8	4,63	0,627
431-13	7,5	22,2	10,7	5,76	57,0	125	43,9	5,07	0,625
431-14	8,5	22,1	10,7	5,86	57,0	136	41,9	4,43	0,647
431-15	9,5	21,9	10,8	5,92	56,6	191	47,4	4,71	0,666

Tableau A5. Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin A du lac Tantaré (juillet 2003) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mg C L⁻¹	pH
426-1	-4,5	8,81	10,3	33,6	<1. d.*	<1. d.	0,180	2,59	5,63
426-2	-3,5	6,73	7,17	33,9	<1. d.	<1. d.	0,160	2,46	5,67
426-3	-2,5	6,66	7,91	33,4	<1. d.	<1. d.	0,0600	2,29	5,58
426-4	-1,5	7,43	8,12	33,8	<1. d.	<1. d.	0,180	2,59	5,61
426-5	-0,5	7,10	7,40	33,7	<1. d.	<1. d.	0,170	3,13	5,54
426-6	0,5	7,82	6,22	37,0	<1. d.	<1. d.	0,310	2,30	5,45
426-7	1,5	7,95	1,83	27,4	<1. d.	<1. d.	0,420	3,59	5,84
426-8	2,5	9,23	2,44	18,0	<1. d.	<1. d.	0,150	3,18	6,11
426-9	3,5	7,42	0,42	7,56	<1. d.	<1. d.	0,130	2,89	6,39
426-10	4,5	7,33	2,01	3,64	<1. d.	<1. d.	0,430	2,79	6,32
426-11	5,5	6,77	0,48	4,10	<1. d.	<1. d.	0,480	3,75	6,42
426-12	6,5	7,54	2,08	7,55	<1. d.	0,0300	0,0900	4,21	6,44
426-13	7,5	7,42	2,38	9,69	<1. d.	0,120	0,450	3,59	6,45
426-14	8,5	8,35	5,18	11,8	<1. d.	0,100	0,520	3,53	6,48
426-15	9,5	6,93	1,56	14,4	<1. d.	0,0700	0,590	4,61	6,35

* inférieur à la limite de détection de la méthode analytique utilisée

Tableau A5. (suite) - 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mg C L⁻¹	pH
427-1	-4,5	7,37	8,47	33,0	< 1. d.	< 1. d.	0,200	2,26	5,57
427-2	-3,5	6,97	7,47	33,0	< 1. d.	< 1. d.	0,00	3,79	5,15
427-3	-2,5	8,00	8,54	33,0	< 1. d.	< 1. d.	0,140	2,33	5,31
427-4	-1,5	7,53	8,85	33,4	< 1. d.	< 1. d.	0,160	1,94	5,15
427-5	-0,5	7,51	8,65	32,0	< 1. d.	< 1. d.	0,080	2,31	5,24
427-6	0,5	9,83	6,00	27,9	< 1. d.	< 1. d.	0,360	2,17	5,23
427-7	1,5	7,95	6,97	16,5	< 1. d.	< 1. d.	0,430	2,74	5,96
427-8	2,5	7,57	0,01	9,43	< 1. d.	< 1. d.	0,270	2,70	6,14
427-9	3,5	7,69	4,89	9,28	< 1. d.	< 1. d.	0,440	3,10	6,13
427-10	4,5	7,30	5,35	10,6	< 1. d.	< 1. d.	0,0800	2,70	6,09
427-11	5,5	9,79	9,77	14,3	0,40	0,05	0,390	2,90	5,63
427-12	6,5	5,95	8,93	20,0	0,89	0,19	0,350	2,81	5,68
427-13	7,5	11,5	13,5	15,7	1,98	0,50	0,410	2,97	5,53
427-14	8,5	6,14	4,37	14,2	2,17	0,68	0,420	2,96	5,56
427-15	9,5	5,86	1,58	14,0	1,54	0,69	0,350	3,62	5,50

Tableau A5. (suite) - 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mg C L⁻¹	pH
428-1	-4,5	7,76	10,7	34,2	< l. d.	< l. d.	0,150	2,48	5,67
428-2	-3,5	7,12	9,16	32,8	< l. d.	< l. d.	0,180	2,38	5,94
428-3	-2,5	7,36	9,04	33,0	< l. d.	< l. d.	0,140	2,13	6,09
428-4	-1,5	8,34	8,79	32,9	< l. d.	< l. d.	0,130	2,18	6,11
428-5	-0,5	7,68	10,3	33,2	< l. d.	< l. d.	0,220	2,34	6,17
428-6	0,5	7,16	1,04	31,7	< l. d.	< l. d.	0,170	2,33	6,19
428-7	1,5	8,31	2,93	18,8	< l. d.	< l. d.	0,270	3,58	6,20
428-8	2,5	5,38	2,13	13,6	< l. d.	< l. d.	0,380	2,68	6,17
428-9	3,5	6,46	1,42	9,93	< l. d.	< l. d.	0,380	2,55	6,17
428-10	4,5	7,38	7,69	4,63	0,04	< l. d.	0,360	2,77	6,21
428-11	5,5	7,44	3,51	5,79	0,43	0,0800	0,500	2,85	5,63
428-12	6,5	5,63	0,970	8,59	1,48	0,570	0,330	2,71	5,68
428-13	7,5	5,19	1,11	12,0	0,710	0,370	0,430	3,03	5,53
428-14	8,5	6,04	1,04	13,4	1,15	0,500	0,210	3,79	5,56
428-15	9,5	6,46	3,59	19,6	1,58	0,620	0,340	3,11	5,50

Tableau A6. Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
499-1	-4,5	-	34,4	9,76	205	149	410	11,2	1,56
499-2	-3,5	-	35,9	10,4	223	135	469	12,1	1,76
499-3	-2,5	-	34,6	10,1	222	141	496	11,8	1,79
499-4	-1,5	-	34,7	10,4	227	174	578	11,5	1,98
499-5	-0,5	-	35,8	10,4	218	131	513	10,8	1,90
499-6	0,5	-	35,1	10,4	218	131	523	7,5	2,06
499-7	1,5	-	39,5	11,4	234	117	668	0,62	2,38
499-8	2,5	-	38,9	11,1	222	108	669	5,75	2,44
499-9	3,5	-	36,9	10,4	214	103	651	5,18	2,42
499-10	4,5	-	39,0	10,8	215	95,8	656	5,12	2,65
499-11	5,5	-	42,6	11,6	232	96,7	723	5,24	2,98
499-12	6,5	-	42,0	11,3	226	87,5	729	5,05	3,00
499-13	7,5	-	42,8	11,5	226	86,5	756	4,96	3,15
499-14	8,5	-	46,3	12,2	246	87,5	788	5,34	3,53
499-15	9,5	-	44,0	11,5	233	127	771	5,14	3,44

