

**Projet de recherche européen « Water Joint Programme initiative »
PERSIST**

**"Fate and persistence of emerging contaminants and MRB in a
continuum of surface water groundwater from the laboratory scale to
the regional scale"**

**Etude du devenir et de la persistance des contaminants organiques
émergents et bactéries multi résistantes dans un continuum, eaux de
surface eaux souterraines, du laboratoire à l'échelle du bassin versant.**

C. Le Gal La Salle, L. Sassine, S. Khaska, B. Roig ¹

J. Map, M. Boy-Roura²

C. Stumpp, A. Kiecak³

¹ Université de Nîmes, EA 7352 CHROME, rue du Dr Georges Salan, 30021 Nîmes, France

² Catalan Institute for Water Research – ICRA, Emili Grahit 101, 17003 Girona, Spain

³ Helmholtz Zentrum München, German Research Centre for Environmental Health, Institute for Groundwater Ecology, Ingolstädter Landstraße 1, 85764 Neuherberg, Germany

Table des matières

1. Objectif.....	1
2. Etude de l'occurrence des contaminants émergents dans un bassin lié au rejets des effluents de dans le milieu (Work package 1).....	1
2.1. WP1-Tâche 1 : occurrence des COES dans les eaux souterraines à l'échelle du bassin versant de la Vistrenque	1
2.2. Caractérisation des traceurs d'origine (WP1 - Tâche 2)	4
2.3. Etude des concentrations en EOCs dans les eaux de surface (WP1 - Tâche 2)	7
2.4. WP1 - Tâche 3 : Eaux de surface – étude du transfert d'eau souterraine	12
3. Etude de l'occurrence des EOCs dans un bassin versant sous l'influence de l'épandage de lissier, le bassin de l'Emporda (Work Package 2).....	17
3.1. Objectifs.....	17
3.1.1. WP2 - Tâche 1) Caractérisation, échantillonnage et analyses sur le terrain	17
3.1.2. WP2 - Tâche 2) Détermination de la migration des antibiotiques et étude de leur caractérisation microbienne.....	17
3.1.3. WP2 - Tâche 3) Interprétation hydrogéologique et modélisation des processus de transport.	17
3.1.4. WP2 - Tâche 4) Évaluation de l'impact de la présence d'antibiotiques sur la qualité des eaux souterraines.	18
3.2. Les résultats obtenus selon les objectifs énoncés dans le WP2 sont :.....	18
3.2.1. Objectif 1) Décrire les processus qui contrôlent la présence et le transport des polluants.	18
3.2.2. Objectif 2) Déterminer la migration des antibiotiques entre les différents plans d'eau et les relations avec les communautés bactériennes.	21
3.2.3. Objectif 3) Élaborer des modèles pour reproduire la mobilité des antibiotiques de la surface vers l'aquifère.....	21
3.2.4. Objectif 4) Intégration des résultats et de leur implication dans la gestion durable des eaux souterraines.	22
4. Etudes des propriétés d'une sélection de contaminants émergents en milieu contrôlé (work package 3)	23
4.1. WP3 - Tâche 1. Expériences sur colonne.....	23
4.2. WP3 - Tâche 2 : Expériences sur les lots	25
5. Réalisation des objectifs.....	26
6. Promotion de la recherche multidisciplinaire pendant la durée de vie du projet	27
7. Résultat le plus important du projet	27
8. Implication pour la ressources en eau	28

Liste des Figures

Figure 1 : Somme des teneurs en contaminants organiques émergents des eaux de la nappe de la Vistrenque	2
Figure 2: Fréquence de détection des EOCs dans les eaux souterraines de la nappe de la Vistrenque.....	3
Figure 3: Concentration en COEs des eaux souterraines de la nappe de la Vistrenque – variabilité spatiale campagne de Juin 2015	4
Figure 4 : a) Variation des signatures isotopiques des isotopes stables de l'eau dans le Vistre de l'amont à l'aval b) Diagramme $\delta^{18}\text{O}$ vs $\delta^2\text{H}$ (‰) des eaux de surface.....	5
Figure 5 : Concentration en deutérium et carbamazépine dans les eaux de surface de la nappe de la Vistrenque : a) variation temporelles b) corrélation carbamazépine vs deutérium	6
Figure 6 : Analyse à composante principale des concentrations en éléments majeurs, et mineurs et en isotope de la molécule d'eau des eaux de surface de la nappe de la Vistrenque	7
Figure 7 : Fréquence de détection des COEs dans les eaux de surfaces de la nappe de la Vistrenque - du suivi mensuel.....	8
Figure 8 : Concentration en COEs des eaux de surface de la nappe de la Vistrenque, incluant le suivi temporel et les clusters.	9
Figure 9 : Variations des concentrations des COEs le long du Vistre lors de la campagne du 20/03/2014...	10
Figure 10 : Variations des concentrations en COEs dans le Vistre à l'amont du rejet de la STEP de Nîmes, exemple de la carbamazépine et de la cefalexine.	11
Figure 11 : Fréquences de détection des COEs des eaux souterraines des clusters, Nappe de la Vistrenque	13
Figure 12 : Concentration en COEs des eaux souterraines des clusters, Nappe de la Vistrenque	13
Figure 13 : Comparaison des fréquences de quantification des COEs dans les eaux de souterraines des clusters aux eaux souterraines de l'étude à l'échelle de la nappe, nappe de la Vistrenque	14
Figure 14 : Comparaison des concentrations moyennes des COEs des eaux de souterraines des clusters aux eaux souterraines du survey régional, nappe de la Vistrenque.....	14
Figure 15 : Comparaison des fréquences de quantification des COEs des eaux de surface et des eaux souterraines du suivi mensuel des clusters, nappe de la Vistrenque	15
Figure 16 : Comparaison des concentrations moyennes en COEs des eaux de surface et des eaux souterraines du suivi mensuel des clusters, nappe de la Vistrenque.....	16
Figure 17 : Variabilité spatiale des teneurs en COEs des eaux souterraines du bassin de l'Emporda	19
Figure 18 : Fréquences de détection et concentration des COEs des effluents, eaux de surface et eaux souterraines du bassin de l'Emporda lors de la campagne d'investigation portant sur la variabilité spatiale (Boy-Roura et al.).....	20
Figure 19 : Fréquences de détection et concentration des COEs eaux de surface et eaux souterraines du bassin de l'Emporda du suivi temporel des eaux souterraines (Boy-Roura et al.).	20
Figure 20 : Taux de dégradation des molécules étudiées lors des tests d'injection sur colonnes	24
Figure 21 : Facteur de retardement des molécules étudiées lors des tests d'injection sur colonnes	24
Figure 22 : Coefficients de sorption des molécules d'intérêts sur les différents sédiments étudiés. G pour les sables de référence, V pour le sol de la Vistrenque, E les sols du bassin de l'Emporda.....	25

Annexes

Annexe 1 : Analyses des eaux souterraines de la campagne d'étude sur la variabilité spatiale à l'échelle de la nappe : COEs, majeurs, Traces et isotopes de l'eau (Tache 1)

Annexe 2 : Concentration en COEs et isotopes de l'eau des eaux de surface (Tache 2)

Annexe 3 : Concentration en: COEs et isotopes de l'eau des eaux souterraines des clusters (Tache 2)

Annexe 4 : Information supplémentaires

- a) Liste des étudiants soutenus par ce consortium ou affiliés à ce consortium.
- b) Liste du personnel soutenu par ce consortium ou affilié à ce consortium
- c) Mobilité du personnel et des étudiants soutenus par le consortium ou affiliés à ce consortium
- d) Collaboration, coordination, mobilité et synergies
- e) Tableau des livrables
- f) Participation à des réunions de consortium, des conférences, des ateliers, des cours de formation et d'autres événements.

1. Objectif

L'objectif du projet PERSIST est d'étudier le devenir des contaminants organiques émergents et des bactéries multi-résistantes dans un continuum eau de surface - eaux souterraines, du laboratoire jusqu'à l'échelle du bassin versant, selon une approche hydrologique, géologique et isotopique multitraceurs. Les études *in situ* sont complétées par des colonnes contrôlées et des expériences en batch pour déterminer les paramètres de transport (work package 3). Deux sites de terrain ont été choisis pour leurs similitudes, deux bassins versants alluviaux typiques dominés par les pratiques agricoles, et pour leurs sources contrastées d'EOC, le premier dominé par l'agriculture et des zones urbaines dispersées et sous l'influence des rejets d'eaux usées, la nappe de la Vistrenque (Workpackage 1) et le second par les pratiques d'élevage, le Bassin de l'Emporda Empordà (Workpackage 2).

2. Etude de l'occurrence des contaminants émergents dans un bassin lié au rejets des effluents de dans le milieu (Work package 1)

Le Work package vise à étudier le devenir des contaminants organiques émergents dans un continuum eau de surface - eau souterraine dans un bassin soumis principalement à la pression des rejets de station d'épuration des eaux usées d'origine urbaines. Le site d'étude est un aquifère alluvial typique dont les sédiments ont été déposés par un ancien chenal du Rhône, l'aquifère de la Vistrenque. Le bassin versant est de 350 km² avec une longueur de 49 km de cours d'eau.

2.1. WP1-Tâche 1 : occurrence des COES dans les eaux souterraines à l'échelle du bassin versant de la Vistrenque

La première tâche consiste à caractériser la présence de COEs dans les eaux souterraines à l'échelle du bassin versant. Pour cette investigation, des forages ont été sélectionnés sur la base de 3 critères principaux : i) les forages ayant montré des contaminations avec des EOCs au cours des études précédentes (n=6), ii) les forages soupçonnés d'être vulnérables à la contamination compte tenu du faciès hydrochimique des eaux souterraines (n=25) ou de leur proximité des cours d'eau, et iii) les forages choisis pour compléter la couverture géographique du bassin (n=23). En tout, 54 puits d'échantillonnage ont été sélectionnés pour le recherche des COEs dans le réseau hydrographique de Vistrenque, comprenant 37 forages privés et 17 forages municipaux.

Les molécules recherchées ont été sélectionnées sur la base des composés les plus détectés dans les eaux souterraines et dans les cours d'eau à l'échelle nationale. 18 composés pharmaceutiques ont été sélectionnés pour cette tâche. Ils comprennent 10 antibiotiques (ofloxacin, ciprofloxacine, azithromycine, spiramycine, érythromycine, roxithromycine, triméthoprim, céfalexine, flumequine, sulfaméthoxazole), 4 bêta-bloquants (aténolol, propranolol, sotalol, métoprolol), 3 médicaments psychiatriques (carbamazépine) ; 10,11 époxycarbamazépine ; oxazépan) et un antidiabétique (metformine).

Pour compléter ces analyses, un screening de 80 composés pharmaceutiques sur 3 échantillons (un échantillon d'eau souterraine, un échantillon d'eau de ruissellement et un effluent de station d'épuration des eaux usées) a été effectué au laboratoire de l'ICRA.

Parmi les échantillons d'eaux souterraines analysées, seuls 10% des échantillons ne montrent aucune détection de composés pharmaceutiques. Dans les échantillons contaminés (90 %), la concentration totale en COEs varie de 0,1 à 50 ng/l pour la plupart des échantillons (92 %), atteignant localement 50 à quelques centaines de ng/l (8 %) (Figure 1).

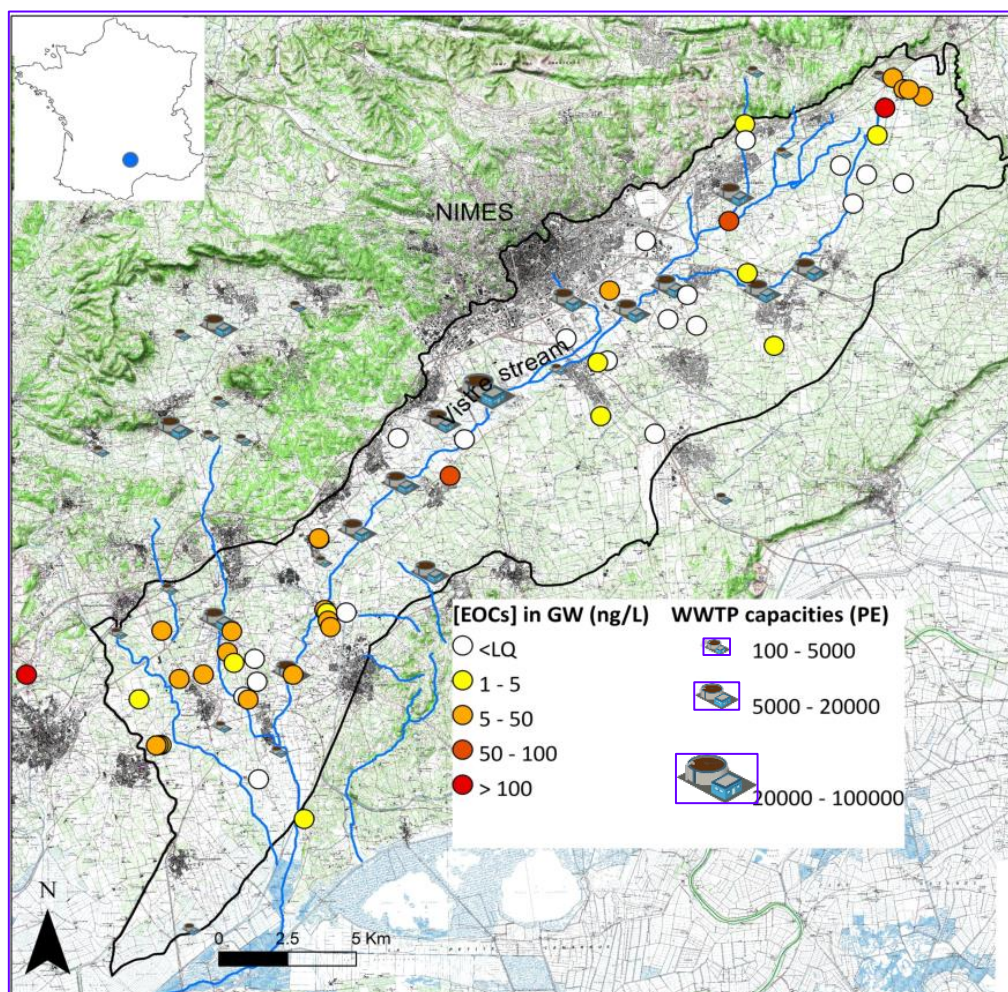


Figure 1 : Somme des teneurs en contaminants organiques émergents des eaux de la nappe de la Vistrenque

Seulement 5 des 18 molécules montraient des concentrations inférieures aux limites de quantification dans l'étude sur les eaux souterraines, la flumequine, la metformine, la triméthoprime, la ciprofloxacine et l'aténololol (Figure 2). Les 13 molécules restantes ont montré des fréquences de quantification variant entre 4% et 70%. Le composé le plus souvent détecté est la carbamazépine (70 %). Trois autres molécules ont montré des fréquences de quantification relativement élevées comprises entre 30 et 40 %, la Roxithromycine, la 10,11-époxy carbamazépine et l'ofloxacine. Les molécules restantes sont moins présentes avec des fréquences de quantification inférieures à 20 %

(azithromycine, érythromicine, oxazépam, spiramycine et céfalexine. Le sulfaméthoxazole et les bêta-bloquants (sotalol, métoprolol, aténolol, aténolol, propranolol) ont montré les plus faibles occurrences entre 4 et 10 %.

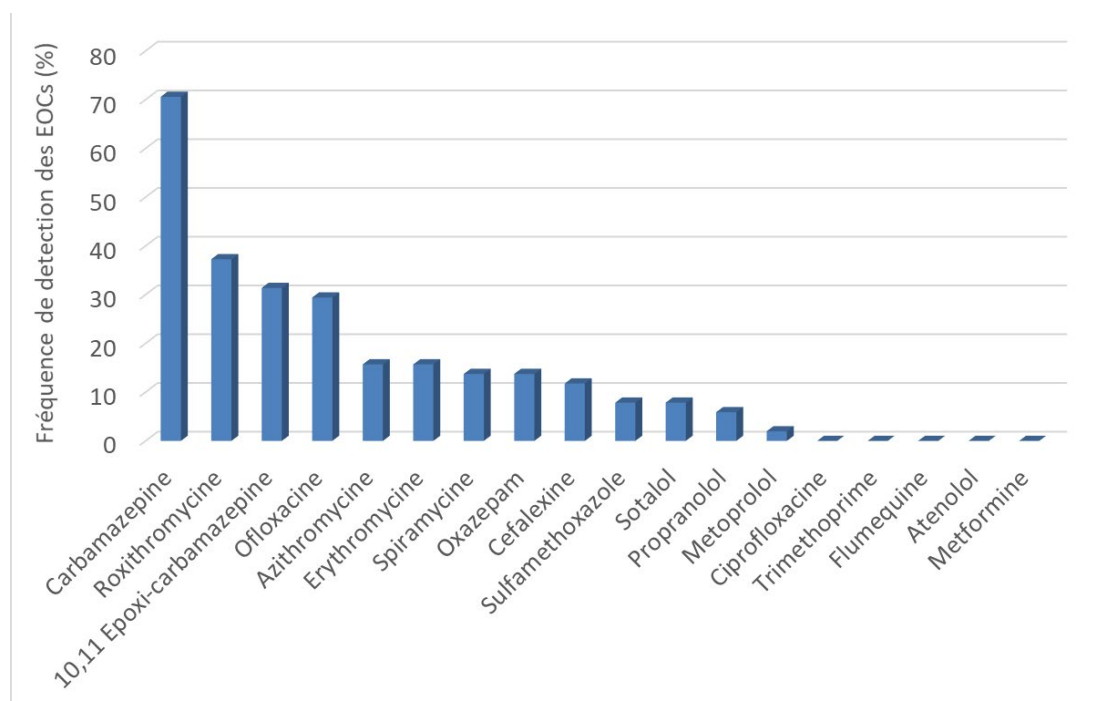


Figure 2: Fréquence de détection des EOCs dans les eaux souterraines de la nappe de la Vistrenque

Les concentrations individuelles moyennes sont de l'ordre de quelques ng/L alors que la carbamazépine et la 10,11 époxycarbamazépine atteignent ensemble 40 ng/L en moyenne et 300 à 400 de ng/L localement (Figure 3).