Tableau A6. (suite) – 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
500-1	-4,5	-	29,5	8,19	142	106	210	8,84	1,11
500-2	-3,5	-	29,7	8,17	151	109	201	8,47	1,14
500-3	-2,5	-	30,2	8,44	159	156	233	9,07	1,19
500-4	-1,5	-	31,3	8,66	175	138	259	9,79	1,26
500-5	-0,5	-	30,9	8,65	186	119	290	10,5	1,30
500-6	0,5	-	36,0	9,74	204	127	362	9,40	1,60
500-7	1,5	-	36,0	9,57	193	83,0	369	6,89	1,66
500-8	2,5	-	34,6	8,96	179	99,7	382	6,32	1,71
500-9	3,5	-	36,8	9,53	189	74,4	409	6,14	1,91
500-10	4,5	-	36,9	9,32	188	73,5	402	5,57	2,04
500-11	5,5	-	37,9	9,33	188	86,0	411	5,24	2,19
500-12	6,5	-	39,7	9,84	194	66,4	452	5,36	2,38
500-13	7,5	-	41,1	9,80	194	63,0	460	5,29	2,55
500-14	8,5	-	42,5	9,95	200	63,3	475	5,52	2,76
500-15	9,5	-	42,1	9,80	196	60,3	482	5,52	2,83

Tableau A6. (suite) – 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
501-1	-4,5	-	37,8	11,0	246	120	562	9,40	2,41
501-2	-3,5	-	36,8	11,0	232	117	591	8,98	2,44
501-3	-2,5	-	37,1	11,1	235	117	639	7,28	2,58
501-4	-1,5	-	39,0	11,4	239	107	689	7,42	2,84
501-5	-0,5	-	39,2	11,2	242	97,9	699	7,51	2,99
501-6	0,5	-	38,7	10,8	231	88,6	731	6,59	3,08
501-7	1,5	-	39,3	11,0	221	81,9	678	5,25	3,24
501-8	2,5	-	42,8	11,8	236	77,8	754	5,82	3,68
501-9	3,5	-	40,8	11,1	225	75,7	737	5,44	3,64
501-10	4,5	-	41,3	11,3	220	91,5	753	5,54	3,78
501-11	5,5	-	39,8	10,8	209	63,7	734	5,34	3,78
501-12	6,5	-	43,6	11,6	230	64,2	740	5,86	4,24
501-13	7,5	-	42,3	11,3	221	62,0	745	5,78	4,22
501-14	8,5	-	43,1	11,5	225	56,7	773	6,05	4,42
501-15	9,5	-	44,1	11,8	220	53,8	799	6,24	4,62

Tableau A7. Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mmol L⁻¹	pH
496-1	-4,5	9,77	5,65	2,52	0,352	0,645	3,24	1,62	6,93
496-2	-3,5	17,0	9,72	2,66	0,332	0,565	3,31	1,79	6,98
496-3	-2,5	10,5	5,65	2,26	0,307	0,407	3,86	2,04	6,97
496-4	-1,5	11,0	5,65	2,48	0,244	0,430	3,98	2,06	6,93
496-5	-0,5	13,5	5,65	2,57	0,246	0,789	4,14	2,21	6,90
496-6	0,5	14,1	10,1	3,31	0,247	0,490	4,22	2,46	6,92
496-7	1,5	14,1	5,65	1,97	0,199	0,146	4,65	2,09	6,96
496-8	2,5	14,7	5,65	2,36	0,148	0,150	4,32	2,01	6,95
496-9	3,5	15,8	5,65	2,93	0,106	0,199	4,82	1,97	6,95
496-10	4,5	15,5	5,65	3,44	0,0770	1,28	4,98	1,85	6,92
496-11	5,5	12,1	5,65	3,42	0,0930	0,119	4,85	1,86	6,87
496-12	6,5	16,3	5,65	3,17	0,0699	0,105	5,29	1,86	6,87
496-13	7,5	12,5	5,65	3,54	0,0940	0,0621	4,98	1,83	6,92
496-14	8,5	12,4	5,65	3,04	0,0631	0,127	5,07	1,80	7,02
496-15	9,5	11,8	5,65	2,97	0,110	0,223	5,72	1,82	6,96

Tableau A7. (suite) – 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mmol L⁻¹	pH
497-1	-4,5	9,17	4,19	14,0	3,58	6,86	0,942	0,504	6,87
497-2	-3,5	7,87	4,19	15,1	2,52	7,08	0,990	0,538	6,92
497-3	-2,5	7,88	4,19	10,0	2,99	7,40	1,07	0,591	6,93
497-4	-1,5	8,94	4,19	8,80	2,80	6,16	1,10	0,650	6,94
497-5	-0,5	9,04	4,42	6,33	2,91	3,84	1,28	0,782	6,98
497-6	0,5	11,0	4,19	5,93	2,71	2,60	1,61	0,919	6,97
497-7	1,5	11,5	7,43	5,40	2,09	1,56	1,84	1,04	6,93
497-8	2,5	12,2	5,56	4,77	2,04	1,54	2,13	1,13	6,90
497-9	3,5	9,59	4,19	3,95	1,82	2,94	2,35	1,15	6,85
497-10	4,5	10,7	4,19	3,15	1,75	0,275	2,57	1,15	6,89
497-11	5,5	10,9	4,19	3,50	0,901	0,738	3,54	1,18	6,92
497-12	6,5	9,13	4,19	3,18	1,10	0,271	3,02	1,15	6,92
497-13	7,5	12,0	4,65	3,23	1,04	0,206	3,43	< l. d.	6,86
497-14	8,5	14,3	5,35	4,11	1,06	0,207	3,22	1,21	6,86
497-15	9,5	11,3	4,16	2,81	1,06	0,0841	3,59	1,20	6,83

Tableau A7. (suite) - 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mmol L⁻¹	pH
498-1	-4,5	11,8	5,65	2,60	0,201	0,273	3,62	2,14	6,98
498-2	-3,5	14,7	5,72	2,31	0,146	0,0676	3,69	2,13	6,99
498-3	-2,5	7,50	5,65	2,02	0,236	0,241	3,92	1,84	6,97
498-4	-1,5	11,3	5,65	2,12	0,210	0,124	5,17	1,87	6,98
498-5	-0,5	10,8	5,65	2,50	0,207	0,179	4,12	1,86	6,97
498-6	0,5	11,8	5,65	3,24	0,208	0,144	4,25	1,81	6,99
498-7	1,5	15,1	5,65	2,88	0,206	0,180	4,39	1,82	6,97
498-8	2,5	13,8	6,85	3,04	0,123	0,142	4,80	1,76	7,01
498-9	3,5	7,11	5,65	2,58	0,177	0,108	4,70	1,84	7,00
498-10	4,5	6,55	5,65	2,73	0,188	0,0892	5,17	1,73	6,96
498-11	5,5	6,90	5,65	2,69	0,183	0,101	4,16	1,72	6,97
498-12	6,5	12,6	5,65	3,04	0,125	0,159	5,21	1,74	6,95
498-13	7,5	7,04	5,65	2,68	0,0790	0,0711	5,20	1,73	6,92
498-14	8,5	18,7	6,50	3,32	0,100	0,106	6,66	1,96	6,95
498-15	9,5	8,08	5,65	2,57	0,0980	0,0940	5,56	< l. d.	6,90

Tableau A8. Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (juillet 2007) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L ⁻¹	[Mg] μmol L ⁻¹	[K] μmol L ⁻¹	[Ca] μmol L ⁻¹	[Sb] pmol L ⁻¹	[Fe] μmol L ⁻¹	[Al] μmol L ⁻¹	[Mn] μmol L ⁻¹
505-1	-4,5	50,1	37,6	10,1	171	175	491	11,9	1,78
505-2	-3,5	50,8	38,1	9,90	184	184	549	12,5	1,93
505-3	-2,5	50,7	37,9	9,99	186	189	566	12,3	1,97
505-4	-1,5	50,4	38,2	10,2	200	192	611	12,6	2,09
505-5	-0,5	51,7	39,1	10,8	214	205	672	13,7	2,29
505-6	0,5	51,5	38,4	10,9	221	171	664	8,59	2,38
505-7	1,5	51,6	38,2	11,0	221	151	662	6,58	2,46
505-8	2,5	51,8	38,9	11,4	220	146	663	5,80	2,58
505-9	3,5	51,3	39,5	11,2	220	126	655	5,47	2,67
505-10	4,5	51,1	40,1	11,3	222	118	660	5,42	2,76
505-11	5,5	51,0	41,0	11,4	224	114	664	5,53	2,87
505-12	6,5	50,3	41,2	11,4	225	112	659	5,48	2,96
505-13	7,5	50,9	41,6	11,5	225	104	659	5,32	3,06
505-14	8,5	51,7	42,7	12,0	231	105	677	5,52	3,24
505-15	9,5	51,1	42,4	11,7	228	100	664	5,56	3,27

Tableau A8. (suite) - 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
506-1	-4,5	34,5	22,1	6,20	45,9	200	15,2	2,19	0,599
506-2	-3,5	34,3	22,2	6,18	44,4	124	13,8	2,23	0,600
506-3	-2,5	35,5	23,0	6,55	46,9	121	17,9	2,44	0,627
506-4	-1,5	36,4	23,7	6,44	49,8	125	29,8	2,93	0,665
506-5	-0,5	37,3	24,6	6,68	61,9	120	62,5	5,23	0,719
506-6	0,5	40,2	27,6	7,55	108,2	113	145	7,77	0,940
506-7	1,5	43,2	30,2	7,97	140,2	102	201	7,04	1,14
506-8	2,5	44,2	31,3	8,08	153,1	88,0	224	5,53	1,29
506-9	3,5	45,3	33,0	8,53	157,7	80,5	242	5,26	1,44
506-10	4,5	42,2	31,9	8,10	149,3	76,0	234	4,59	1,45
506-11	5,5	45,5	35,5	8,75	163,9	74,0	261	5,02	1,66
506-12	6,5	46,9	37,3	9,07	168,9	74,8	275	5,06	1,81
506-13	7,5	46,9	38,0	9,22	170,3	76,4	283	5,08	1,92
506-14	8,5	47,4	38,8	9,44	173,4	73,8	292	5,05	2,04
506-15	9,5	48,0	39,6	9,65	177,4	72,2	123	9,20	2,16

Tableau A8. (suite) - 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
507-1	-4,5	55,8	36,3	10,1	75,3	123	27,7	3,63	0,993
507-2	-3,5	37,6	24,3	6,60	50,7	124	25,7	2,77	0,676
507-3	-2,5	37,4	24,9	6,68	55,1	129	46,4	3,42	0,717
507-4	-1,5	39,5	27,2	6,87	78,1	122	110	6,22	0,819
507-5	-0,5	43,5	29,9	7,69	128	114	188	6,86	1,03
507-6	0,5	45,4	29,7	8,01	144	97,0	230	6,37	1,17
507-7	1,5	46,2	31,0	8,29	154	90,7	249	5,90	1,29
507-8	2,5	46,5	33,0	8,64	163	91,2	265	5,55	1,41
507-9	3,5	46,5	34,1	8,66	166	81,7	272	5,27	1,49
507-10	4,5	47,5	35,2	8,97	171	81,0	282	5,18	1,58
507-11	5,5	73,9	56,7	14,6	271	81,6	460	7,81	2,68
507-12	6,5	47,5	39,8	10,2	192	77,8	320	5,68	1,86
507-13	7,5	52,4	41,3	10,6	200	78,4	333	5,70	1,97
507-14	8,5	49,3	38,3	9,56	182	76,1	309	5,31	1,89
507-15	9,5	48,4	38,1	9,61	182	72,6	310	5,39	1,95

Tableau A9. Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du bassin B du lac Tantaré (juillet 2007) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl ⁻ μmol L ⁻¹	NO ₃ ⁻ μmol L ⁻¹	SO ₄ ²⁻ μmol L ⁻¹	ΣS(-II) μmol L ⁻¹	ΣS(0) μmol L ⁻¹	CID mmol L ⁻¹	COD mmol L ⁻¹	pH
502-1	-4,5	7,88	< l. d.	25,4	0,0380	1,20	0,643	0,565	6,65
502-2	-3,5	9,76	< l. d.	23,9	0,0424	0,722	0,833	0,538	6,74
502-3	-2,5	7,51	< l. d.	21,2	0,0511	1,70	0,925	0,654	6,85
502-4	-1,5	7,87	< l. d.	19,0	0,0848	3,00	0,971	0,678	6,83
502-5	-0,5	8,87	< l. d.	13,7	0,511	2,00	1,19	0,818	6,80
502-6	0,5	9,79	< l. d.	5,52	0,982	1,47	1,27	1,09	6,73
502-7	1,5	8,82	< l. d.	1,79	1,08	1,20	1,52	1,21	6,81
502-8	2,5	9,25	< l. d.	2,33	1,01	1,04	1,67	1,15	6,91
502-9	3,5	10,2	< l. d.	2,10	0,706	0,681	1,73	1,72	6,93
502-10	4,5	9,08	< l. d.	2,44	0,511	0,573	1,67	1,07	6,93
502-11	5,5	9,60	< l. d.	4,02	0,342	0,601	2,16	1,23	6,86
502-12	6,5	10,7	< l. d.	2,87	0,221	0,612	2,25	1,16	6,81
502-13	7,5	13,1	< l. d.	3,40	0,108	0,682	2,44	1,18	6,78
502-14	8,5	10,3	< l. d.	2,60	0,172	0,468	2,55	1,12	6,82
502-15	9,5	10,8	< l. d.	1,68	0,381	0,367	2,82	1,54	6,89