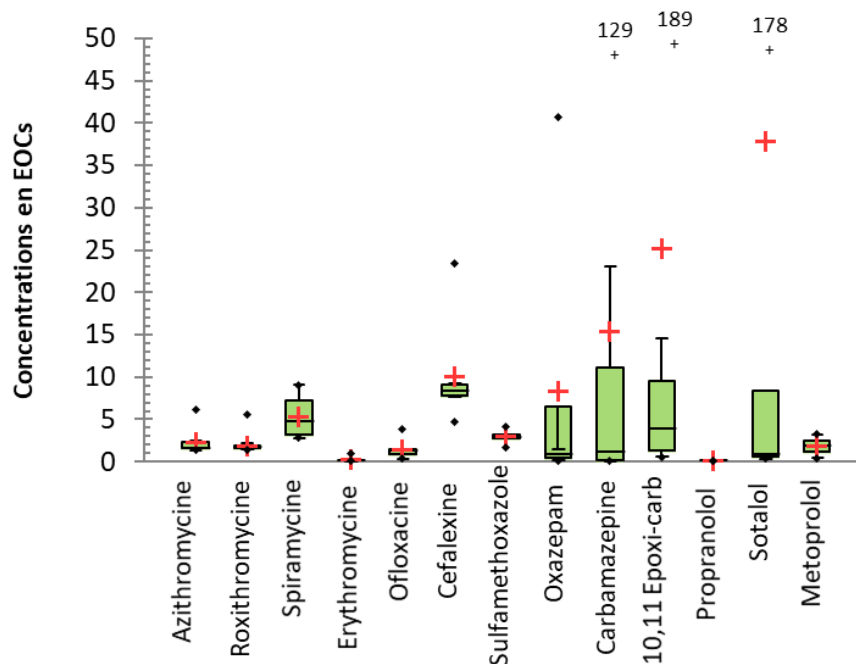


Figure 3: Concentration en COEs des eaux souterraines de la nappe de la Vistrenaue – variabilité spatiale campagne de Juin 2015

Enfin une distinction a été faite entre les puits privés et les puits municipaux. Les eaux souterraines ont montré au moins une quantification positive d'un composé pharmaceutique dans 87 % des forages privés (n=37) comparativement à 100 % des puits municipaux (n=17). Toutefois, les concentrations totales moyennes semblaient plus faibles dans les forages municipaux (8 ng/L) que dans les forages privés (environ 36 ng/L).

2.2. Caractérisation des traceurs d'origine (WP1 - Tâche 2)

Afin d'évaluer l'origine des COE observés dans les puits de forage, des isotopes stables dans l'eau (^{18}O et ^2H) et les concentrations d'éléments majeurs ont été étudiés. Les isotopes stables de l'eau se sont révélés être un outil approprié pour tracer le transfert des eaux usées urbaines. En effet, l'eau du Rhône, caractérisée par sa signature appauvrie par rapport à la recharge locale, est importée dans le bassin et en partie utilisée pour compléter l'approvisionnement en eau des communes (Figure 5).

En période sèche, la signature de l'isotope stable de l'eau des eaux de surface tend vers celle de l'eau importée (eau du Rhône) utilisée pour l'approvisionnement en eau, soulignant l'importance relative de la contribution des eaux usées au débit des cours d'eau pendant cette période (Figure 4 : **a**) **Variation des signatures isotopiques des isotopes stables de l'eau dans le Vistre de l'amont à l'aval** **b**) **Diagramme $\delta^{18}\text{O}$ vs $\delta^2\text{H}$ (‰) des eaux de surface.**

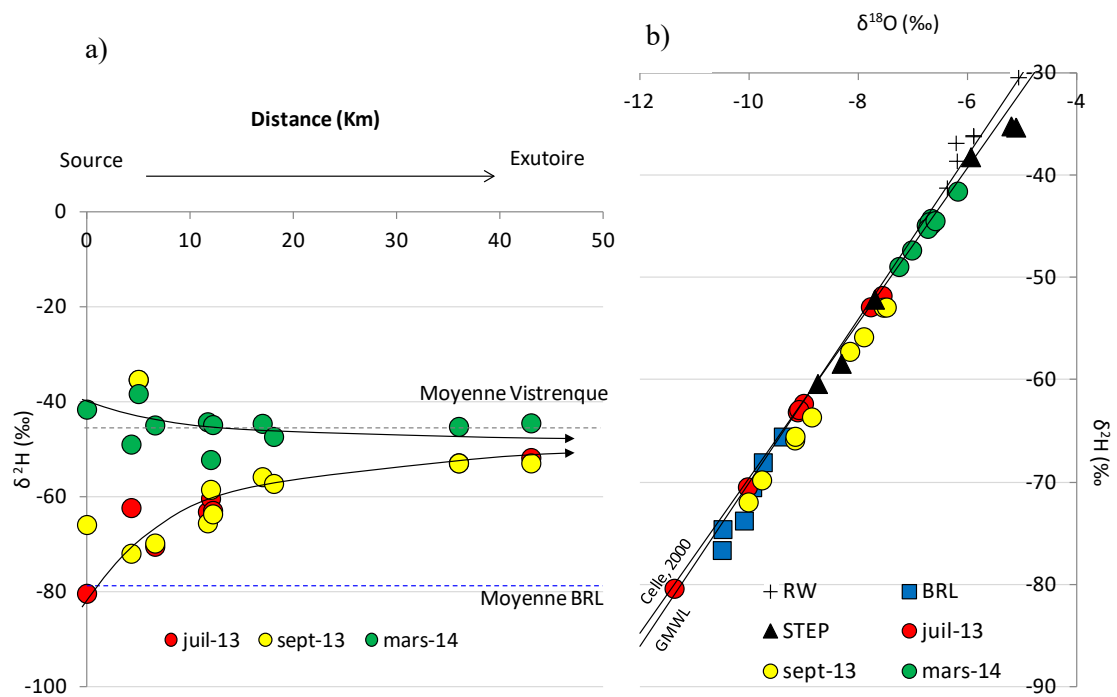


Figure 4 : a) Variation des signatures isotopiques des isotopes stables de l'eau dans le Vistre de l'amont à l'aval b) Diagramme $\delta^{18}\text{O}$ vs $\delta^2\text{H}$ (‰) des eaux de surface.

Les variations en COEs reflètent les variations des teneurs isotopiques permettant de tracer l'origine des eaux importées sur le bassin versant et associées à la présence de COEs (Figure 5)

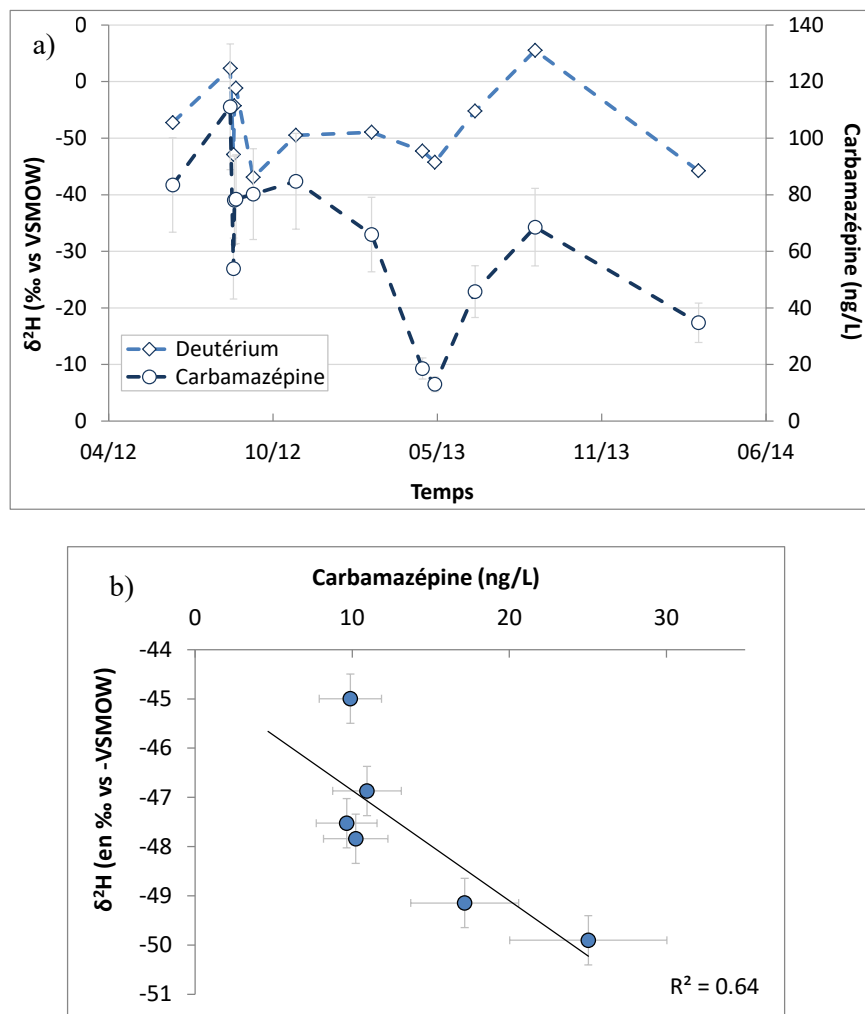


Figure 5 : Concentration en deutérium et carbamazépine dans les eaux de surface de la nappe de la Vistrenque : a) variation temporelles b) corrélation carbamazépine vs deutérium

De plus, les analyses en composantes principales ont montré que des concentrations élevées de Na, de K et de Cl se sont également révélées être de bons traceurs des eaux usées (Figure 6). Par conséquent, la contribution de l'eau des cours d'eau aux eaux souterraines peut être identifiée par des concentrations plus élevées de Na, K et Cl. De plus, l'origine des COEs (STEP ou fosses septiques) peut être retracée en comparant l'empreinte digitale des produits pharmaceutiques présents dans les eaux de surface et souterraines.

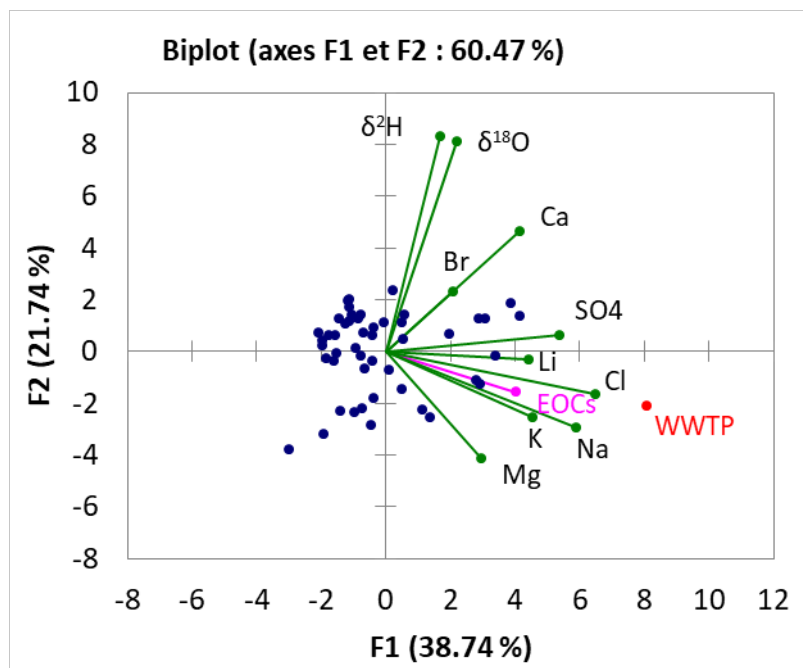


Figure 6 : Analyse à composante principale des concentrations en éléments majeurs, et mineurs et en isotope de la molécule d'eau des eaux de surface de la nappe de la vistrenque

Sur la base des résultats ci-dessus, les objectifs de la tâche 1 sont atteints.

2.3. Etude des concentrations en EOCs dans les eaux de surface (WP1 - Tâche 2)

Le but de la deuxième tâche est de déterminer l'occurrence, la variation temporelle et la persistance des contaminants émergents et des bactéries médicamenteuses multirésistantes dans les cours d'eau milieu récepteurs des effluents de STEP. En ce qui concerne la surveillance des COES dans les eaux de surface, quatre sous- tâches ont été réalisées :

- Tout d'abord, l'évolution des concentrations en COEs a été étudiée le long du cours d'eau, deux fois en période de faible débit et deux fois en période de débit élevé. Pour cette sous-tâche, neuf sites ont été étudiés en plus de deux effluents de STEP.
- Deuxièmement, l'évolution des concentrations de COE a été étudiée en aval de la station d'épuration de Nîmes, une fois dans des conditions de faible débit, afin d'étudier d'autres processus que la dilution qui peuvent influencer sur la présence et le devenir des COEs dans les eaux de surface. Pour cette sous-tâche, les sites d'échantillonnage comprenaient le point de rejet, un site en amont de la STEP et huit sites en aval de la STEP sur une distance de 3 km, juste avant le prochain point de rejet de la STEP.
- Compte tenu des résultats obtenus en début de tâche, il a été décidé d'ajouter une troisième sous-tâche, afin de mieux caractériser la qualité de l'eau du cours d'eau et la variation temporelle des COES. Un programme d'échantillonnage hebdomadaire supplémentaire a été mis en œuvre à deux endroits sur une période de deux ans : un en amont du bassin versant, y

compris deux sites (l'un d'eux est un cours d'eau dépendant de l'effluent), et un autre à peu près au milieu du bassin versant, à un point en amont de la plus grande station d'épuration municipale sur le bassin versant.

Pour cette tâche, des développements analytiques ont été réalisés au laboratoire CHROME et 10 nouveaux composés ont été ajoutés à la liste précédente, notamment la clarithromycine (antibiotique), la xylazine (analgésique chez les animaux), la warfarine (anticoagulant), l'acide fénofibrique (régulateur lipidique) et 5 analgésiques et anti-inflammatoires (acétaminophène, diclofénac, ibuprofène, kétoprofène et acide salicylique). La méthode analytique a été développée sur chromatographie liquide (Alliance 2695 HPLC, Waters) suivie d'une spectrométrie de masse en tandem (Quattro Premier XE, Waters) LC/MS en mode de surveillance des réactions multiples (MRM).

Toutes les molécules recherchées ont été trouvées dans les eaux de surface. Les fréquences de quantification ont été calculées sur la base du suivi mensuelles des 6 clusters (Figure 7). Six molécules étaient omniprésentes avec des fréquences de détection supérieures à 90 %, la carbamazépine, le sulfaméthoxazole, le propanol, l'oxazépam, le sotalol, la caféine et l'érythromycine. Six autres molécules ont montré des fréquences de quantification élevées allant de 70 à 90 % incluant, en occurrence décroissante, la roxithromycine, la 10,11-époxy-carbamazépine, le métoprolol, la clarithromycine, l'aténolol et le fameux diclofénac. Les molécules suivantes sont relativement moins présentes, avec une fréquence de quantification comprise entre 70 et 50 % : metformine, ciprofloxacine, azithromycine, ofloxacine, ofloxacine, spiramycine et sildénafil. Les 10 molécules restantes présentaient des fréquences d'occurrence inférieures à 50 %.

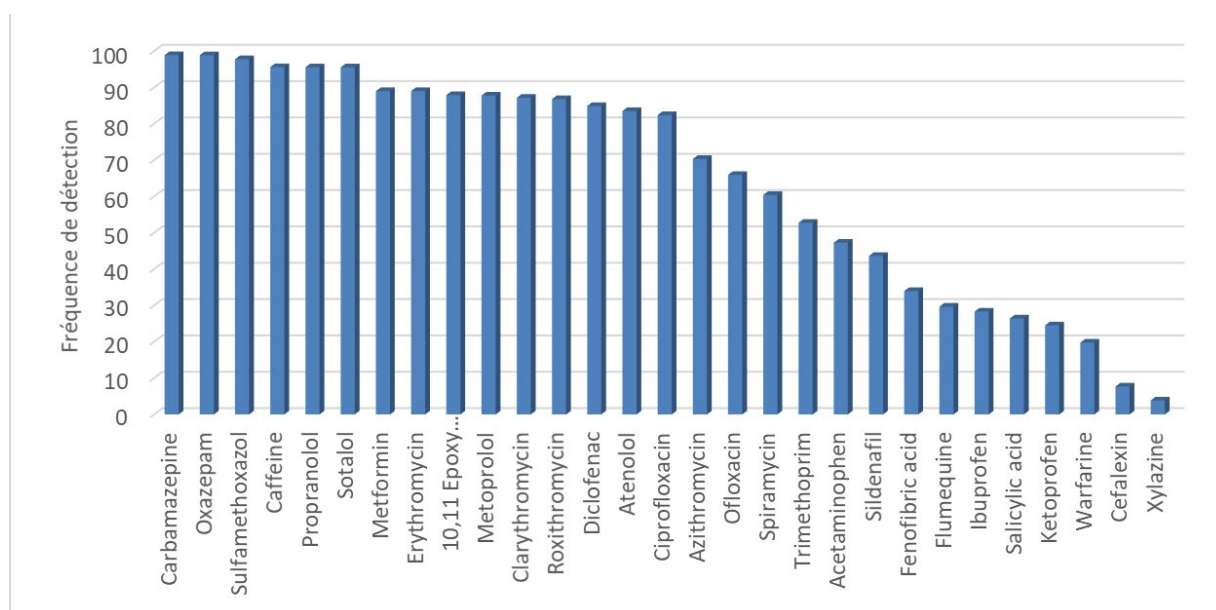


Figure 7 : Fréquence de détection des COEs dans les eaux de surfaces de la nappe de la Vistrenque - du suivi mensuel

Les concentrations totales en COEs varient de 20 ng à quelques milliers de ng.L^{-1} . Dans les eaux en tête de bassin, où l'on s'attend à ce que les impacts humains demeurent faibles ou minimes, les concentrations totales en COEs sont de l'ordre de 20 à 50 ng/L . Tous les autres échantillons ont montré une contamination non négligeable allant de 50 à quelques milliers de ng/L .

Les concentrations des composés, nettement plus élevées qu'observé dans les eaux souterraines, varient du ng/L à plusieurs centaines de ng/L , atteignant ponctuellement 1 $\mu\text{g/L}$ (Figure 8). Sur la base de la totalité des observations effectuées dans les eaux de surface, les molécules présentant en plus fortes concentrations sont le sotalol, la spiramicine, l'oxazepam, la caféine, la carbamazépine et le sulfaméthoxazole avec des concentrations médianes supérieures à 20 ng/L . Suivent la clarythromycine, l'atenolol, l'azithromycine, la ciprofloxacine, le propranolol et la 10,11 époxy-carbamazépine présentant des concentrations médianes entre 10 et 20 ng/L . Les 12 autres molécules montrent des médianes inférieures à 10 ng/L .

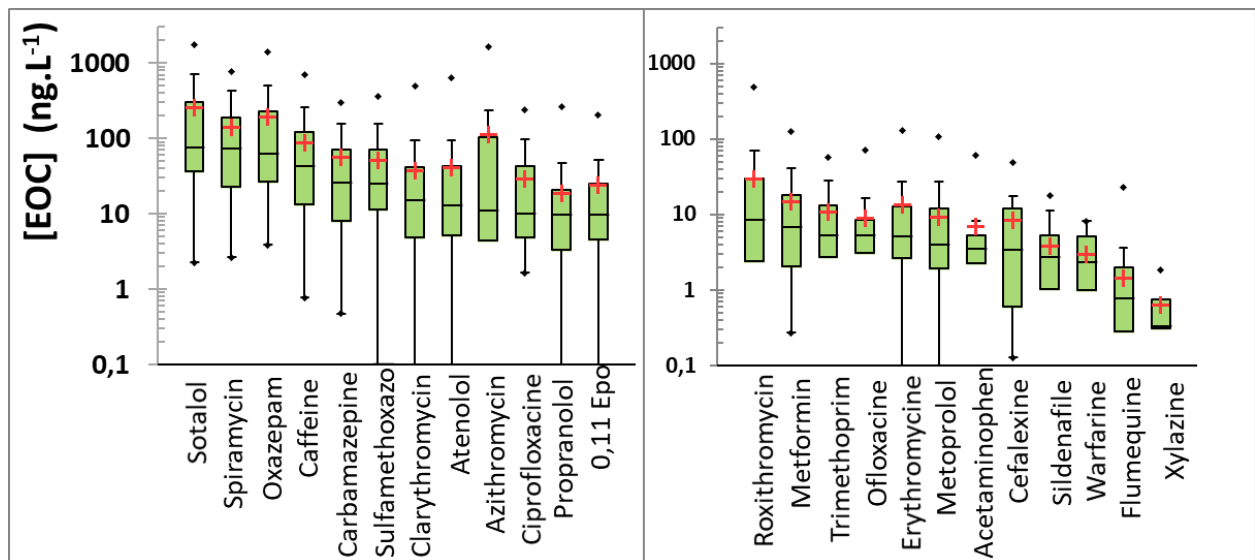


Figure 8 : Concentration en COEs des eaux de surface de la nappe de la Vistrenque, incluant le suivi temporel et les clusters.

Dans l'effluent de la STEP, les concentrations du COEs varient de 1000 à 7000 ng/L en induisant des pics significatifs juste en aval des sorties de la STEP, pics qui sont rapidement dilués par le débit de la rivière (**Figure 9**). Néanmoins, la concentration totale en COEs augmente légèrement le long du cours d'eau.

L'enregistrement sur deux ans a montré que les produits pharmaceutiques associés aux prescriptions à long termes, comme la carbamazépine, ont tendance à présenter des concentrations dépendantes de la dilution, tandis que les antibiotiques, comme la céfalexine, l'érythromycine et la clarithromycine, ont atteint un pic en hiver, très probablement associé à une période de prescription aigue (Figure 10). Aucune dégradation des EOCs n'a pu être observée dans les cours d'eau sur 3 km en aval d'un rejet de STEP.

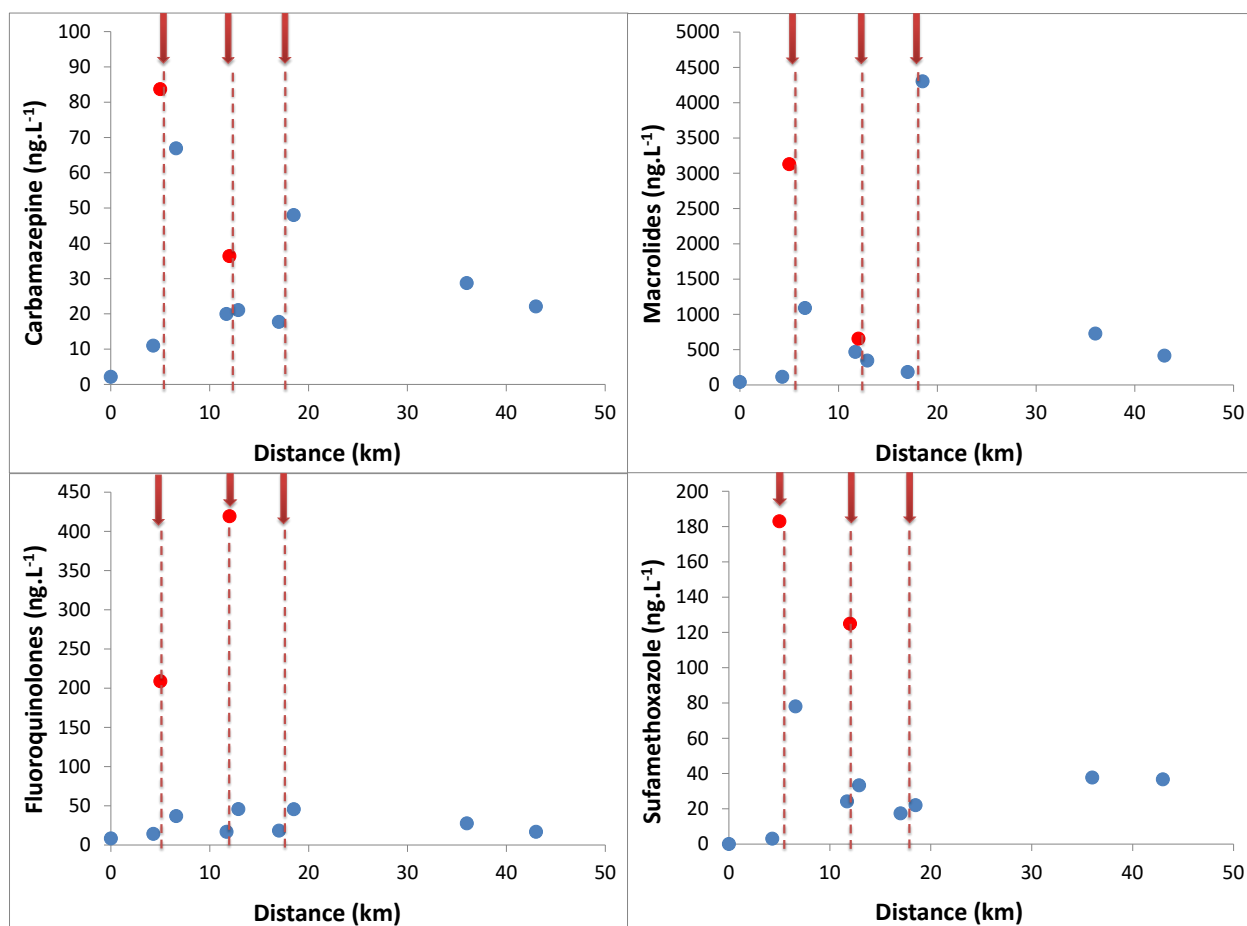


Figure 9 : Variations des concentrations des COEs le long du Vistre lors de la campagne du 20/03/2014

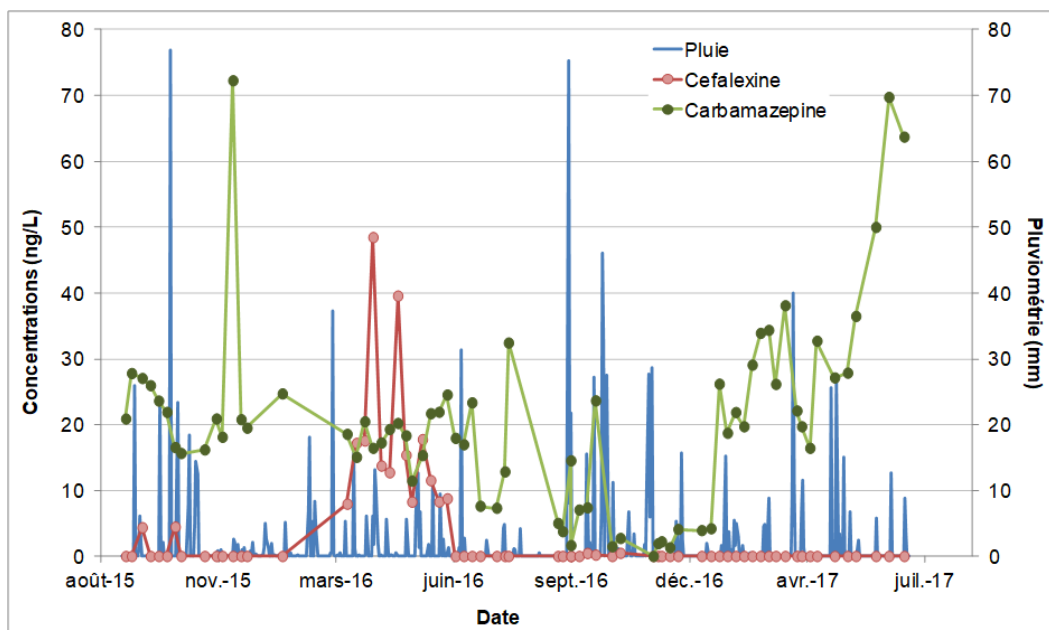


Figure 10 : Variations des concentrations en COEs dans le Vistre à l'amont du rejet de la STEP de Nîmes, exemple de la carbamazépine et de la céfalexine.

Le dernier objectif de cette tâche était de détecter la présence de bactéries multirésistantes (BMR) dans le Vistre et dans les eaux souterraines. Ces analyses ont été effectuées sur des échantillons des sous-tâches 1 et 3.

Ainsi, 3 types de milieux de culture ont été inoculés avec des échantillons d'eau : ChromID™ ESB, ChromID™ CARBA, ChromID™ oxa - 48 (Biomérieux, France). Le premier permet de sélectionner la présence de bactéries Gram négatif produisant un spectre étendu de bêta-lactamase, le second est un milieu sélectif utilisé dans le criblage des Enterobactéries productrices de carbapénémase et le dernier est sélectif pour les Enterobactéries productrices de carbapénémase de type oxa-48. Les souches isolées sur différents milieux sont conservées pour une identification ultérieure par spectrométrie de masse. La sensibilité aux antibiotiques a été testée lors de la reculture de souches identifiées. Les colonies ont été identifiées à l'aide de la spectrométrie de masse MALDI-TOF. La sensibilité aux agents antimicrobiens a été testée par la méthode de diffusion sur disque. Les gènes de résistance aux antibiotiques ont été caractérisés par la caractérisation moléculaire de l'ADN par réaction en chaîne par polymérase (PCR).

Parmi les 401 souches bactériennes collectées, 60 (15%) ont été retrouvées des Enterobacteriaceae avec 67% de *E. coli*, 15% de *Enterobacter cloacae*, 7% de *Serratia fonticola*, 5% de *Klebsiella pneumoniae*, 3% de *Klebsiella oxytoca*, 2% de *Citrobacter freundii* et 1% de *Morganella morganii*. Les tests de sensibilité aux antibiotiques effectués sur ces 60 isolats ont montré que 38 (63%) isolats ont produit une ESB (pour les bêta-lactamases à spectre étendu), 12 (20%) ont une céphalosporinase déprimée et 10 (17%) étaient sensibles aux céphalosporines de troisième génération ou présentaient une résistance naturelle à ces groupes antibiotiques.

La caractérisation de la teneur en gènes producteurs d'ESBL a montré que 75% des gènes isolés possédaient un gène blaCTX-M : 46% appartenaient au Groupe 1, 19% au Groupe 9 et 10% au Groupe 8. 25% des bactéries productrices d'ESBL possédaient soit le gène blaTEM-24 (23%) soit le gène blaSVH-5 (2%). Ni les gènes blaAmpC porteurs de plasmide, ni les gènes codant pour la carbapénémase n'ont été détectés. La détection de gènes codant pour la PMQR a montré que 48% des isolats possédaient un gène qnr (38% qnrB ; 8% qnrS et 2% qnrA), 10% le gène aac(6)-Ib, 8% les deux gènes oqxAB et 2% le gène qepA. Au total, 61 % des isolats MDR présentaient une co-résistance plasmidique, en particulier les souches contenant blaCTX-M-1 et blaCTX-M-8.

En ce qui concerne la clonalité des isolats, une grande diversité a été observée entre les différentes espèces. Cependant, quatre clusters ont été observés pour *E. coli* et une pour *E. cloacae*. Les autres espèces bactériennes n'ont aucun lien entre elles. L'analyse MLST a confirmé l'existence d'un large panel d'isolats appartenant à diverses ST : ST8, ST87, ST129, ST341, ST375, ST471, ST649 pour *E. coli* et ST873 et ST1310 pour *K. pneumoniae*. Il est intéressant de noter que *E. coli* ST8 a déjà été décrit chez des sardines pêchées en Méditerranée et *E. coli* ST471 chez des chiens et des oiseaux sauvages.

2.4. WP1 - Tâche 3 : Eaux de surface – étude du transfert d'eau souterraine

La tâche 3 porte sur le transfert des COES dans les réseaux fluviaux et souterrains. La sélection des sites d'échantillonnage pour la surveillance du transfert des COES dans les eaux de surface et les eaux souterraines a été basée sur les résultats de la tâche 1. Cinq clusters ont été sélectionnés pour un échantillonnage mensuel de juillet 2016 à juin 2017, dont neuf forages situés à proximité des cours d'eau sur 5 sites. Afin de mieux caractériser les variations temporelles du signal, il a été décidé d'intensifier la fréquence d'échantillonnage à un échantillonnage hebdomadaire chaque fois que possible sur un des 5 clusters. Le cluster 2 a été choisi parce qu'il comprend deux puits, un cours d'eau dépendant de l'effluent de la STEP et un panel intéressant de molécules dans les échantillons d'eau souterraine. Le prélèvement d'échantillons sur ce site s'étend sur une période de deux ans, de septembre 2015 à juin 2017 inclus.

Les empreintes en COEs et le traçage avec des isotopes de l'eau confirment dans la plupart des cas une présence des COEs dans les eaux souterraines en provenance de l'eau de surface, et, dans d'autres cas, une provenance de fosses septiques. Les fréquences de quantification et concentrations des molécules dans les eaux souterraines des clusters ont été représentées en Figure 11 et Figure 12. Il est notable que la carbamazépine, son produit de dégradation et le sulfaméthoxazole montrent des fréquences de détection entre 100 et 90 %. La caféine, l'acétaminophène, la clarithromycine, et la roxithromycine, présentent des fréquences de détection entre 50 et 90%. Le reste des molécules montrent des fréquences de détection comprises entre 50 et 10 %. En revanche seules la carbamazépine et le sotalol montrent des concentrations médianes supérieures à 10 ng/L. Néanmoins, 11 molécules présentent des concentrations médianes supérieures à 1 ng/L (Sulfaméthoxazole, 10,11 Epoxy carbamazépine, Caféine, Clarithromycine, Roxithromycine, Oxazepam, Azithromycine, Ciprofloxacine, Spiramycine, Ofloxacine, Céfalexine).