Tableau A9. (suite) – 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mmol L⁻¹	pH
503-1	-4,5	7,95	< l. d.	32,1	0,0225	0,0762	0,503	0,252	6,41
503-2	-3,5	8,09	< l. d.	30,9	0,0272	0,222	0,571	3,95	6,46
503-3	-2,5	7,74	< l. d.	28,0	0,0267	0,775	0,547	0,276	6,55
503-4	-1,5	10,3	< l. d.	25,9	0,0392	1,53	0,652	0,361	6,68
503-5	-0,5	7,03	< l. d.	23,7	0,0747	2,35	0,703	0,528	6,79
503-6	0,5	11,3	< l. d.	4,71	1,97	3,36	1,14	0,919	6,94
503-7	1,5	8,57	< l. d.	2,78	1,97	1,79	1,13	1,22	6,95
503-8	2,5	8,66	< l. d.	3,97	2,14	1,71	1,32	0,937	6,70
503-9	3,5	22,7	< l. d.	3,14	1,30	0,377	1,51	0,973	6,84
503-10	4,5	8,83	< l. d.	3,64	0,866	1,05	1,61	1,14	6,78
503-11	5,5	7,04	< l. d.	3,28	0,728	0,746	1,82	0,918	6,80
503-12	6,5	11,8	< l. d.	4,85	0,750	0,340	1,94	1,08	6,72
503-13	7,5	9,35	< l. d.	3,64	0,599	0,433	2,17	2,85	6,70
503-14	8,5	13,4	< l. d.	3,24	0,512	0,399	2,14	1,13	6,77
503-15	9,5	8,23	< l. d.	4,38	0,629	0,388	2,13	1,57	6,75

Tableau A9. (suite) – 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mmol L⁻¹	pH
504-1	-4,5	10,3	< l. d.	2,14	0,332	1,15	1,55	1,87	6,84
504-2	-3,5	9,60	< l. d.	2,83	0,213	1,62	1,69	2,12	6,86
504-3	-2,5	12,8	< l. d.	< l. d.	0,191	1,15	1,61	1,87	6,82
504-4	-1,5	15,0	< l. d.	3,14	0,186	0,521	1,79	2,46	6,82
504-5	-0,5	15,0	< l. d.	< l. d.	0,239	0,785	2,01	1,83	6,75
504-6	0,5	11,7	< l. d.	1,71	0,232	0,913	2,47	2,25	6,74
504-7	1,5	14,0	< l. d.	< l. d.	0,177	0,673	2,26	2,45	6,75
504-8	2,5	14,1	< l. d.	< l. d.	0,117	0,518	2,16	2,82	6,75
504-9	3,5	12,8	< l. d.	2,50	0,162	0,385	2,31	2,09	6,76
504-10	4,5	10,0	< l. d.	< l. d.	0,207	0,677	2,74	1,87	6,70
504-11	5,5	10,4	< l. d.	2,09	0,210	0,580	2,90	1,83	6,77
504-12	6,5	11,3	< l. d.	< l. d.	0,168	0,536	2,77	2,09	6,70
504-13	7,5	12,6	< l. d.	3,84	0,128	0,460	2,90	1,72	6,78
504-14	8,5	13,1	< l. d.	1,99	0,169	0,380	2,64	2,17	6,74
504-15	9,5	13,7	< l. d.	3,71	0,233	0,330	3,33	1,88	6,69

Tableau A10. Métaux et antimoine dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du lac Vose (septembre 2003) – 1^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
438-1	-4,5	25,8	20,5	3,25	104	354	52,0	5,29	10,5
438-2	-3,5	25,4	20,6	3,32	109	361	56,9	5,81	10,8
438-3	-2,5	25,8	20,7	3,39	116	366	64,6	5,59	11,4
438-4	-1,5	25,2	20,7	3,42	119	390	72,8	6,64	12,1
438-5	-0,5	25,7	20,5	3,52	123	213	76,0	6,94	11,9
438-6	0,5	25,4	21,5	3,91	169	214	134	6,35	16,5
438-7	1,5	25,5	23,9	4,32	186	184	162	6,08	19,0
438-8	2,5	26,2	25,6	4,73	194	170	168	5,61	19,3
438-9	3,5	27,8	27,3	5,07	200	163	173	6,37	19,3
438-10	4,5	26,9	27,4	5,15	191	155	169	6,66	18,2
438-11	5,5	27,8	28,6	5,45	198	156	170	6,51	17,8
438-12	6,5	28,3	29,5	5,71	207	167	170	7,05	17,5
438-13	7,5	28,6	30,4	5,94	205	152	169	6,88	17,0
438-14	8,5	28,9	31,3	6,11	205	138	168	6,40	16,8
438-15	9,5	29,3	32,0	6,22	209	165	167	6,53	16,6

Tableau A10. (suite) – 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
439-1	-4,5	26,0	20,7	3,26	105	354	54,0	5,66	10,6
439-2	-3,5	25,8	20,6	3,33	106	349	56,1	5,42	10,7
439-3	-2,5	25,2	20,2	3,30	123	375	58,9	6,00	10,8
439-4	-1,5	25,2	20,4	3,36	120	365	64,8	6,45	11,3
439-5	-0,5	25,3	20,5	3,52	130	340	84,9	7,45	12,8
439-6	0,5	25,3	21,2	4,02	210	218	163	6,93	18,3
439-7	1,5	25,3	23,4	4,32	213	192	190	6,62	20,6
439-8	2,5	25,5	25,1	4,62	206	179	193	6,17	20,5
439-9	3,5	26,8	27,2	5,17	210	168	203	6,53	20,4
439-10	4,5	26,6	27,4	5,38	203	166	195	6,60	19,0
439-11	5,5	26,3	28,1	5,50	202	160	195	6,89	18,7
439-12	6,5	26,9	28,9	5,78	205	167	192	6,93	17,9
439-13	7,5	27,0	29,8	5,94	204	163	194	6,78	17,8
439-14	8,5	28,0	31,3	6,23	211	148	195	6,54	17,8
439-15	9,5	28,0	32,0	6,36	213	143	190	6,34	17,3