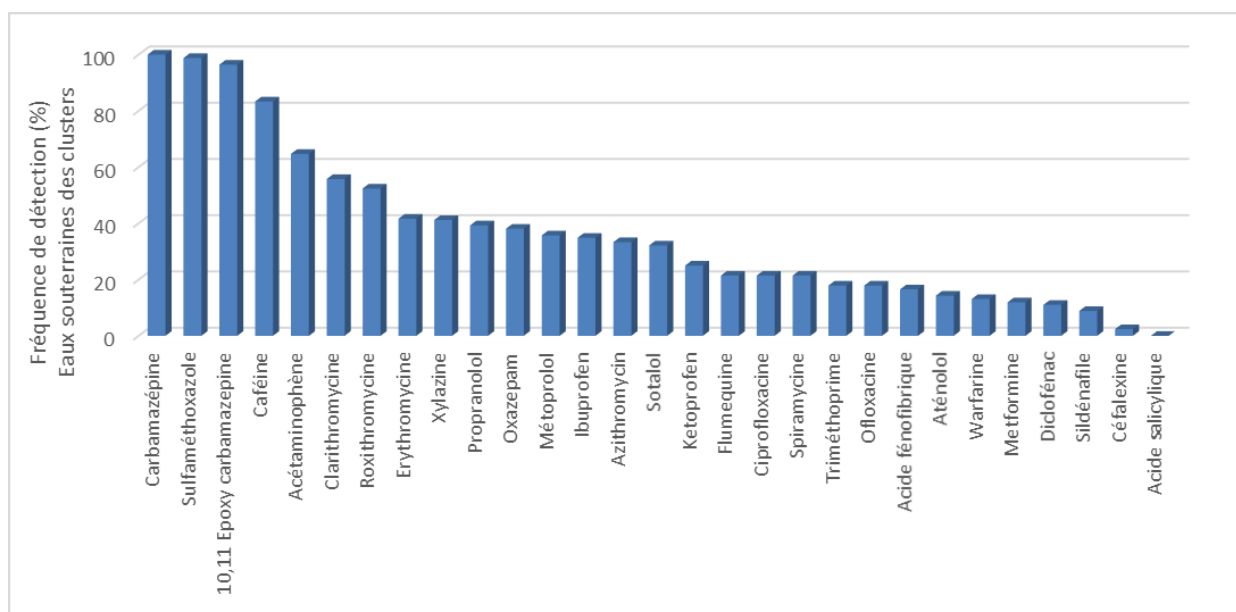


Figure 11 : Fréquences de détection des COEs des eaux souterraines des clusters, Nappe de la Vistrenque

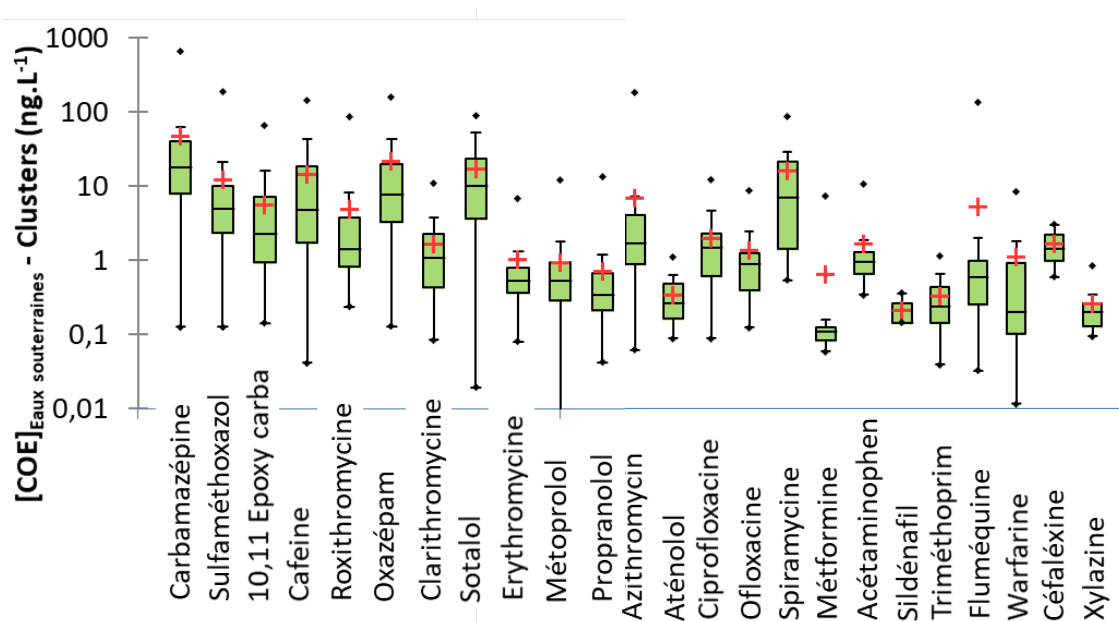


Figure 12 : Concentration en COEs des eaux souterraines des clusters, Nappe de la Vistrenque

Les fréquences globales de quantification ainsi que les concentrations sont plus élevées dans les forages sélectionnés pour les clusters que dans l'investigation à l'échelle du bassin sur les eaux souterraines de la tâche 1 (Figure 13 & Figure 14). Par exemple, les fréquences de quantification sont globalement 2 à 10 fois plus élevées pour le sulfaméthoxazole que celles obtenues dans l'étude à l'échelle du bassin. De même les concentrations moyennes sont au moins 5 fois plus élevées pour

la carbamazépine, l'oxazépam, le sulfaméthoxazole et le sotalol. Le diclofénac, l'une des molécules supplémentaires, a montré une fréquence de quantification non négligeable de l'ordre de 10 %.

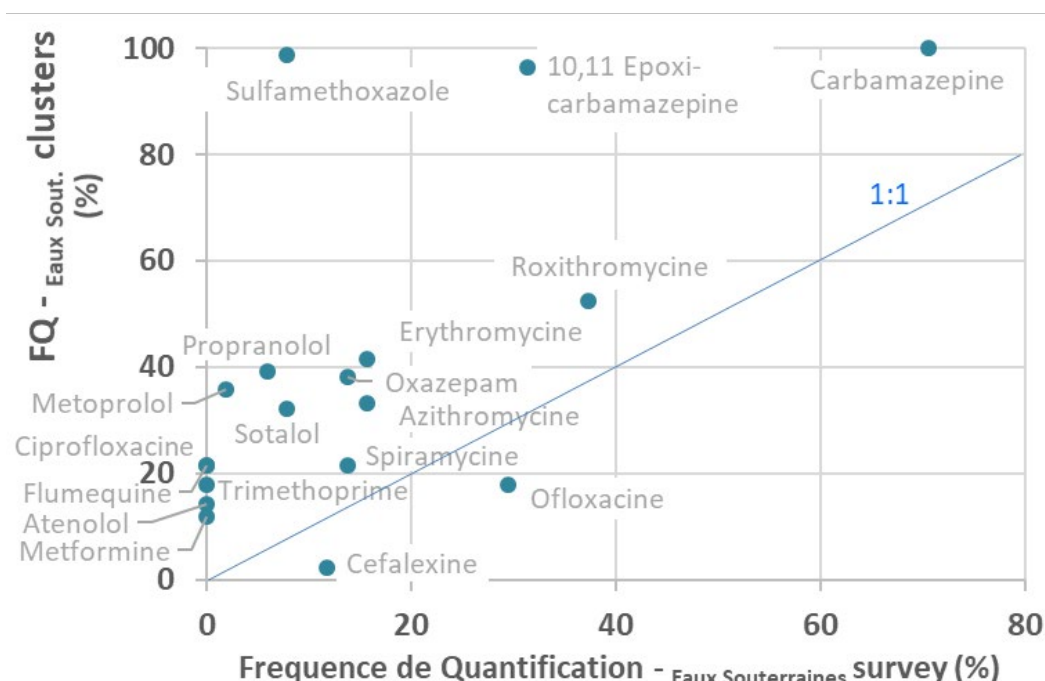


Figure 13 : Comparaison des fréquences de quantification des COEs dans les eaux de souterraines des clusters aux eaux souterraines de l'étude à l'échelle de la nappe, nappe de la Vistrenque

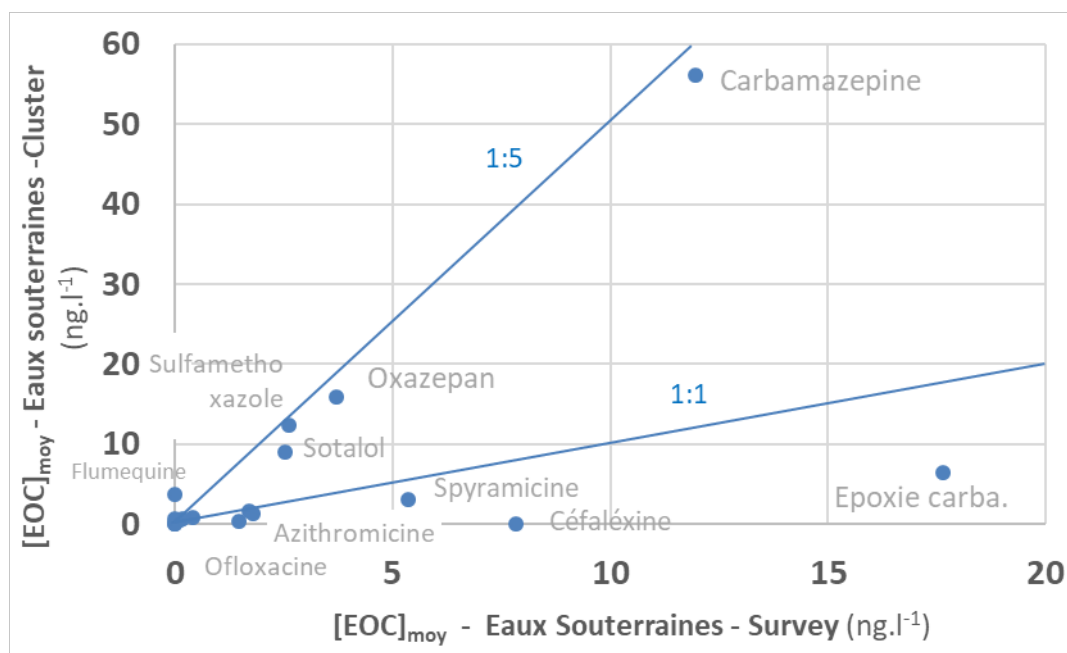


Figure 14 : Comparaison des concentration moyennes des COEs des eaux de souterraines des clusters aux eaux souterraines du survey régional, nappe de la Vistrenque

En comparaison aux eaux de surface, 4 molécules ont montré une fréquence de quantification dans les eaux souterraines des clusters aussi élevée que dans l'eau de surface (carbamazépine, sulfaméthoxazole, 10-11 époxy carbamazépine et caféine) alors que la plupart des autres molécules ont montré une diminution de la fréquence de détection de 2 à 8 (Figure 15). Trois des molécules n'ont montré aucune atténuation entre les eaux de surface et les eaux souterraines, la carbamazépine, encore une fois l'ibuprofène et la flumequine, alors que la plupart des facteurs d'atténuation sont compris entre 5 et 100 (Figure 16).

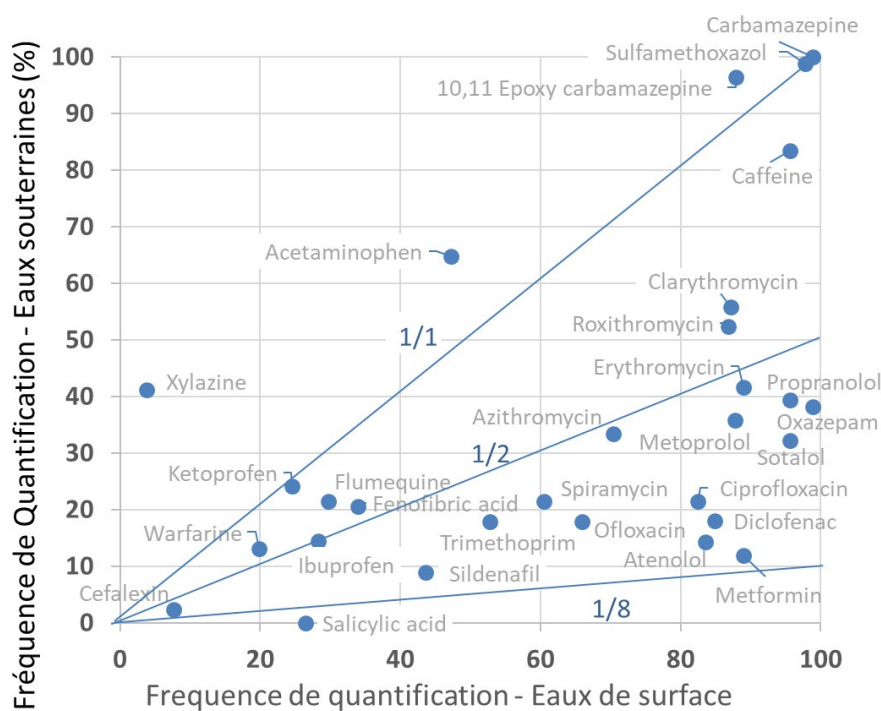


Figure 15 : Comparaison des fréquences de quantification des COEs des eaux de surface et des eaux souterraines du suivi mensuel des clusters, nappe de la Vistrenque

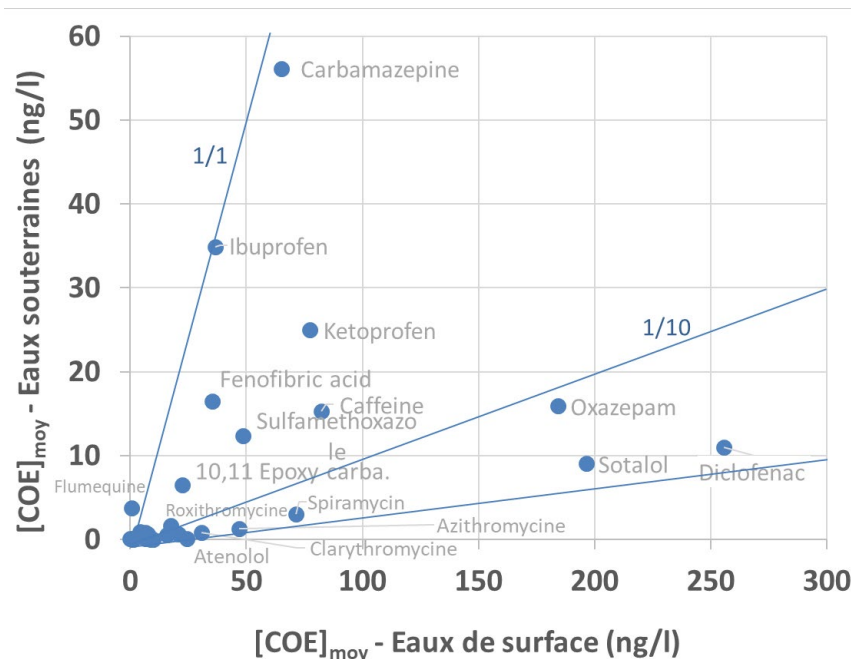


Figure 16 : Comparaison des concentrations moyenne en COEs des eaux de surface et des eaux souterraines du suivi mensuel des clusters, nappe de la Vistrenque

Les variations saisonnières observées dans le débit du cours d'eau ont également été observées dans les eaux souterraines (paragraphe 2.3). Le décalage temporel entre le signal de l'eau de surface et l'eau souterraine varie de quelques jours à un mois selon les sites et les saisons potentielles.

Pour cette dernière tâche, reste à interpréter les résultats $^3\text{H}/^3\text{He}$. En raison de la panne de la machine, de l'augmentation de la fréquence d'échantillonnage, l'échantillonnage du tritium a été retardé afin de mieux contraindre le plan d'échantillonnage de ce traceur. Le temps d'analyse lui-même exige un minimum de 6 mois pour permettre la recroissance en ^3He . Les résultats ont été reçus récemment, et sont actuellement en cours d'interprétation. Il n'en reste pas moins que toute la tâche 3, à l'exception de l'interprétation du tritium, est accompli.

3. Etude de l'occurrence des EOCs dans un bassin versant sous l'influence de l'épandage de lisier, le bassin de l'Empordà (Work Package 2)

3.1. Objectifs

Le Work package 2 consistait à étudier les produits pharmaceutiques vétérinaires dans la formation des aquifères alluvionnaires de l'Empordà. Les investigations en accord avec les objectifs du projet PERSIST sont découpées en 4 tâches.

3.1.1. WP2 - Tâche 1) Caractérisation, échantillonnage et analyses sur le terrain

Au cours de la période 03/15-06/15, le travail de terrain a été effectué pour compléter l'étude hydrogéologique de la zone étudiée et l'échantillonnage d'un total de 47 puits, 8 dans les eaux de surface et 2 les effluents de la station d'épuration (total : 57). Des échantillons ont été prélevés pour des analyses hydrochimiques, isotopiques, EOCs (antibiotiques vétérinaires essentiellement) et microbiologiques (gènes de résistance). La reconnaissance géophysique de l'aquifère a été effectuée par tomographie électrique et des échantillons de sédiments (3) ont été prélevés pour des essais de transport en laboratoire. Les bases cartographiques de SIG ont été établies.

3.1.2. WP2 - Tâche 2) Détermination de la migration des antibiotiques et étude de leur caractérisation microbienne.

Pour déterminer la migration des antibiotiques, huit forages et deux points d'eau de surface représentatifs ont été échantillonnés mensuellement pendant un an (09/15-09/16), en prélevant un échantillon saisonnier pour des analyses microbiologiques. Les analyses des COEs d'intérêts, et notamment vétérinaires, ont été effectuées sur ces échantillons (voir tâche 1). En collaboration avec le partenaire allemand, des essais de transport sur colonne ont été effectués en utilisant l'eau et le sol de la zone d'étude afin d'obtenir les paramètres des processus de transport. En outre, des essais sur le terrain ont été menés dans des zones agricoles afin d'observer le mouvement des antibiotiques dans la zone non saturée et dans des conditions environnementales réelles.

3.1.3. WP2 - Tâche 3) Interprétation hydrogéologique et modélisation des processus de transport.

L'interprétation hydrogéologique était basée sur une étude "classique" des données hydrogéologiques, hydrochimiques et isotopiques, complétée par la modélisation numérique du système d'écoulement de l'aquifère du Baix Fluvià et la modélisation de l'écoulement et du transport dans la zone insaturée pour l'expérience dans les zones agricoles. Des méthodes géostatistiques ont été appliquées pour déterminer la relation spatiale entre les données hydrochimiques (EC, SO₄, NO₃) et les concentrations en antibiotiques des échantillons

correspondant aux 47 points de prélèvement. De même, des méthodes d'analyse multivariable ont été appliquées afin d'associer la présence d'antibiotiques à des variables telles que : usages du sol, influence de la rivière..... Les données mensuelles ont été traitées par analyse de variance pour discerner l'influence hydrologique (transport, recharge) et géochimique (adsorption, dégradation).

3.1.4. WP2 - Tâche 4) Évaluation de l'impact de la présence d'antibiotiques sur la qualité des eaux souterraines.

Cette tâche consistait à interpréter les données et à diffuser les résultats dans des forums scientifiques et administratifs.

3.2. Les résultats obtenus selon les objectifs énoncés dans le WP2 sont :

3.2.1. Objectif 1) Décrire les processus qui contrôlent la présence et le transport des polluants.

L'étude des résultats indique 1) que les COEs sont présents dans les eaux souterraines et de surface, et 2) qu'il existe une grande variabilité de l'occurrence spatiale (Figure 17) et temporelle (fréquence de détection de chaque composé) (Figure 18 & Figure 19), ce qui conditionne la gestion de la qualité de la ressource.

La Figure 8 montre la fréquence de détection et les concentrations moyennes d'antibiotiques pour les eaux souterraines (bleu), les eaux de surface (rose) et les eaux usées (vert) obtenues lors de la première campagne d'investigation menée sur 47 puits, 7 eaux de surface et 2 effluents de STEP. Seuls 11 antibiotiques sur les 53 antibiotiques analysés ont été détectés dans cette campagne, correspondant à 4 groupes chimiques : sulfonamides, quinolones, macrolides et fluoroquinolones. Les concentrations d'antibiotiques recherchées sont de l'ordre de la dizaine de ng/L dans les eaux souterraines. L'occurrence d'antibiotique est clairement plus élevée dans les eaux souterraines que dans les eaux de surface et eaux de STEP. Certains composés n'ont été détectés que dans les eaux souterraines alors que d'autres ont été détectés dans tous les compartiments.

Les 6 antibiotiques les plus fréquemment détectés dans les forages et dans les eaux de surface sont présentés en Figure 19. La ciprofloxacine et le sulfaméthoxazole sont les antibiotiques les plus détectés. Aucune distribution spatiale claire n'est observée. La présence ubiquiste d'antibiotiques le long de l'aquifère est attribuée à la pollution diffuse par les pratiques agricoles et au mélange entre les eaux de surface et les eaux souterraines renforcé par les régimes de pompage des puits pendant la saison d'irrigation.

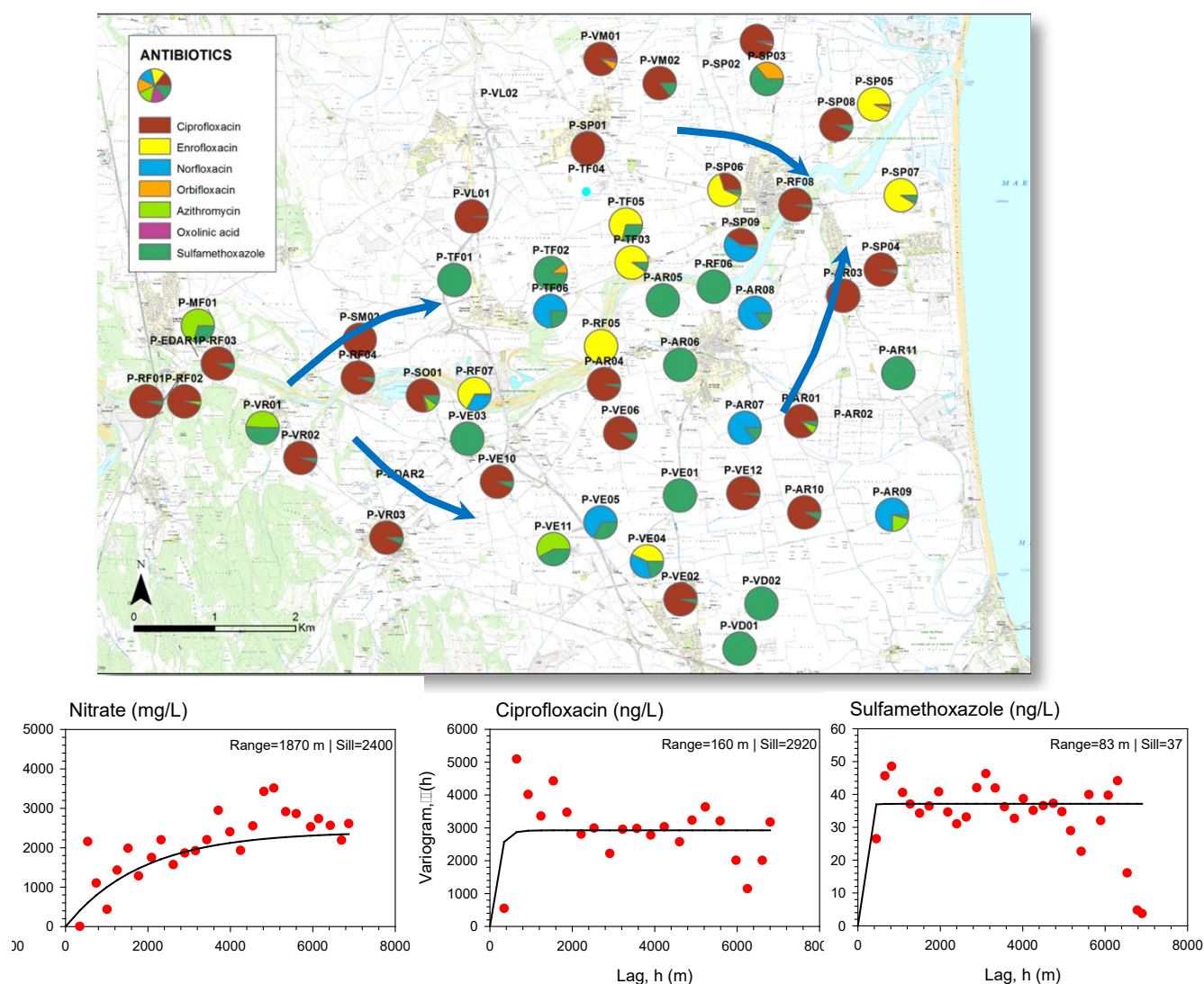


Figure 17 : Variabilité spatiale des teneurs en COEs des eaux souterraines du bassin de l'Empordà
b) Variogramme des concentrations en nitrate, ciprofloxacine et sulfaméthoxazole, montrant l'absence d'organisation spatiale des concentrations en EOCs en opposition au nitrates.

Pour le suivi temporelle 8 puits et 2 points de rivière ont été sélectionnés pour la campagne d'échantillonnage mensuelle (octobre 2015 - septembre 2016), au vu de leur pollution en antibiotiques, leur hydrochimie et leur localisation dans l'aquifère alluvial. De façon surprenante beaucoup plus de composés et de groupes chimiques ont été détectés tant dans les eaux souterraines que dans les eaux de surface lors de ce suivi temporel que lors de la campagne générale sur la variabilité spatiale (Figure 19). Jusqu'à 28 antibiotiques sur un total de 53 antibiotiques ont été détectés dans le cocktail d'antibiotiques des eaux souterraines, 25 dans les eaux souterraines et 18 dans les eaux de surface. Cette observation soulève la question de la représentativité d'un échantillonnage ponctuel dans le temps pour caractériser la ressource.

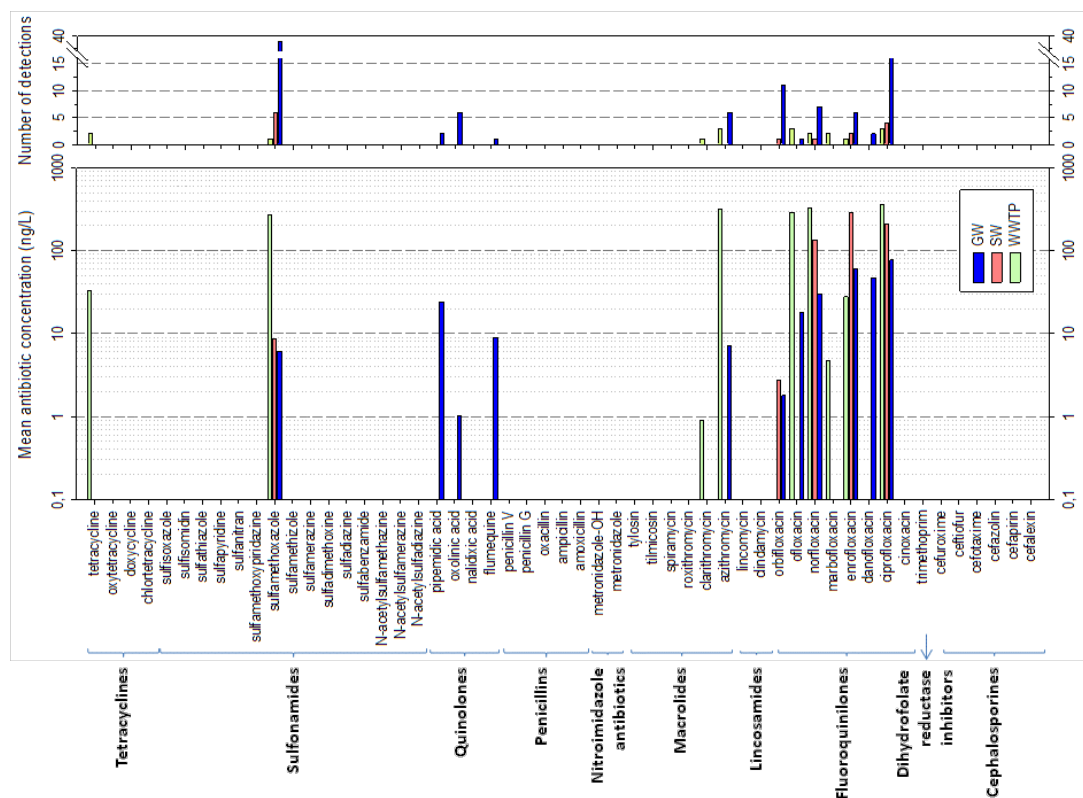


Figure 18 : Fréquences de détection et concentration des COEs des effluents, eaux de surface et eaux souterraines du bassin de l'Emporda lors de la campagne d'investigation portant sur la variabilité spatiale (Boy-Roura et al.).

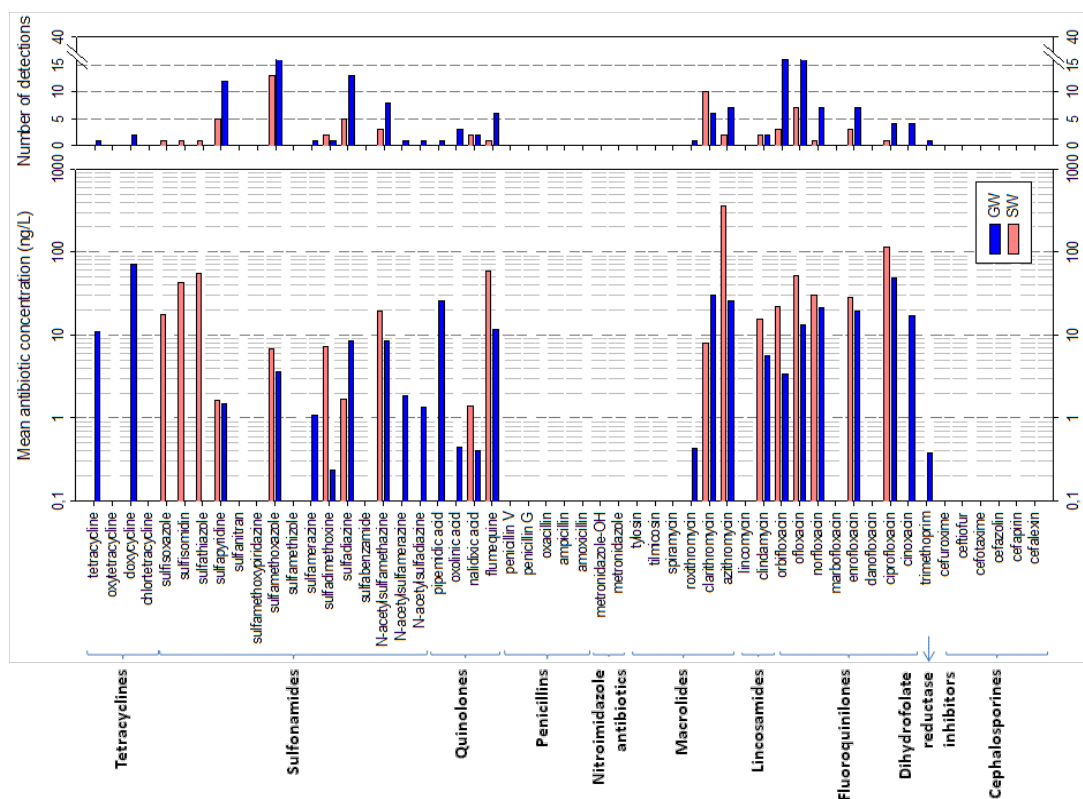


Figure 19 : Fréquences de détection et concentration des COEs eaux de surface et eaux souterraines du bassin de l'Emporda du suivi temporelle des eaux souterraines (Boy-Roura et al.).

Cette variabilité à la fois temporelle et spatiale, corroborée par les analyses statistiques, est attribuée à : 1) l'idiosyncrasie de chaque point d'échantillonnage situé dans un champ d'écoulement affecté par des dizaines de puits pompant simultanément, 2) la grande capacité d'adsorption de ces composés ; 3) l'extrême variabilité des concentrations d'antibiotiques dans le lisier utilisé comme engrais, et 4) l'application territoriale dispersée selon laquelle les champs qui reçoivent le lisier (céréales) et qui ne le font pas (vergers).

En ce qui concerne les communautés bactériennes, elles ont été déterminées sur 8 sites d'eau souterraines et en 2 points le long de la rivière Fluvia lors de campagnes d'échantillonnage saisonnier (automne 2015 - automne 2016). La concentration de sept gènes de résistance aux antibiotiques a également été déterminée : *sul1* (résistance aux sulfonamides), *tetW* (résistance aux tétracyclines), *qnrA*, *qnrB* et *qnrS* (résistance aux fluoroquinolones) et *ermB* (résistance aux macrolides), ainsi que le gène *int11* comme indicateur de contamination anthropique. En ce qui concerne la composition de la communauté bactérienne ainsi que les concentrations de gènes de résistance, les échantillons ont été principalement regroupés en fonction de leur origine (puits) et non de la composante saisonnière. Ce fait suggère que les conditions locales prévalent à chaque forage auraient une plus grande influence sur la communauté bactérienne de l'eau souterraine et sur sa résistance que les variations saisonnières des conditions physico-chimiques (température, nappe phréatique, conductivité, etc.) et de la pollution (nitrates, antibiotiques) qui affectent l'aquifère.

3.2.2. Objectif 2) Déterminer la migration des antibiotiques entre les différents plans d'eau et les relations avec les communautés bactériennes.

A ce stade, la difficulté de modéliser la migration des antibiotiques associée à la complexité du comportement géochimique de ces polluants est avérée. Du point de vue théorique, il n'est pas possible de déterminer comment caractériser les composés ayant un comportement "zwitter", selon lequel les paramètres d'adsorption dépendent des conditions hydrochimiques de la matière organique continue du sol, de l'eau et de l'aquifère. Les résultats des tests sur colonne effectués en Allemagne sont cohérents avec les comportements observés sur le terrain, bien que les valeurs du facteur de retardement rapporté dans la littérature soient très variables, pour un même composé.

3.2.3. Objectif 3) Élaborer des modèles pour reproduire la mobilité des antibiotiques de la surface vers l'aquifère.

Compte tenu de la variabilité observée et de ses causes, il a été exclu d'entreprendre une simulation de transport associé au modèle d'écoulement de l'aquifère du Baix Fluvia. En effet les incertitudes découlant des quatre raisons énoncées dans l'Objectif 1 ont découragé l'exercice de modélisation des transports. Cela implique qu'en dépit d'une base de données solide (qui est l'un

des atouts de ce projet), nous concluons qu'avec les connaissances actuelles, il n'est pas possible de simuler de manière fiable la migration des COEs dans l'aquifère.

3.2.4. Objectif 4) Intégration des résultats et de leur implication dans la gestion durable des eaux souterraines.

L'intégration des résultats apporte deux aspects fondamentaux dans la gestion de ces polluants : 1) la difficulté de caractériser leur distribution dans un aquifère alluvial malgré un échantillonnage intense et des connaissances régionales, et 2) la complexité de prendre des décisions pour la gestion et la protection de la qualité des eaux souterraines en présence de ces contaminants et de leur impact sur la communauté microbienne avec une résistance prouvée aux antibiotiques.

4. Etudes des propriétés d'une sélection de contaminants émergents en milieu contrôlé (work package 3)

L'amélioration de la compréhension des processus de terrains impliquant hétérogénéité et dynamique nécessite la connaissance de processus et de paramètres gouvernant le transport des composés. Les expériences en laboratoire peuvent aider à identifier les paramètres de sorption et de biodégradation sous diverses conditions hydrologiques. L'objectif de ce troisième work package est de déterminer les paramètres de sorption et les taux de dégradation de certains produits pharmaceutiques dans le cadre d'expériences en laboratoire contrôlées. Nous avons donc mené des expériences en batchs et en colonnes avec une sélection de COEs en utilisant des sédiments provenant de deux sites étudiés (Vistrenque et Empordà) ainsi que du sable quartzéux comme matériau de référence.

4.1. WP3 - Tâche 1. Expériences sur colonne

Des expériences sur colonne ont été effectuées avec trois vitesses d'écoulement différentes, dans des conditions abiotiques et biotiques, tout en appliquant des traceurs conservatifs (bromure, uranine) et une sélection de COEs. Des conditions d'injections instantanées et continues de traceurs ont été étudiées. A partir de courbes de concentration des traceurs et de la modélisation mathématique, des paramètres réactifs de transports ont déterminés (Figure 20 & Figure 21). Dans les expériences d'injection instantanée, les concentrations observées et les taux de récupération de l'aténolol et du clofibrate étaient faibles, ce qui indique que la sorption et la dégradation influencent fortement leur transport dans le limon sableux. Le diclofénac, la caféine et la carbamazépine ont également été affectés par la sorption et la dégradation, mais dans une moindre mesure que l'aténolol et le clofibrate. Le sulfaméthoxazole, le kétoprofène et l'antipyrine ont été récupérés presque en totalité, ce qui a révélé un impact quasi négligeable de ces processus de transport sur ces molécules. Nous avons également constaté que la plupart des composés n'étaient pas influencés par des vitesses d'écoulement différentes. Seules les valeurs maximales et les taux de récupération de l'aténolol ont diminué entre le débit le plus élevé testé et le débit le plus faible. Cet impact n'était pas visible pour les taux de dégradation et les facteurs de retard modélisés révélant que ce n'était pas la vitesse d'écoulement mais bien le temps de transit moyen qui est le facteur le plus important influençant son transport. Pour les expériences avec injection en continu, on a obtenu des résultats similaires montrant généralement peu de sorption et de dégradation pour la plupart des composés sélectionnés. En ce qui concerne la caféine, une biodégradation accrue a été observée après une période d'adaptation, en particulier dans des conditions oxiques et en l'absence de sulfaméthoxazole. Cette observation souligne l'influence que certaines molécules peuvent avoir sur le comportement des autres composés du cocktail.