Tableau A10. (suite) – 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	[Na] μmol L⁻¹	[Mg] μmol L⁻¹	[K] μmol L⁻¹	[Ca] μmol L⁻¹	[Sb] pmol L⁻¹	[Fe] μmol L⁻¹	[Al] μmol L⁻¹	[Mn] μmol L⁻¹
440-1	-4,5	25,3	20,6	3,30	119	343	51,1	4,97	10,2
440-2	-3,5	24,8	20,3	3,20	109	341	52,5	4,79	10,4
440-3	-2,5	24,6	20,2	3,26	109	352	54,3	5,53	10,5
440-4	-1,5	24,9	20,3	3,31	109	381	62,0	5,96	10,9
440-5	-0,5	24,7	20,3	3,53	139	276	93,6	6,49	13,2
440-6	0,5	24,5	21,0	3,95	184	190	155	6,82	17,3
440-7	1,5	24,6	22,8	4,21	186	185	177	6,67	19,1
440-8	2,5	25,6	24,8	4,65	191	171	189	7,25	19,4
440-9	3,5	25,0	25,3	4,81	192	167	189	6,91	18,8
440-10	4,5	25,9	26,6	5,18	193	161	192	7,07	18,3
440-11	5,5	26,4	27,7	5,44	194	158	193	7,36	17,8
440-12	6,5	26,0	28,0	5,51	191	158	191	7,44	17,2
440-13	7,5	26,8	28,9	5,83	200	157	189	7,52	16,7
440-14	8,5	27,2	29,9	6,04	203	150	186	6,98	16,4
440-15	9,5	28,1	31,1	6,37	212	14	188	7,28	16,4

Tableau A11. Anions, carbone organique et inorganique, soufre élémentaire et pH dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et dans les eaux interstitielles du lac Vose (septembre 2003) – 1^o série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl ⁻ μmol L ⁻¹	NO ₃ ⁻ μmol L ⁻¹	SO ₄ ²⁻ μmol L ⁻¹	ΣS(-II) μmol L ⁻¹	ΣS(0) μmol L ⁻¹	CID mmol L ⁻¹	COD mg L ⁻¹	pH
435-1	-4,5	8,91	< l. d.	52,0	0,300	0,180	0,570	5,30	6,51
435-2	-3,5	5,44	< l.d.	50,6	0,620	0,250	0,650	5,60	6,46
435-3	-2,5	5,56	0,230	47,4	1,07	0,340	0,640	6,00	6,49
435-4	-1,5	7,26	3,96	42,6	1,27	1,02	0,750	6,20	6,57
435-5	-0,5	7,07	0,340	36,7	1,63	1,96	0,710	8,20	6,67
435-6	0,5	8,15	3,41	13,3	5,21	5,17	0,810	8,10	6,76
435-7	1,5	10,5	2,44	3,12	1,53	2,76	1,42	10,7	6,74
435-8	2,5	11,7	4,19	2,86	0,740	1,63	1,62	11,2	6,72
435-9	3,5	9,59	4,43	3,28	0,570	1,73	1,24	11,6	6,68
435-10	4,5	10,0	0,880	3,02	0,580	1,34	1,42	11,2	6,66
435-11	5,5	8,15	1,02	2,89	0,810	1,28	1,81	11,4	6,65
435-12	6,5	10,2	1,87	3,48	0,480	1,13	1,92	11,8	6,61
435-13	7,5	13,4	< l. d.	2,51	0,440	0,960	1,95	11,2	6,63
435-14	8,5	9,29	0,490	2,82	0,110	0,730	2,02	11,8	6,61
435-15	9,5	8,79	3,60	3,09	0,0300	0,520	2,06	11,7	6,62

Tableau A11. (suite) - 2^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mg L⁻¹	pH
436-1	-4,5	5,55	< l. d.	53,8	0,0600	0,180	0,690	6,10	6,45
436-2	-3,5	5,95	< l. d.	52,8	0,260	0,200	0,680	5,50	6,55
436-3	-2,5	11,4	0,700	52,5	0,270	0,210	0,640	5,50	6,50
436-4	-1,5	11,1	1,17	50,8	0,360	0,330	0,510	5,60	6,39
436-5	-0,5	10,7	1,67	46,1	0,270	1,06	0,670	6,90	6,53
436-6	0,5	12,6	2,87	4,06	5,21	5,63	1,19	9,10	6,73
436-7	1,5	13,5	0,650	4,01	2,79	3,25	1,28	9,80	6,81
436-8	2,5	12,9	4,43	3,10	2,15	2,34	1,20	9,80	6,77
436-9	3,5	8,67	0,700	3,04	2,01	2,35	1,53	10,0	6,76
436-10	4,5	10,5	3,50	6,17	1,79	2,25	1,51	9,70	6,78
436-11	5,5	9,10	0,410	3,64	1,89	2,37	1,40	10,0	6,75
436-12	6,5	8,13	1,04	3,56	1,89	1,23	1,77	10,1	6,78
436-13	7,5	8,91	0,0100	3,70	2,22	0,850	1,64	10,2	6,77
436-14	8,5	10,8	0,710	3,48	1,65	0,680	1,90	10,2	6,78
436-15	9,5	8,43	< l. d.	3,88	1,48	0,490	1,90	10,8	6,77

Tableau A11. (suite) - 3^e série de données.

Dialyseur et cellule	Profondeur cm	Cl⁻ μmol L⁻¹	NO₃⁻ μmol L⁻¹	SO₄²⁻ μmol L⁻¹	ΣS(-II) μmol L⁻¹	ΣS(0) μmol L⁻¹	CID mmol L⁻¹	COD mg L⁻¹	pH
437-1	-4,5	5,67	0,790	53,4	0,250	0,200	0,680	5,60	6,62
437-2	-3,5	5,98	< l. d.	52,1	0,310	0,210	0,720	5,70	6,64
437-3	-2,5	6,65	< l. d.	49,3	0,440	0,370	0,720	6,10	6,71
437-4	-1,5	5,75	< l. d.	46,5	0,590	1,15	0,740	6,20	6,72
437-5	-0,5	5,23	< l. d.	40,8	0,500	2,08	0,760	8,90	6,87
437-6	0,5	6,39	< l. d.	12,0	1,39	4,10	1,43	11,0	6,88
437-7	1,5	7,60	< l. d.	4,98	0,480	1,74	1,44	11,3	6,88
437-8	2,5	9,08	< l. d.	5,50	0,250	1,28	1,72	11,4	6,84
437-9	3,5	9,63	< l. d.	5,18	0,280	1,08	1,88	11,4	6,82
437-10	4,5	9,43	< l. d.	5,03	0,350	1,04	1,77	11,6	6,81
437-11	5,5	9,80	< l. d.	5,19	0,370	0,840	2,11	11,6	6,71
437-12	6,5	21,6	< l. d.	4,75	0,300	0,780	2,11	12,3	6,77
437-13	7,5	10,2	< l. d.	4,86	0,210	0,690	2,21	12,4	6,78
437-14	8,5	17,4	< l. d.	5,21	0,360	1,01	2,26	12,7	6,77
437-15	9,5	24,5	< l. d.	5,12	0,240	0,710	2,18	12,8	6,74

Tableau A12. Masse sèche, porosité, vitesse d'accumulation et datation des sédiments du bassin A du lac Tantaré.

Profondeur cm	DBD (m) g cm ⁻³	Porosité (ϕ)	Vitesse d'accumulation (ω) g cm ⁻² a ⁻¹	Date
0,25	0,0412	0,979	0,00410	2001
0,75	0,0495	0,975	0,00410	1997
1,25	0,0562	0,972	0,00408	1993
1,75	0,0607	0,969	0,00415	1989
2,25	0,0645	0,968	0,00525	1985
2,75	0,0663	0,967	0,00561	1980
3,25	0,0672	0,966	0,00580	1975
3,75	0,0665	0,967	0,00626	1970
4,25	0,0657	0,967	0,00683	1964
4,75	0,0641	0,967	0,00694	1958
5,25	0,0629	0,968	0,00679	1951
5,75	0,0625	0,968	0,00683	1945
6,25	0,0602	0,969	0,00638	1939
6,75	0,0605	0,969	0,00640	1933
7,25	0,0585	0,970	0,00606	1928
7,75	0,0582	0,970	0,00613	1922
8,25	0,0559	0,971	0,00638	1916
8,75	0,0546	0,971	0,00572	1912
9,25	0,0544	0,971	0,00581	1907
9,75	0,0541	0,972	0,00592	1902
10,25	0,0538	0,972	0,00600	1897
10,75	0,0531	0,972	0,00596	1891

Tableau A12. (suite)

Profondeur	DBD (m)	Porosité	Vitesse d'accumulation	Date
cm	g cm ⁻³	(ϕ)	(ω) g cm ⁻² a ⁻¹	
11,25	0,0526	0,972	0,00591	1886
11,75	0,0526	0,972	0,00587	1881
12,25	0,0534	0,972	0,00583	1876
12,75	0,0525	0,972	0,00579	1871
13,25	0,0538	0,972	0,00576	1865
13,75	0,0539	0,972	0,00574	1860
14,25	0,0571	0,970	0,00572	1854
14,75	0,0589	0,970	0,00571	1849
15,5	0,0588	0,970	0,00560	1838
16,5	0,0571	0,970	0,00559	1828
17,5	0,0592	0,969	0,00559	1817
18,5	0,0599	0,969	0,00559	1806
19,5	0,0601	0,969	0,00559	1795
20,5	0,0595	0,969	0,00559	1784
21,5	0,0600	0,969	0,00559	1773
22,5	0,0606	0,969	0,00559	1761
23,5	0,0597	0,969	0,00560	1750
24,5	0,0606	0,969	0,00560	1737
25,5	0,0616	0,968	0,00560	1724
26,5	0,0623	0,968	0,00561	1708
27,5	0,0631	0,967	0,00562	1689
28,5	0,0626	0,968	0,00563	1661
29,5	0,0623	0,968	0,00560	-

Tableau A13. Masse sèche, porosité, vitesse d'accumulation et datation des sédiments du bassin B du lac Tantaré (septembre 2006).

Profondeur cm	DBD (m) g cm ⁻³	Porosité (ϕ)	Vitesse d'accumulation (ω) g cm ⁻² a ⁻¹	Date	Incertitude sur la date années
0,25	0,0230	0,9890	0,0069	2004	0,1
0,75	0,0274	0,9867	0,0069	2001	0,3
1,25	0,0322	0,9845	0,0069	2000	0,5
1,75	0,0350	0,9831	0,0069	1998	0,7
2,25	0,0363	0,9825	0,0069	1996	0,9
2,75	0,0385	0,9815	0,0069	1992	1,2
3,25	0,0412	0,9799	0,0069	1988	1,5
3,75	0,0438	0,9789	0,0069	1983	1,8
4,25	0,0456	0,9779	0,0069	1979	2,1
4,75	0,0493	0,9765	0,0069	1975	2,4
5,25	0,0504	0,9760	0,0069	1970	2,8
5,75	0,0514	0,9755	0,0069	1965	3,1
6,25	0,0554	0,9740	0,0069	1962	3,5
6,75	0,0572	0,9728	0,0069	1960	3,9
7,25	0,0601	0,9722	0,0119	1957	2,2
7,75	0,0620	0,9712	0,0119	1955	2,4
8,25	0,0623	0,9707	0,0119	1952	2,7
8,75	0,0655	0,9688	0,0119	1948	2,9
9,25	0,0687	0,9671	0,0119	1945	3,1
9,75	0,0723	0,9653	0,0119	1940	3,4
10,5	0,0800	0,9614	0,0119	1935	3,7

Tableau A13. (suite)

Profondeur cm	DBD (m) g cm ⁻³	Porosité (ϕ)	Vitesse d'accumulation (ω) g cm ⁻² a ⁻¹	Date	Incertitude sur la date années
11,5	0,0787	0,9607	0,0119	1928	4,2
12,5	0,0751	0,9647	0,0119	1923	4,8
13,5	0,0778	0,9631	0,0119	1917	5,3
14,5	0,0854	0,9598	0,0119	1908	5,9
15,5	0,0910	0,9541	0,0119	1903	6,2
16,5	0,0862	0,9611	0,0119	1899	6,7
17,5	0,0776	0,9622	0,0119	1895	7,3
18,5	0,0788	0,9615	0,0119	1888	7,9
19,5	0,0789	0,9608	0,0119	1881	8,5
20,5	0,0751	0,9636	0,0119	1874	9,1
21,5	0,0798	0,9622	0,0119	1867	9,6
22,5	0,0809	0,9612	0,0119	1861	10,2
23,5	0,0712	0,9650	0,0119	1854	10,7
24,5	0,0708	0,9673	0,0119	1847	11,3
25,5	0,0701	0,9665	0,0119	1840	11,8
26,5	0,0794	0,9620	0,0119	1833	12,3
27,5	0,0813	0,9611	0,0119	1826	12,8
28,5	0,0879	0,9580	0,0119	1819	13,4
29,5	0,0867	0,9585	0,0119	1812	14,0

Tableau A14. Masse sèche, porosité, vitesse d'accumulation et datation des sédiments du lac Vose (août 2002).