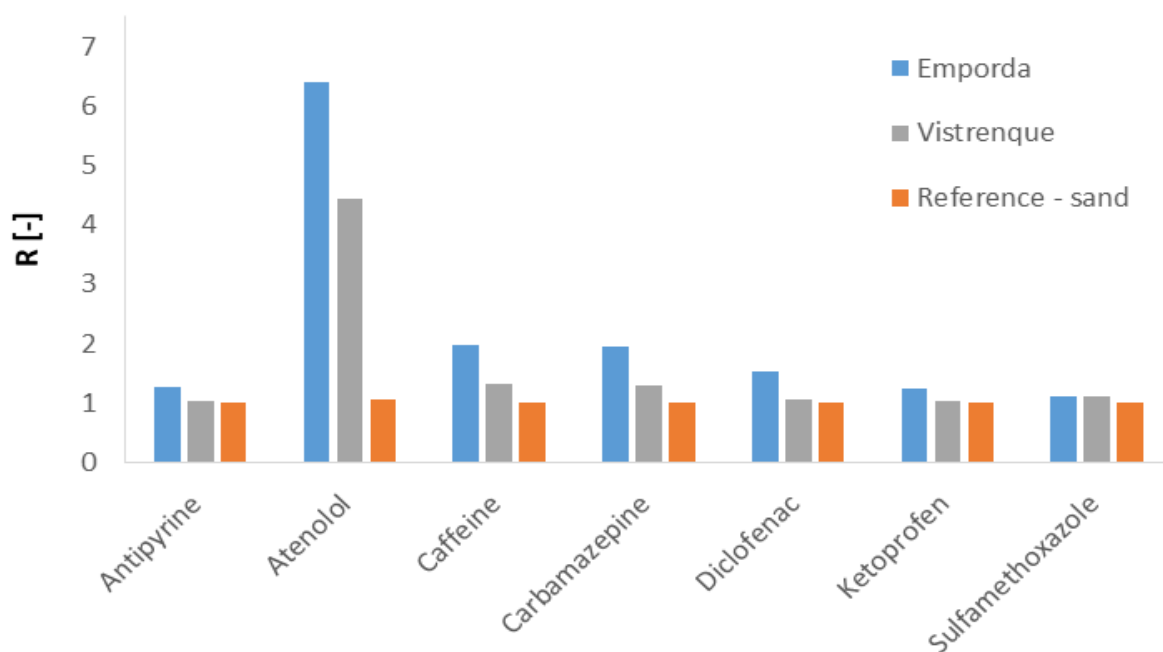


Figure 20 : Taux de dégradation des molécules étudiées lors des tests d'injection sur colonnes

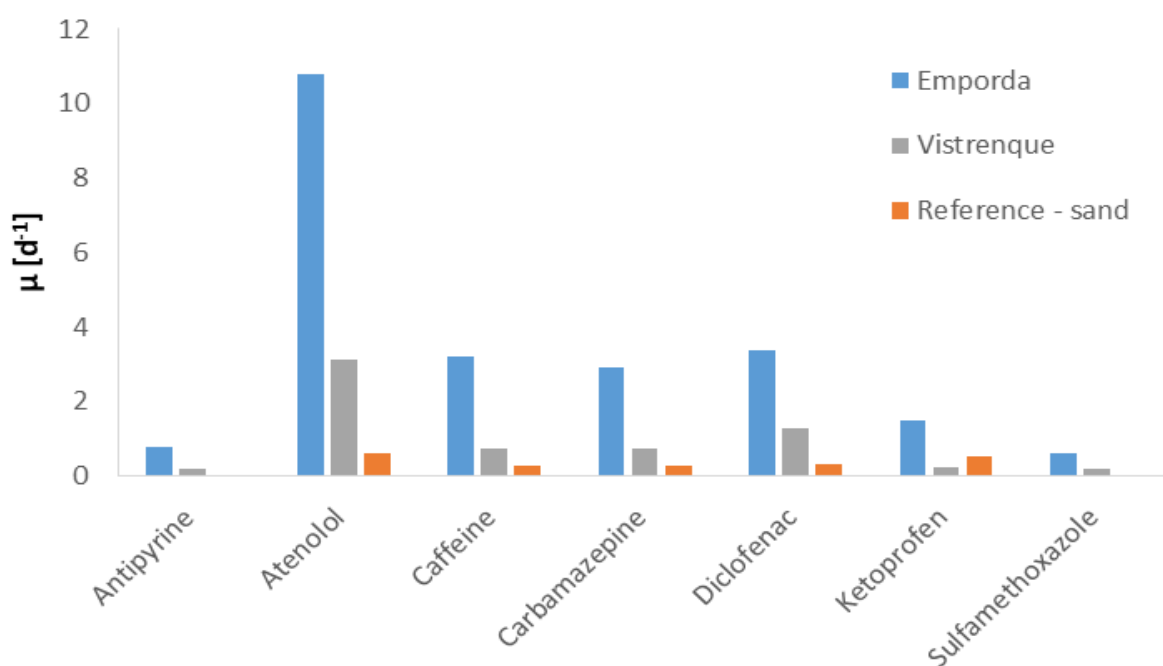


Figure 21 : Facteur de retardement des molécules étudiées lors des tests d'injection sur colonnes

4.2. WP3 - Tâche 2 : Expériences sur les lots

Les expériences par lots, les meilleures conditions pour ce type d'expérience ont été établies avec des composés et des sédiments sélectionnés et sous conditions contrôlées. 11 composés en concentration de 500ppb ont été utilisés dans des lots avec des rapports sédiments/eau de 1:1, 1:2, 1:5. Environ 160 bouteilles de lot ont été préparées et analysées successivement au cours du temps. En conséquence, les courbes d'équilibre ont été tracées. On a constaté que la sorption spécifique du composé variait de plus faible à la plus élevée : Antipyrine < Carbamazépine < Ketoprofène < Caféine < Sulfaméthoxazole < Diclofénac < Aténolol < Ofloxacine < Ciprofloxacine (Figure 22). Pour le sédiment de référence, la meilleure façon de décrire la sorption était d'utiliser des isothermes linéaires. Pour les sédiments de terrain, les isothermes linéaires ou de Freundlich étaient plus adaptées.

Compte tenu de toutes les expériences de laboratoire, la sorption et la dégradation étaient plutôt spécifiques au site. Ici, les sédiments eux-mêmes, mais aussi les conditions d'oxydoréduction ont principalement influencé le devenir des composés. Par conséquent, les valeurs de la littérature n'aident pas nécessairement à se faire une idée générale du transport ou de la demi-vie de ces composés sur un site de terrain spécifique. Il est donc important de tenir compte des propriétés chimiques des composés, des voies d'écoulement et des conditions géochimiques ou des propriétés des sédiments le long des voies d'écoulement et effectuer des mesures spécifiques.

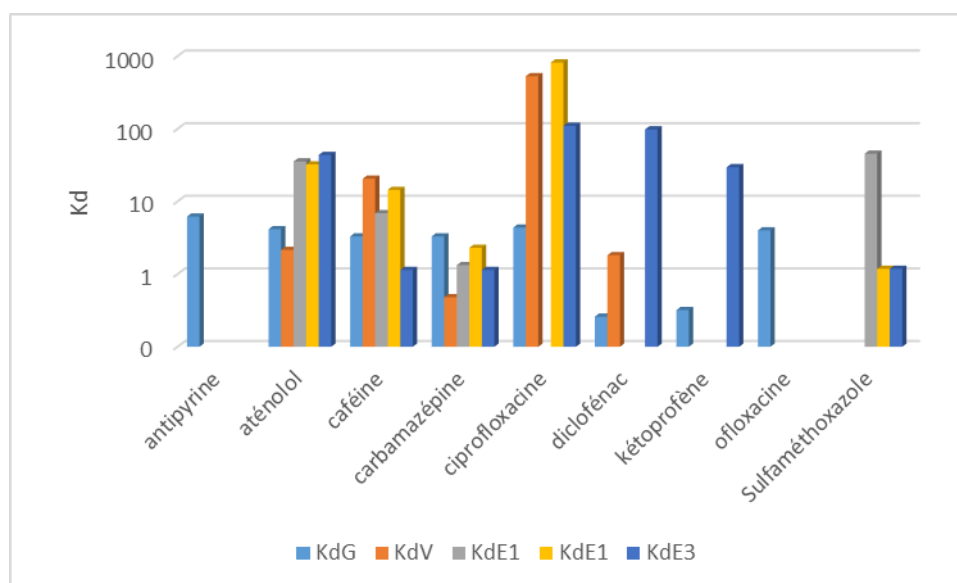


Figure 22 : Coefficients de sorption des molécules d'intérêt sur les différents sédiments étudiés. G pour les sables de référence, V pour le sol de la Vistrenque, E les sols du bassin de l'Emporda.

5. Réalisation des objectifs

Les objectifs généraux du projet ont été atteints. Toutes les observations et analyses ont été réalisées. Pourtant, il y a encore des documents en cours d'élaboration, qui seront soumis en 2018. A notre avis, les causes du retard dans l'envoi des publications sont justifiées ci-dessous.

En ce qui concerne le WP1, comme expliqué précédemment, des retards ont été enregistrés en raison d'une panne du système HPLC-MSMS au laboratoire d'analyse et de longs délais de réparation. De plus, le développement analytique pour les analyses de molécules a pris plus de temps que prévu et s'est ajouté à l'obstacle précédent. Enfin, l'extension du plan de surveillance a considérablement alourdi la charge de travail. Tout cela s'est traduit par un retard global d'un an sur l'ensemble des travaux. Alors que le post-doc a été prolongé de 6 mois, la réorganisation du plan de travail a été nécessaire et le temps supplémentaire n'a pas permis de couvrir la totalité du travail supplémentaire requis. Néanmoins, toutes les tâches, à l'exception de l'interprétation des analyses du tritium, ont été réalisées et les publications sont en cours.

En ce qui concerne le WP2, les progrès ont suivi la planification initiale telle que décrite dans le projet. La difficulté d'aborder un sujet nouveau, avec peu de publications pertinentes, implique une analyse très approfondie et minutieuse avant d'atteindre des résultats publiables. L'interdisciplinarité du problème posé par les connotations hydrogéologiques, géochimiques, microbiologiques et aussi statistiques (des méthodes telles que le "partitionnement des variations" ont été incorporées, largement utilisées en écologie, mais pratiquement inconnues en hydrogéologie). En particulier, la collecte des données, la charge analytique et le budget de fonctionnement ont fait l'objet d'une estimation raisonnable, comme en témoigne le fait que la demande de prolongation d'une troisième année était due à la réception de données de laboratoires externes pour l'ICRA. L'impossibilité d'avoir les contrats postdoctoraux et techniques au cours de cette troisième année a affecté le rythme des publications.

En ce qui concerne le WP3, le financement du projet a d'abord été confirmé par l'agence nationale avant la fin décembre 2014, de sorte que l'annonce de la vacance du poste postdoc a été possible au plus tôt en janvier 2015. Le candidat idéal pour un poste postdoctoral ne pourrait pas commencer avant juillet 2015.

Malgré le retard pris dans la finalisation des articles, l'accent a été mis sur la diffusion des résultats dans les congrès nationaux et internationaux, les séminaires et les organismes publics, de sorte que la diffusion des conclusions obtenues a été efficace et satisfaisante. Les publications sont en cours.

6. Promotion de la recherche multidisciplinaire pendant la durée de vie du projet

WP1 : Le laboratoire CHROME est une équipe nouvellement constituée, basée sur une approche interdisciplinaire. Ce projet a favorisé et renforcé cette collaboration entre les spécialistes de la santé environnementale, les chimistes et les hydrologues. La collaboration avec les scientifiques des professions de santé de l'hôpital NIMES a également été encouragée sur les questions de BMR qui complètent l'expertise de l'équipe CHROME.

WP2 : A l'ICRA, le projet a impliqué la contribution d'hydrogéologues, de chimistes et de microbiologistes, tous créant un nouvel environnement scientifique pour aborder le sujet de l'effet des contaminants émergents dans les eaux souterraines. Ils ont contribué à la compréhension de la présence d'antibiotiques dans les aquifères, à la mise au point de nouvelles méthodes d'analyse pour extraire les antibiotiques des fumiers agricoles et des boues, et à la prise en compte la présence de gènes résistants aux antibiotiques dans les ressources en eaux souterraines contaminées par les antibiotiques.

Il convient de mentionner que l'expérience et les résultats de PERSIST ont été primordiaux pour obtenir un financement au niveau espagnol afin de poursuivre ce type de recherche dans des contextes hydrogéologiques distincts, comme moyen de recueillir les données nécessaires à l'évaluation des méthodes appropriées de collecte de données et de surveillance qui appuieront des plans de gestion adéquats pour prévenir la détérioration de la qualité de l'eau souterraine. Le nouveau projet (CGL2017-87216-C4-4-R, 2018-2021) inclue des hydrogéologues, des chimistes, des microbiologistes, des mathématiciens et des économistes, de sorte que le "problème" de la pollution par les antibiotiques des eaux souterraines est traité sous toutes ses facettes.

7. Résultat le plus important du projet

Le résultat le plus important a été la caractérisation complète de la présence de produits pharmaceutiques dans deux systèmes aquifères, conformément à l'hydrogéochimie pour le bassin versant et la dynamique hydrogéologique pour le second, en tenant compte de l'effet de leurs sources, de leurs processus de transport et de migration dans les eaux de surface et souterraines, et du rôle de leur comportement géochimique complexe. Ces résultats sont complétés par l'évaluation de la sorption et de la dégradation de 9 molécules dans des conditions de terrain en laboratoire.

Les molécules ont été classées de peu à très affectées par la sorption et la dégradation, mais ont également révélé des comportements spécifiques aux sédiments. Les paramètres de transport restent similaires pour différentes vitesses d'écoulement. Néanmoins, des temps de transit moyens plus longs entraîneront des taux d'élimination plus élevés, même si certains composés étaient moins dégradables que prévu ou étaient plus persistants en présence d'autres composés.

Dans le premier bassin versant dominé par l'urbanisation et sous la pression des effluents de la STEP, les résultats les plus importants sont que les EOC sont omniprésents même dans les eaux souterraines où ils peuvent être trouvés en concentration de l'ordre de ng.L^{-1} . L'un des principaux résultats de ces travaux est de démontrer le transfert des eaux de surface vers les eaux souterraines et que les facteurs d'atténuation peuvent être évalués. Ceci est d'une grande importance pour la gestion du champ de captant situés à proximité des eaux de surface, milieu récepteur des effluents de STEP.

Dans le deuxième bassin dominé par l'application de lisier, le principal résultat est que, en raison des multiples facteurs d'influence, la distribution des antibiotiques présente une très grande variabilité spatiale et temporelle qui rend difficile l'interprétation des données disponibles et de nécessite des stratégies de surveillance qui fournissent des résultats représentatifs à l'appui des mesures de gestion.

8. Implication pour la ressources en eau

Les gestionnaires et les décideurs doivent prendre en compte la persistance des COEs, comme le soulignent les expériences sur le terrain et en laboratoire. Il faut tenir compte de la grande variabilité spatiale et temporelle du signal du COEs dans les eaux souterraines lors de la conception de l'étude et de la surveillance sur le terrain afin d'évaluer la qualité de la ressource. En raison du transfert avéré de molécules des eaux de surface vers les eaux souterraines, l'influence des eaux de surface sur les forages exploités à proximité doit être prise en compte dans la conception de l'exploitation des champs captant. En ce qui concerne la modélisation, les paramètres de transport sont propres au site et les données de la littérature ne peuvent pas être utilisées sans tenir compte des conditions sur le terrain où le transport est également régi par les sédiments et les conditions géochimiques le long de la voie d'écoulement. La résistance microbienne aux pharmaceutiques est observée dans l'environnement et son potentiel de propagation doit être pris en compte.

Les résultats de cette étude abordent le point 6.3 du SDG, "Améliorer la qualité de l'eau", en produisant des connaissances visant à améliorer notre compréhension des processus d'occurrence et de transfert des COE en vue d'en réduire la contamination. Il convient de poursuivre les recherches sur les processus de transport et l'étude des molécules persistantes et du transfert de résistance microbienne. L'identification des molécules les plus persistantes devrait être intégrée dans les stratégies d'élaboration et de gestion des politiques.

D'un point de vue scientifique, les recherches complémentaires sont nécessaires pour mieux déterminer et limiter le devenir des molécules de la source au captage, y compris sur les propriétés des molécules, les conditions environnementales et l'interaction entre molécules. En raison de la multitude de molécules, le développement d'indicateurs représente une nécessité à des fins de gestion. Cependant, la définition d'indicateurs pertinents doit s'appuyer encore sur une meilleure compréhension des processus de transport in situ de molécules individuelles. En ce qui concerne

les gènes multirésistants alors que leur occurrence est prouvée, les processus de transfert doivent encore être étudiés.

De plus, la relation entre la présence d'antibiotiques dans les eaux souterraines et la résistance des communautés microbiologiques est un sujet pertinent sur lequel les futurs projets de recherche devront se concentrer. PERSIST a prouvé que les gènes de résistance aux antibiotiques (ARG) sont présents dans les bactéries des eaux souterraines, résultant éventuellement de l'apport d'antibiotiques en raison des eaux usées et des intrants agricoles dans le sous-sol. Du point de vue de la qualité des eaux souterraines, l'identification de ces ARG dénote une plus grande vulnérabilité des ressources en eau que celle liée à la présence d'antibiotiques et de composés pharmaceutiques. Cela met l'accent sur ce type de pollution et souligne la nécessité de prendre en compte la pollution microbienne dans les aquifères. Dans ce projet, l'occurrence des ARG a été prouvée ; d'autres recherches doivent porter sur les raisons de leur présence, leur continuité spatiale et temporelle, et les processus de migration (s'ils sont efficaces) dans les eaux souterraines.