Profondeur cm	DBD (m) g cm ⁻³	Porosité (ϕ)	Vitesse d'accumulation (ω) g cm ⁻² a ⁻¹	Date	Incertitude sur la date années
0,25	0,0186	0,991	0,0135	2002	0,19
0,75	0,0240	0,986	0,0141	2001	0,20
1,25	0,0368	0,983	0,0145	2000	0,20
1,75	0,0363	0,982	0,0129	1998	0,21
2,25	0,0347	0,983	0,0113	1996	0,22
2,75	0,0346	0,983	0,0116	1994	0,23
3,25	0,0397	0,982	0,0119	1993	0,25
3,75	0,0422	0,981	0,0131	1991	0,26
4,25	0,0425	0,980	0,0143	1990	0,27
4,75	0,0477	0,979	0,0132	1988	0,28
5,25	0,0495	0,978	0,0120	1986	0,30
5,75	0,0452	0,977	0,0128	1984	0,32
6,25	0,0557	0,977	0,0135	1982	0,34
6,75	0,0546	0,976	0,0144	1981	0,36
7,25	0,0566	0,974	0,0152	1979	0,38
7,75	0,0603	0,973	0,0158	1977	0,40
8,25	0,0604	0,972	0,0164	1975	0,42
8,75	0,0680	0,971	0,0125	1971	0,46
9,25	0,0653	0,971	0,00936	1967	0,51
9,75	0,0674	0,971	0,0108	1965	0,56
10,25	0,0645	0,971	0,0128	1962	0,61
10,75	0,0652	0,971	0,0127	1960	0,65

Tableau A14. (suite)

Profondeur cm	DBD (m) g cm ⁻³	Porosité (ϕ)	Vitesse d'accumulation (ω) g cm ⁻² a ⁻¹	Date	Incertitude sur la date années
11,25	0,0690	0,971	0,0126	1958	0,71
11,75	0,0644	0,971	0,0124	1955	0,76
12,5	0,0704	0,970	0,0111	1949	0,91
13,5	0,0716	0,969	0,0113	1944	1,1
14,5	0,0744	0,968	0,0112	1938	1,3
15,5	0,0749	0,968	0,0105	1931	1,6
16,5	0,0793	0,967	0,00971	1924	2,0
17,5	0,0823	0,966	0,00874	1917	2,5
18,5	0,0756	0,968	0,00784	1909	3,3
19,5	0,0727	0,969	0,00846	1901	4,1
20,5	0,0712	0,969	0,00930	1894	5,1
21,5	0,0702	0,971	0,00874	1888	6,3
22,5	0,0639	0,972	0,00818	1881	7,8
23,5	0,0634	0,972	0,00814	1874	9,7

ANNEXE B

CALCULS DE SPÉCIATION

Tableau B1. Résultats des calculs de spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le bassin A du lac Tantaré.

Profondeur cm	[ΣS(-II)] μM*	[ΣS(0)] μM*	[Sb] _{total} pM	Sb(OH) ₃ ⁰ % de Sb _{total}	HSb ^{III} Sb ^V S ₅ ⁻ % de Sb _{total}	Sb(OH) ₆ ⁻ % de Sb _{total}	HSb ^{III} ₂ S ₄ ⁻ % de Sb _{total}	Sb(III) % de Sb _{total}	Sb(V) % de Sb _{total}
-4,5	0,00	0,00	210	0	0	100	0	0	100
-3,5	0,00	0,00	208	0	0	100	0	0	100
-2,5	0,00	0,00	209	0	0	100	0	0	100
-1,5	0,00	0,00	208	0	0	100	0	0	100
-0,5	0,00	0,00	209	0	0	100	0	0	100
0,5	0,00	0,00	209	100	0	0	0	100	0
1,5	0,00	0,00	211	100	0	0	0	100	0
2,5	0,00	0,00	276	100	0	0	0	100	0
3,5	0,00	0,00	295	100	0	0	0	100	0
4,5	0,01	0,00	238	100	0	0	0	100	0
5,5	0,28	0,04	182	91	8	0	1	96	4
6,5	0,80	0,26	173	32	64	0	4	68	32
7,5	0,93	0,33	153	27	69	0	4	65	35
8,5	1,16	0,43	178	31	66	0	3	67	33
9,5	1,08	0,46	196	30	67	0	3	66	34

* Valeurs moyennes (n=3) des teneurs en ΣS(-II) et en ΣS(0).

Tableau B2. Résultats des calculs de la spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le bassin B du lac Tantaré lorsque l'hypolimnion est anoxique (septembre 2006).

Profondeur cm	[ΣS(-II)] μM	[ΣS(0)] μM	[Sb] _{total} pM	Sb(OH) ₃ ⁰ % de Sb _{total}	HSb ^{III} Sb ^V S ₅ ⁻ % de Sb _{total}	Sb ₂ ^V S ₆ ²⁻ % de Sb _{total}	Sb(III) % de Sb _{total}	Sb(V) % de Sb _{total}
-4,5	1,38	2,59	125	75	21	4	86	14
-3,5	1,00	2,57	120	90	8	2	94	6
-2,5	1,18	2,68	138	83	14	3	90	10
-1,5	1,09	2,24	139	87	11	2	93	7
-0,5	1,12	1,60	116	88	10	2	94	6
0,5	1,06	1,08	116	91	8	1	95	5
1,5	0,832	0,627	93,9	97	3	0	97	3
2,5	0,771	0,610	95,0	98	2	0	98	2
3,5	0,701	1,08	84,2	98	2	0	98	2
4,5	0,672	0,546	86,9	99	1	0	99	1
5,5	0,392	0,320	82,1	100	0	0	100	0
6,5	0,432	0,178	72,7	100	0	0	100	0
7,5	0,405	0,113	70,5	100	0	0	100	0
8,5	0,408	0,147	69,2	100	0	0	100	0
9,5	0,423	0,134	80,3	100	0	0	100	0

Tableau B3. Résultats des calculs de la spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le bassin B du lac Tantaré lorsque l'hypolimnion est oxygéné (juillet 2007).

Profondeur cm	[ΣS(-II)] μM	[ΣS(0)] μM	[Sb] _{total} pM	Sb(OH) ₆ ⁻ (% de Sb _{total})	Sb(OH) ₃ ⁰ % de Sb _{total}	Sb ₂ ^V S ₆ ²⁻ % de Sb _{total}	HSb ^{III} Sb ^V S ₅ ⁻ % de Sb _{total}	Sb(III) % de Sb _{total}	Sb(V) % de Sb _{total}
-4,5	0,131	0,809	166	100	0	0	0	0	100
-3,5	0,0942	0,855	144	100	0	0	0	0	100
-2,5	0,0896	1,21	146	100	0	0	0	0	100
-1,5	0,103	1,68	146	100	0	0	0	0	100
-0,5	0,275	1,71	146	100	0	0	0	0	100
0,5	1,06	1,91	127	0	75	3	22	86	14
1,5	1,08	1,22	115	0	82	2	16	90	10
2,5	1,09	1,09	108	0	78	2	20	88	12
3,5	0,723	0,481	96,2	0	97	0	3	97	3
4,5	0,528	0,767	91,7	0	98	0	2	98	2
5,5	0,427	0,642	89,8	0	99	0	1	99	1
6,5	0,380	0,496	88,1	0	99	0	1	99	1
7,5	0,278	0,525	86,3	0	100	0	0	100	0
8,5	0,284	0,416	84,9	0	100	0	0	100	0
9,5	0,414	0,362	81,7	0	100	0	0	100	0

Tableau B4. Résultats des calculs de la spéciation de Sb dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles pour le lac Vose lorsque l'hypolimnion est anoxique (septembre 2003).

Profondeur cm	[ΣS(-II)] μM	[ΣS(0)] μM	[Sb] _{total} pM	Sb(OH) ₃ ⁰ % de Sb _{total}	HSb ^{III} Sb ^V S ₅ ⁻ % de Sb _{total}	Sb ₂ ^V S ₆ ⁻² % de Sb _{total}	Sb(III) % de Sb _{total}	Sb(V) % de Sb _{total}
-4,5	0,203	0,187	350	99	1	0	99	0
-3,5	0,397	0,220	350	89	11	0	94	6
-2,5	0,593	0,307	364	67	32	1	82	17
-1,5	0,740	0,833	379	42	56	2	68	32
-0,5	0,800	1,70	276	52	45	3	73	27
0,5	3,94	4,97	207	7	87	6	47	53
1,5	1,60	2,58	187	33	62	5	61	39
2,5	1,05	1,75	173	55	42	3	74	26
3,5	0,953	1,72	166	58	39	3	76	24
4,5	0,907	1,54	161	63	35	2	78	22
5,5	1,02	1,50	158	49	48	3	72	28
6,5	0,890	1,05	164	62	36	2	79	21
7,5	0,957	0,833	157	61	37	2	78	22
8,5	0,707	0,807	145	79	20	1	88	12
9,5	0,583	0,573	149	88	11	1	93	7

ANNEXE C

AUTRES DONNÉES

Tableau C1. Émissions mondiales de Sb (tonnes a⁻¹) dans l'environnement par secteur industriel et par continent (Pacyna et Pacyna, 2001).

Secteur industriel	Europe (en 1995)	Asie (en 1995)	Amérique du Nord (en 1995)	Total mondial en 1995	Total mondial en 1983
Combustion des carburants fossiles	124	308	226	730	1304
Production primaire de cuivre	19	159	25	319	1063
Production primaire de métaux non ferreux	62	285	54	547	1425
Incinérateurs de déchets municipaux	78	98	58	235	-
<i>Total par continent</i>	283	850	363	1831	3792

Tableau C2. Analyse de robustesse des modèles de prédiction en faisant varier les concentrations de Sb dissous ([Sb]) et la densité du chironome *Sergentia coracina* (voir section 4.1.3).

Site d'étude	<i>S. coracina</i> individus m ⁻²	[Sb]	r ²	Zone	Variation de R_{net}^{Sb} %
Lac Tantaré Bassin A (oxygéné)	0	moy.*	0,9533	1	-1,1
				2	1,1
				3	1,6
	2000	moy.	0,9534	1	-0,7
				2	4,9
				3	3,0
	1080	moy.- 3σ**	0,9540	1	-1,1
				2	1,0
				3	0
	1080	moy.+ 3σ	0,9540	1	-1,1
				2	1,0
				3	0

* moyenne des trois mesures de [Sb] à chaque profondeur dans les eaux sus-jacentes aux sédiments et les eaux interstitielles.

** écart-type des valeurs moyennes de [Sb].

Tableau C2. (suite)

Site d'étude	<i>S. coracina</i> individus m ⁻²	[Sb]	r ²	Zone	Variation de R_{net}^{Sb} %
Lac Tantaré Bassin B (oxygéné)	0	moy.- 3σ	0,9910	1	0,052
	0	moy.+ 3σ	0,9910	1	0,052
Lac Tantaré Bassin B (anoxique)	0	moy.*- 3σ	0,8986	1	-2,7
	0	moy.+ 3σ**	0,8957	1	0
Lac Vose (anoxique)	0	moy.- 3σ	0,9906	1 2	0 -0,46
	0	moy.+ 3σ	0,9906	1 2	0 0,46

Tableau C3. Emplacements et caractéristiques générales des sites d'étude.

Lac	Tantaré		Vose ⁵
	Bassin A ⁵	Bassin B ⁶	
Emplacement	47°04'N 71°32'O		48°28'N 78°50'W
Altitude (m)	450		350
Superficie du lac (km ²)	1,1		0,12
Superficie du bassin versant (km ²)	9,2		4,5
Volume (10 ⁶ m ³)	1,08		0,85
Profondeur maximale (m)	15	21	17
pH (colonne d'eau)	5,3-5,6		6,4-6,7
Production primaire planctonique (mg C m ⁻² d ⁻¹)	50 ⁷	n.d.	n.d.
Densité de la faune benthique (animaux m ⁻²)	1690 ± 180	n.d.*	n.d.
Vitesse d'accumulation des sédiments ω (g cm ⁻² a ⁻¹)	0,0041 à 0,0069	0,0108	0,0164 à 0,0078
Porosité des sédiments ϕ	0,95-0,98	0,95-0,99	0,97-0,99

*n.d.: non déterminé.

⁵Laforte *et al.*, (2005).

⁶Couture *et al.*, (2008).

⁷Hare *et al.*, (1994).

Tableau C4. Précision et justesse des méthodes analytiques telles que déterminées suite à l'analyse (n = 3) du standard de sédiment MESS-3, ainsi que du standard d'eau TM-DWS lorsque nous avons analysé les échantillons du bassin B du lac Tantaré.

Matrice	Méthode	Analyte	Précision %	Justesse %
Sédiment (MESS-3)	ICP-MS	Sb	0,61	-2
		Al	2,3	-7,5
	ICP-AES	Fe	2,4	-2,1
		Mn	1,9	0,6
Eau (TM-DWS)	ICP-MS	Sb	7	-5
		Al	3,8	-6,8
	ICP-AES	Ca	4,9	-9,3
		Fe	1,8	2,3
		K	2,7	-8,5
		Mg	2,1	-6,1
		Mn	1,9	-5,2
		Na	5,7	-4,3