La communication avec les utilisateurs s'est révélée être un processus délicat car prodiguer un message juste accompagné d'une grille de lecture approprié s'est révélé difficile au vu de la sensibilité du sujet. C'est pourquoi il est important d'entreprendre des recherches interdisciplinaires impliquant psychologues et sociologues spécialisés dans les questions de communication et de perception des risques afin d'améliorer les moyens de communiquer efficacement les résultats scientifiques potentiellement controversés afin de favoriser l'information et l'autonomisation tout en minimisant les polémiques.

Annexe 1 : Analyses des eaux souterraines de la campagne d'étude sur la variabilité spatiale à l'échelle de la nappe : COEs, majeurs, Traces et isotopes de l'eau (Tache 1)

Samples	Date d'échantillonnage	Type	Azithromycine	Roxithromycine	Spiramycine	Erythromycine	Ciprofloxacine	Oxofloxacin	Cefalexine	Triméthoprim	Sulfaméthoxazole	Flumequine	Oxazepam	Carbamazépine	10,11 Epoxi-carbamazépine	Propranolol	Sotalol	Metoprolol	Atenolol	Metformine	EOCs	Na	K	Mg	Ca	NH ₄	Li	Sr	Cl	Br	NO ₃	HCO ₃	SO ₄	δ ¹⁸ O	δ ² H	
								LQ (ng/L)															(mmol/l)					(μmol/l)			(mmol/l)				(‰ vs SMOW)	
			LQ (ng/L)	1,4	1,4	2,8	0,1	8,0	0,4	4,7	6,7	1,7	0,6	0,1	0,04	0,5	0,1	0,3	0,4	0,9	0,5															
PER 01	22/05/2015	GW, PW	6,1	5,5	<LQ	0,9	<LQ	<LQ	23,4	<LQ	4,1	<LQ	40,7	139,9	144,1	<LQ	178,9	3,3	<LQ	<LQ	546,9	84	15,3	8	137		4,42	385	126	0,3	0	337	127	-6	-43	
PER 02	01/06/2015	GW, PW	1,7	1,8	<LQ	0,1	<LQ	0,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	4,9	18	0,7	10	151	78	5	315	36	0,2	25	353	73	-6,4	-39	
PER 03	01/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	0,2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,2	37	3,2	10	149		2	881	69	0,3	31	337	147	-5,8	-38	
PER 04	01/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	26	1,3	12	189		8	776	72	0,4	57	360	158	-5,9	-37	
PER 05	01/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,7	<LQ	<LQ	3,0	1,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	6,3	13	0,5	3	94		2	208	19	0,1	7	233	49	-9,4	-66	
PER 06	01/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	9,3	6,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	16,7	30	3,1	6	158		7	887	51	0,3	58	301	102	-6,6	-44	
PER 07	01/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	12,4	17	0,9	5	145	<LQ	<LQ	12,4	17	0,9	5	145		1	485	29	0,2	25	342	68	-7,3	-48	
PER 08	01/06/2015	GW, PW	<LQ	1,7	<LQ	<LQ	<LQ	0,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,9	19	1,8	9	115		3	383	32	0,2	12	301	60	-8,2	-56	
PER 09	01/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	21	0,5	5	153		1	585	45	0,3	56	312	117	-6,5	-41	
PER 10	01/06/2015	GW, PW	<LQ	1,7	4,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	7,9	27	1,9	9	193		9	681	52	0,3	97	314	141	-6,5	-42	
PER 11	01/06/2015	GW, PW	1,6	1,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	39,1	14,6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	56,9	19	0,7	8	96		0	237	31	0,1	10	223	75	-8,1	-55	
PER 16	02/06/2015	GW, PW	<LQ	2,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,2	11	0,1	6	109		1	256	21	0,1	54	215	64	-7,3	-47	
PER 17	02/06/2015	GW, PW	<LQ	1,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,3	18	0,7	6	144		5	384	32	0,1	18	303	63	-6,4	-41	
PER 18	02/06/2015	GW, PW	2,3	1,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	4,0	13	0,6	15	64		2	210	21	0,1	67	137	57	-8,2	-55	
PER 19	02/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,4	0,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,5	10	1,6	7	127		1	280	16	0,1	39	322	41	-6,7	-43	
PER 20	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	12	0,4	7	114		1	157	26	0,1	39	273	60	-7,3	-47	
PER 21	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,3	17	1,8	7	120	2	1	269	38	0,2	19	215	69	-7,0	-46	
PER 22	03/06/2015	GW, PW	1,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,3	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	3,0	12	1,8	6	95		2	595	19	0,1	20	449	31	-6,5	-40	
PER 23	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,9	<LQ	21,7	219,2	190,0	0,2	8,4	<LQ	<LQ	<LQ	442,3	58	2,9	6	131		2	436	81	0,3	36	312	74	-6,3	-40	
PER 24	03/06/2015	GW, PW	<LQ	1,6	2,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	4,5	14	0,5	6	109	19	1	366	25	0,1	16	312	62	-7,0	-46	
PER 25	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,4	10	0,2	6	126		1	344	20	0,1	25	634	53	-6,3	-40	
PER 26	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,0	13	0,2	5	96		1	177	13	0,1	39	205	73	-6,9	-44	
PER 27	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,0	11	0,2	4	113		1	240	19	0,1	27	273	53	-6,9	-45	
PER 28	03/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,0	11	0,5	6	97		2	582	16	0,1	12	371	29	-6,5	-40	
PER 29	04/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,0	56	0,8	15	131	4	3	521	74	0,3	20	468	113	-6,8	-44	
PER 30	04/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,4	13	0,4	5	124		3	624	28	0,2	17	420	34	-6,5	-41	
PER 31	04/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,4	18	1,5	7	135		1	332	33	0,2	28	303	79	-7,5	-50	
PER 32	04/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	0,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,3	30	0,6	6	159		0	729	39	0,3	26	361	124	-7,0	-47	
PER 33	04/06/2015	GW, PW	<LQ	<LQ	8,6	<LQ	<LQ	2,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	12,6	24	0,8	8	130		2	740	34	0,2	14	390	50	-6,6	-41	
PER 34	04/06/2015	GW, PW	<LQ	1,6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	16,6	3,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	22,0	34	13,7	7	130		10	539	43	0,2	13	361	90	-7,1	-46	
PER 35	22/06/2015	GW, MW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,8	15	0,5	6	137	24	1	267	28	0,2	33	295	77	-6,8	-44	
PER 36	22/06/2015	GW, MW	<LQ	1,7	3,0	0,1	<LQ	3,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	8,6	10	0,8	6	147		2	473	23	0,1	18	365	48	-6,5	-40	
PER 37	22/06/2015	GW, MW	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	11,1	3,9	<LQ	<LQ	0,9	<LQ	<LQ	15,9	22	2,8	8	111		4	483	33	0,1		300	51	-8,0	-55	
PER 38	22/06/2015	GW, MW	2,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	3,3	43	3,8	12	143		3	516	63	0,2	10	412	61	-8,0	-54	
PER 39	22/06/2015	GW, MW	<LQ	1,8	<LQ	<LQ	<LQ	1,4	8,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	11,9	32	0,8	11	119		2	440	46	0,2	5	346	52	-8,3	-57	
PER 40	22/06/2015	GW, MW	<LQ	1,7	5,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	8,0	31	0,8	12	132		3	394	49	0,2	16	329	80	-7,6	-50	
PER 43	24/06/2015	GW, MW	<LQ	<LQ	<LQ	0,1	<LQ	2,6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	11,6	4,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	18,3	12	0,6	4	150		1	633	23	0,2	19	389	42	-6,2	-39	
PER 44	24/06/2015	GW, MW	<LQ	<LQ	<LQ	0,5	<LQ	<LQ	4,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,1	&																					

Annexe 2 : Concentration en COEs et isotopes de l'eau des eaux de surface

Samples	Date	δ ¹⁸ O	SD δ ¹⁸ O	δ ² H	SD δ ² H	Carbama zepine	10,11 Epoxy carbamaze	Flumeu uine	Warfa rine	Caffeine	Metfor mine	Trimeth oprimine	Sulfamet hoxazol	Cefale xine	Ciproflo xacine	Ofloxac ine	Erythro mycine	Azithro mycine	Roxithro mycine	Spiramyci ne	Clarythro mycine	Oxaze pam	Propranol ol	Sotalol	Metop rolol	Ateno lol	Xylazi ne	Silden file	Acetamino phen	Fenofibric acid	Salicylic acid	Ketoprofe n	Ibuprofen	Diclofenac		
		(‰ vs SMOW)															(ng/L)																			
CANABOU	09/09/2015	-5,11	0,18	-36,1	0,5	3	1	<LQ	<LQ	1	3	<LQ	11	1	8	2,3	2,2	7,7	2,3	8	1	238	1,1	144	2,2	<LQ	0,3									
CANABOU	10/11/2015	-6,01	0,02	-37,5	0,2	31	13	0,1	<LQ	8	<LQ	<LQ	71	<LQ	<LQ	6,5	<LQ	91,8	118,1	<LQ		604	15,3	205	28,0	14,2				<LQ	<LQ	<LQ	63,8	135		
CANABOU	20/11/2015	-6,12	0,05	-38,5	0,1	6	<LQ	<LQ	<LQ	3	2	<LQ	52	<LQ	18	2,6	3,6	8,6	6,1	11	12	222	2,8	113	5,6	3,2	<LQ			<LQ	<LQ	47,3	14,8	108		
CANABOU	27/11/2015	-5,97	0,39	-38,4	0,6	26	9	<LQ	<LQ	10	8	<LQ	77	<LQ	43	4,5	8,2	161,4	94,2	200		647	54,6	495	42,1	50,7				<LQ	<LQ	<LQ	73,5	185		
CANABOU	04/12/2015	-5,97	0,45	-38,6	0,7	38	5	0,0	<LQ	17	<LQ	<LQ	226	9	<LQ	8,0	8,8	26,5	83,9	185		665	20,5	413	37,7	28,6				<LQ	<LQ	<LQ	113,2	263		
CANABOU	11/12/2015					33	7	<LQ	<LQ	29	9	<LQ	318	<LQ	<LQ	6,2	10,4	83,7	48,9	295		690	41,2	550	53,6	39,4				3,1	<LQ	<LQ	101,0	260		
CANABOU	18/12/2015	-5,99	0,10	-38,6	0,1	32	4	0,1	<LQ	23	<LQ	<LQ	213	15	<LQ	7,2	5,7	63,6	33,2	<LQ		620	63,7	672	72,0	45,9				<LQ	<LQ	<LQ	164,8	230		
CANABOU	08/01/2016	-5,63	0,43	-37,2	0,7	24	5	<LQ	<LQ	19	<LQ	<LQ	70	<LQ	<LQ	8,1	<LQ	896,4	491,3	543		674	51,2	564	67,4	56,1				<LQ	<LQ	<LQ	138,4	201		
CANABOU	22/01/2016	-6,14	0,07	-39,3	0,1	60	42	0,5	<LQ	51	18	<LQ	76	<LQ	<LQ	24,3	34,6	1630,5	481,0	592		1067	263,8	1767	107,0	627,8				462,1	<LQ	<LQ	180,8	202		
CANABOU	05/02/2016	-6,10	0,06	-39,2	0,3																															
CANABOU	12/02/2016	-6,33	0,05	-40,6	0,2	10	5	<LQ	<LQ	17	2	<LQ	11	<LQ	18	2,9	5,8	30,7	11,7	32		226	3,9	208	2,3	22,2	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0	
CANABOU	04/03/2016	-7,07	0,06	-46,4	0,2	26	2	<LQ	<LQ	38	2	<LQ	38	<LQ	23	4,6	7,0	11,1	7,5	14	37	241	4,6	207	6,4	18,1	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	42	
CANABOU	18/03/2016	-6,79	0,06	-44,4	0,1	51	41	0,4	<LQ	47	9	<LQ	142	<LQ	136	12,1	14,3	1212,5	288,9	230		712	70,1	436	23,2	62,9				52,7	<LQ	<LQ	<LQ	124,5	193	
CANABOU	25/03/2016	-6,39	0,07	-42,4	0,1	7	1	<LQ	<LQ	12	4	<LQ	102	<LQ	46	4,2	6,7	197,9	24,2	83		473	9,8	286	7,9	50,6	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	11,2	27	
CANABOU	01/04/2016	-5,66	0,07	-37,0	0,1																										<LQ	<LQ	<LQ	6,9	55	
CANABOU	08/04/2016	-4,80	0,42	-33,0	0,7	6	<LQ	<LQ	<LQ	8	5	<LQ	57	<LQ	13	3,5	5,4	89,3	11,9	63		309	20,7	291	13,2	37,6	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	43	
CANABOU	10/04/2016					7	2	<LQ	<LQ	7	3	<LQ	72	<LQ	21	3,1	6,8	157,7	16,3	103		48	442	18,7	304	13,3	39,5	<LQ								
CANABOU	15/04/2016	-5,57	0,06	-36,3	0,2	8	2	<LQ	<LQ	4	12	7	172	2	25	7,4	5,5	279,9	28,0	130		28	436	25,2	400	11,4	153,7	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	31,0	30
CANABOU	22/04/2016					6	1	<LQ	<LQ	5	8	<LQ	95	0,4	14	4,0	3,2	106,8	12,6	57		23	321	12,1	343	11,7	31,4	<LQ								
CANABOU	29/04/2016	-5,42	0,16	-36,8	0,3	4	<LQ	<LQ	<LQ	11	29	<LQ	58	<LQ	14	3,3	4,9	154,9	15,3	56		26	378	20,9	380	14,6	42,3	<LQ								
CANABOU	06/05/2016	-5,52	0,21	-36,1	0,6	7	<LQ	<LQ	<LQ	8	11	<LQ	101	<LQ	13	6,7	4,9	104,0	12,5	62		9	404	12,5	419	11,9	25,7	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	51
CANABOU	13/05/2016	-6,38	0,39	-42,5	0,4	4	<LQ	<LQ	<LQ	3	1	<LQ	5	<LQ	4	3,4	1,1	4,9	1,0	<LQ		3	36	2,2	36	0,7	<LQ	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	17
CANABOU	21/05/2016	-5,09	0,05	-36,3	0,1	4	<LQ	<LQ	<LQ	3	4	<LQ	118	<LQ	29	3,4	4,0	114,9	28,0	89		10	540	8,0	279	8,2	21,1	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	43,0	44
CANABOU	27/05/2016					25	14	<LQ	<LQ	16	23	4	166	<LQ	12	7,6	8,5	75,6	43,6	52		198	16,7	455	27,3	21,2				2,5	<LQ	<LQ	<LQ	89,2	412	
CANABOU	10/06/2016	-4,96	0,38	-35,3	0,5																															
CANABOU	17/06/2016	-5,16	0,41	-35,6	0,4	6	<LQ	<LQ	<LQ	11	7	<LQ	12	1	11	2,1	2,2	26,2	14,4	<LQ		7	556	12,5	704	17,6	32,0	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	15,4	26
CANABOU	24/06/2016																																			
CANABOU	01/07/2016	-5,79	0,45	-36,8	0,8	6	2	<LQ	<LQ	4	<LQ	<LQ	35	<LQ	13	2,9	2,7	14,9	22,4	11		4	436	7,1	235	6,1	4,8	<LQ				24,2	<LQ	<LQ	<LQ	120
CANABOU	08/07/2016	-5,21	0,25	-36,0	0,6																															
CANABOU	15/07/2016	-5,01	0,39	-35,1	0,7																															
CANABOU	22/07/2016	-2,33	0,61	-14,1	0,9	31	28	<LQ	<LQ	25	22	<LQ	14	48	102	7,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ			714	6,9	782	15,8	71,7				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	10	
CANABOU	26/08/2016	-5,51	0,36	-36,8	0,5	278	144	0,0	6,1	250	24	<LQ	67	<LQ	48	<LQ	<LQ	69,1	139,0	<LQ		6	1012	28,6	816	17,1	51,8	<LQ	2,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	136,8	115	
CANABOU	26/08/2016					36	21	<LQ	<LQ	6	16	<LQ	90	<LQ	95	11,9	7,0	202,6	136,2	<LQ			1145	45,1	685	26,7	56,1									
CANABOU	02/09/2016	-6,22	0,32	-42,1	0,2																															
CANABOU	09/09/2016	-6,55	0,61	-44,3	0,9	34	11	1,4	2,5	<LQ	23	30	209	5	35	27,5	18,5	32,9	76,5	130		161	17,9	521	24,3	12,3					0,0	11,1	<LQ	205,5	376	
CANABOU	09/09/2016	-6,72	0,38	-44,9	1,1	6	2	<LQ	<LQ	3	7	<LQ	17	<LQ	10	2,7	6,1	17,9	14,3	65		28	407	9,4	301	5,5	18,9	<LQ				78,5	40,5	<LQ	<LQ	481
CANABOU	16/09/2016					17	9	0,3	<LQ	111	100	12	25	<LQ	<LQ	3,4	40,8	189,3	330,0	<LQ			52	6,9	97	16,8	35,4				79,7	<LQ	<LQ	273,1	222	
CANABOU	23/09/2016	-6,41	0,01	-41,2	0,2	5	6	<LQ	<LQ	2	7	<LQ	22	<LQ	9	2,6	1,9	14,6	35,5	48		23	301	9,8	430	9,0	37,2	<LQ				<LQ	14,9	<LQ	<LQ	70
CANABOU	30/09/2016	-6,75	0,52	-44,8	0,7	6	6	<LQ	<LQ	3	11	<LQ	42	2	13	2,8	4,3	24,2	49,6	101		16	428	9,0	434	13,7	31,0	<LQ				<LQ	4,0	<LQ	<LQ	74
CANABOU	07/10/2016					20	9	0,7	<LQ	<LQ	27	9	133	<LQ	12	13,5	21,4	31,4	49,6	100			132	33,1	730	72,4	36,5				9,4	<LQ	<LQ	154,1	308	
CANABOU	14/10/2016	-5,82	0,41	-36,9	0,8	3	<LQ	<LQ	<LQ	26	<LQ	<LQ	1	<LQ	3	1,8	0,2	6,0	1,2	7		<LQ	11	0,4	11	<LQ	0,2	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	4
CANABOU	21/10/2016	-5,56	0,14	-37,6	0,5	8	3	<LQ	<LQ	3	2	<LQ	29	<LQ	12	3,2	3,5	5,6	7,1	21		9	158	7,4	242	5,8	11,1	<LQ				<LQ	3,5	131,5	27,3	222
CANABOU	28/10/2016	-6,05	0,43	-41,2	0,8	6	6	<LQ	<LQ	4	7	<LQ	31	0,2	10	2,7	5,8	6,8	46,7	68		51	320	7,3	239	6,6	23,5	<LQ				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	141
CANABOU	16/11/2016					206	177	0,0	7,0	695	35	<LQ	86	<LQ	67	<LQ	29,9	95,6	143,0	194		21	1316	31,9	1151	20,9	134,7	<								

Samples	Date	$\delta^{18}\text{O}$	SD $\delta^{18}\text{O}$	$\delta^2\text{H}$	SD $\delta^2\text{H}$	Carbama zepine	10,11 Epoxy carbama ze	Flumeq uine	Warfa rine	Caffeine	Metfor min	Trimeth oprim	Sulfamet hoxazol	Cefale xine	Ciproflo xacine	Ofloxac ine	Erythro mycine (ng/L)	Azithro mycine	Roxithro mycine	Spiramyci ne	Clarythro mycine	Oxaze pam	Propranol ol	Sotalol	Metop rolol	Ateno lol	Xylazi ne	Silden file	Acetamino phen	Fenofibric acid	Salicylic acid	Ketoprofe n	Ibuprofen	Diclofenac	
		$\delta^{18}\text{O}$	SD $\delta^{18}\text{O}$	$\delta^2\text{H}$	SD $\delta^2\text{H}$																														
CANABOU 1	28/04/2017	-5,56	0,41	-33,9	0,8	222	159	<LQ	5,3	188	49	23	351	<LQ	61	<LQ	45,4	276,1	98,4	218	67	575	52,8	1055	19,1	147,7	<LQ	4,9	11,3	14,9	9,7	<LQ	<LQ	<LQ	333,6
CANABOU 1	09/05/2017	-6,10	0,49	-35,3	0,4	180	182	<LQ	4,0	189	41	28	269	<LQ	84	<LQ	46,2	234,4	82,2	384	173	691	77,9	1189	21,6	106,2	<LQ	10,7	<LQ	8,1	<LQ	<LQ	22,7	124,0	
CANABOU 1	18/05/2017	-5,32	0,04	-35,7	0,2	152	93	0,8	5,1	247	37	51	357	<LQ	50	<LQ	50,7	176,6	93,1	289	56	562	53,6	1129	21,3	87,2	<LQ	9,7	35,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	626,5	
CANABOU 1	02/06/2017	-5,72	0,46	-37,1	0,7	181	143	<LQ	3,2	170	31	11	122	<LQ	52	<LQ	37,6	115,0	36,5	119	45	461	48,3	1071	17,0	54,0	<LQ	6,6	<LQ	5,7	<LQ	<LQ	<LQ	115,4	
CANABOU 1	13/06/2017	-5,20	0,14	-36,1	0,2	151	65	<LQ	1,8	113	50	23	217	<LQ	59	<LQ	59,6	373,8	35,6	191	41	408	78,3	1471	31,0	157,7	<LQ	5,6	<LQ	<LQ	<LQ	10,6	<LQ	207,7	
CANABOU 1	27/06/2017	-5,71	0,04	-37,0	0,1	147	64	<LQ	2,3	56	26	11	156	<LQ	58	<LQ	96,0	96,0	23,5	138	25	445	130,7	1426	34,5	93,8	<LQ	9,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	10,1	
CANABOU 2	20/01/2017					96	25	<LQ	3	109	88	56	142	<LQ	82	71	50	557	<LQ	649	<LQ	<LQ	32	622	21	102	<LQ	6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	55,0	
CANABOU 2	27/01/2017					95	32	<LQ	2	102	75	27	47	<LQ	137	68	62	598	<LQ	531	<LQ	<LQ	30	573	18	102	<LQ	6	5						
CANABOU 2	03/02/2017					113	29	<LQ	2	69	55	47	109	<LQ	94	51	<LQ	536	<LQ	573	<LQ	<LQ	25	529	15	84	<LQ	4	<LQ						
CANABOU 2	09/02/2017					120	20	<LQ	1	42	47	35	115	<LQ	59	41	<LQ	503	<LQ	379	<LQ	<LQ	21	550	12	56	<LQ	4	<LQ						
CANABOU 2	17/02/2017					179	76	1	5	143	20	19	68	<LQ	107	<LQ	69	514	156	370	338	625	47	1274	13	185	94777	6	<LQ						
CANABOU 2	24/02/2017					203	88	3	8	543	28	13	144	<LQ	116	<LQ	58	677	192	350	331	636	60	1170	17	291	<LQ	8	<LQ						
CANABOU 2	03/03/2017					303	76	4	2	66	23	6	73	<LQ	87	20	34	649	86	400	98	156	56	1041	20	213	<LQ	0	<LQ						
CANABOU 2	10/03/2017					260	39	2	<LQ	62	19	10	76	<LQ	85	32	38	533	39	534	81	137	63	1132	16	152	<LQ	2	<LQ						
CANABOU 2	17/03/2017					286	52	2	<LQ	94	31	19	169	<LQ	123	39	58	946	43	625	58	207	64	<LQ	24	155	<LQ	1	<LQ						
CANABOU 2	24/03/2017					179	38	1	<LQ	435	108	25	145	<LQ	101	19	44	488	59	463	183	109	39	714	11	285	<LQ	3	14						
CANABOU 2	27/03/2017					87	31	<LQ	1	137	7	6	38	<LQ	41	<LQ	15	178	27	110	98	175	41	417	7	43	<LQ	3	<LQ						
CANABOU 2	31/03/2017					188	33	2	<LQ	48	29	17	94	<LQ	60	15	58	395	105	545	138	151	69	977	18	177	<LQ	2	<LQ						
CANABOU 2	07/04/2017					154	80	<LQ	6	136	35	13	176	<LQ	43	15	57	332	99	230	101	734	43	1162	14	145	<LQ	4	<LQ						
CANABOU 2	13/04/2017					155	91	<LQ	6	195	41	29	157	<LQ	46	<LQ	58	337	120	290	128	834	60	1237	15	138	<LQ	7	<LQ						
CANABOU 2	28/04/2017					195	99	<LQ	8	256	31	16	204	<LQ	57	<LQ	73	278	125	274	123	795	46	1314	19	125	<LQ	6	<LQ						
CANABOU 2	09/05/2017					176	174	<LQ	6	342	41	37	178	<LQ	65	<LQ	61	218	98	350	195	1030	63	1390	20	106	<LQ	18	33						
CANABOU 2	18/05/2017					129	118	<LQ	7	377	37	55	246	<LQ	68	<LQ	91	171	125	252	63	1397	106	1523	30	105	<LQ	16	25						
CANABOU 2	02/06/2017					146	121	<LQ	6	234	37	16	92	<LQ	54	<LQ	56	104	44	125	71	1100	78	1555	26	57	<LQ	15	<LQ						
CANABOU 2	13/06/2017					110	74	<LQ	3	181	46	25	137	<LQ	46	<LQ	116	412	61	202	65	994	163	1602	54	161	<LQ	10	2						
CANABOU 2	27/06/2017					202	159	<LQ	5	197	52	23	169	<LQ	44	<LQ	130	117	25	240	21	1224	99	1772	34	87	<LQ	11	<LQ						
CONF VISTRE CANABOU	09/09/2015					3	<LQ	<LQ	<LQ	3	3	<LQ	18	<LQ	5	2,5	0,9	3,0	2,6	<LQ	<LQ					<LQ	<LQ								
CONFLUENCE CANABOO VIST	16/11/2016					154	206	0,0	5,0	187	67	<LQ	44	<LQ	26	<LQ	8,8	17,8	39,5	165	498	576	46,8	515	15,0	73,6	<LQ	2,8	<LQ						
CUBELLE	25/08/2016	-8,94	0,06	-62,7	0,2	17	0,4	<LQ	<LQ	9	0,5	<LQ	36	<LQ	<LQ	3,2	0,4	<LQ	1,6	<LQ	<LQ	55	0,2	59	<LQ	<LQ									
CUBELLE	21/09/2016					79	6	3,5	<LQ	59	<LQ	4	117	<LQ	<LQ	5,4	4,4	38,2	21,9	13		24	12,1	144	18,7	5,3									
CUBELLE	27/10/2016	-8,97	0,07	-61,5	0,1	8	6	<LQ	<LQ	15	3	<LQ	<LQ	<LQ	8	8,4	2,5	5,1	1,6	33	12	63	1,8	50	0,2	1,9	<LQ								
CUBELLE	28/11/2016	-8,61	0,03	-59,7	0,0	20	1	<LQ	<LQ	53	1	<LQ	18	0,3	5	2,7	2,3	6,6	3,1	<LQ	6	105	2,2	121	<LQ	5,1	<LQ								
CUBELLE	05/01/2017	-8,99	0,11	-61,2	0,3	18	0,2	<LQ	<LQ	18	0,3	<LQ	5	<LQ	3	2,3	0,8	6,4	2,3	7	1	30	1,3	49	<LQ	1,3	<LQ								
CUBELLE 1	10/02/2017	-9,15	0,09	-62,6	0,1	86	13	<LQ	<LQ	70	40	18	27	<LQ	9	11,1	10,2	<LQ	5,8	103	6	82	15,0	246	1,7	28,3	<LQ	<LQ	8,2	<LQ	<LQ	85,8	13,4	153,9	
CUBELLE 1	09/03/2017	-8,47	0,05	-56,9	0,4	126	8	<LQ	<LQ	58	11	3	28	<LQ	33	4,4	3,5	0,3	1,3	<LQ	10	39	13,8	<LQ	1,8	34,7	<LQ	0,6	2,2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	225,1	
CUBELLE 1	12/04/2017	-8,32	0,11	-56,5	0,3	120	23	0,0	1,0	156	6	5	92	<LQ	11	<LQ	5,9	<LQ	<LQ	<LQ	4	96	11,9	272	2,4	17,4	<LQ	3,9	8,3	<LQ	<LQ	67,0	121,1		
CUBELLE 1	16/05/2017	-8,57	0,45	-60,5	0,4	119	8	0,0	0,0	39	7	4	91	<LQ	0	4,0	3,6	<LQ	4,4	<LQ	5	36	12,9	226	2,1	13,3	<LQ	<LQ	4,1	<LQ	<LQ	22,1	<LQ	140,7	
CUBELLE 1	26/06/2017					96	16	0,0	0,0	100	5	5	81	<LQ	10	0,0	2,7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	136	10,2	208	2,0	7,7	<LQ	<LQ	3,1	<LQ	<LQ				
CUBELLE 2	10/02/2017					78	13	0,0	0,1	65	29	22	24	<LQ	7	9,5	11,7	<LQ	6,6	135	7	130	13,0	217	1,5	26,9	0	<LQ	5,1						
CUBELLE 2	09/03/2017					136	12	0,0	0,0	70	10	2	30	<LQ	37	5,1	4,0	<LQ	1,0	<LQ	12	48	14,6	203	2,0	36,2	<LQ	<LQ	2,3						
CUBELLE 2	12/04/2017					158	22	<LQ	1,8	189	3	<LQ	74	<LQ	10	<LQ	6,6	<LQ	<LQ	<LQ	49	17	201	13,7	275	2,1	18,9	<LQ	<LQ	4,3					
CUBELLE 2	16/05/2017					114	10	<LQ	<LQ	45	4	4	62	<LQ	6	3,1	1,0	0,6	3,1	<LQ	3	31	10,1	193	1,4	11,9	<LQ	<LQ	<LQ						
CUBELLE 2	26/06/2017					129	20	0,3	1,1	196	6	6	103	<LQ	13	0,0	5,0	<LQ	<LQ	27	7	223	10,7	228	2,1	10,2	2	<LQ	17,4						
PER 79 SER+CUBELLE 1	16/12/2015					71	11	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	150	<LQ	<LQ	10,1	2,8	<LQ	8,7	<LQ	22	<LQ	82	2,2	1,2										
PER-17-E2 VISTRE 270317 1	27/03/2017					22	5	<LQ	<LQ	70	3	3	14	<LQ	6																				

Samples	Date	$\delta^{18}\text{O}$	SD $\delta^{18}\text{O}$ (‰ vs SMOW)	$\delta^2\text{H}$	SD $\delta^2\text{H}$	Carbamazepine	10,11-Epoxy carbamazepine		Flumequine	Warfarine	Caffeine	Metformin	Trimethoprim	Sulfamethoxazole	Cefalexine	Ciprofloxacin	Ofloxacin	Erythromycin (ng/L)	Azithromycin	Roxithromycin	Spiramycin	Clarithromycin	Oxazepam	Propranolol	Sotalol	Metoprolol	Atenolol	Xylazine	Sildenafil file	Acetaminophen	Fenofibric acid	Salicylic acid	Ketoprofen	Ibuprofen	Diclofenac
VASN	04/09/2015					21	10	<LQ	<LQ		2	10	<LQ	8	<LQ	<LQ	9,3	20,1	<LQ	12,2	<LQ		13	2,3	30	2,6	4,6				<LQ	<LQ	782,0	42,4	15,6
VASN	09/09/2015	-6,10	0,08	-38,9	0,2	28	11	<LQ	<LQ	9	<LQ	<LQ	23	<LQ	<LQ	6,4	22,1	<LQ	<LQ	88		20	3,5	32	2,3	5,2				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	17,9	
VASN	18/09/2015	-6,11	0,03	-37,8	0,2	27	9	<LQ	<LQ	16	<LQ	<LQ	11	4	<LQ	8,4	23,4	<LQ	<LQ	<LQ		8	3,5	24	2,3	<LQ				<LQ	<LQ	1404,7	84,1	34,9	
VASN	25/09/2015	-6,76	0,08	-43,4	0,1	26	9	2,0	<LQ	7	<LQ	<LQ	28	<LQ	<LQ	6,7	16,1	<LQ	25,0	67		11	5,2	24	2,5	3,3				<LQ	<LQ	554,3	36,0	18,8	
VASN	02/10/2015	-6,84	0,05	-44,5	0,1	24	9	<LQ	<LQ	16	<LQ	<LQ	17	<LQ	<LQ	8,7	44,3	<LQ	107,1	116		16	4,2	24	2,6	<LQ				3,1	<LQ	448,6	<LQ	29,5	
VASN	09/10/2015	-6,81	0,05	-44,4	0,1	22	9	1,8	<LQ	11	<LQ	<LQ	23	<LQ	<LQ	7,2	13,6	6,1	19,0	<LQ		17	3,2	33	2,2	3,1				1,3	<LQ	816,5	<LQ	30,6	
VASN	16/10/2015	-6,08	0,09	-37,3	0,4	17	8	<LQ	<LQ	22	<LQ	<LQ	11	4	<LQ	5,2	10,8	<LQ	12,7	<LQ		7	1,2	16	0,4	4,7				0,0	<LQ	605,7	<LQ	<LQ	
VASN	21/10/2015					16	7	2,5	<LQ	42	<LQ	<LQ	17	<LQ	<LQ	5,1	7,9	<LQ	5,0	33		4	3,4	19	1,1	5,1				1,2	<LQ	404,3	<LQ	19,3	
VASN	10/11/2015	-6,47	0,04	-39,7	0,2	16	6	2,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	19	<LQ	<LQ	9,8	5,9	7,2	2,0	20		8	3,0	29	0,4	5,7				<LQ	<LQ	241,3	<LQ	14,7	
VASN	20/11/2015	-6,64	0,07	-42,4	0,4	21	7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	21	<LQ	<LQ	7,3	14,8	<LQ	<LQ	63		21	1,8	22	1,2	3,8				<LQ	<LQ	483,1	<LQ	4,7	
VASN	25/11/2015	-6,63	0,04	-43,1	0,1	18	6	2,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	25	<LQ	<LQ	6,2	9,0	5,4	13,9	104		14	2,5	25	1,2	3,9				<LQ	<LQ	243,9	<LQ	24,6	
VASN	04/12/2015	-6,78	0,05	-43,9	0,1	72	11	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	40	<LQ	<LQ	11,6	9,9	12,7	21,7	72		18	6,1	53	28	6,1				<LQ	<LQ			48,9	
VASN	11/12/2015	-6,84	0,04	-44,5	0,0	21	14	<LQ	<LQ	12	<LQ	<LQ	24	<LQ	<LQ	7,8	7,9	6,2	5,3	23		17	8,5	31	5,6	6,6				2,7	<LQ	175,0	15,6	46,5	
VASN	16/12/2015	-6,86	0,08	-44,6	0,1	19	10	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	21	<LQ	<LQ	5,9	12,4	21,2	8,8	57		14	4,8	40	3,1	5,2				<LQ	<LQ			30,1	
VASN	15/01/2016	-6,90	0,02	-45,2	0,1	25	15	<LQ	<LQ	6	<LQ	<LQ	24	<LQ	<LQ	7,2	22,0	32,4	54,5	140		19	8,3	23	5,4	5,0				4,9	<LQ	351,3	<LQ	37,4	
VASN	10/03/2016	-6,82	0,06	-44,4	0,4	19	11	<LQ	<LQ	8	<LQ	<LQ	12	8	<LQ	5,8	10,1	<LQ	9,9	26		13	7,1	49	3,1	8,2				1,9	<LQ	346,9	26,2	19,1	
VASN	18/03/2016	-7,14	0,05	-46,7	0,1	15	7	2,3	<LQ	14	<LQ	<LQ	20	17	<LQ	11,8	18,4	58,3	83,8	<LQ		17	10,4	27	6,1	7,0				<LQ	<LQ			19,2	
VASN	25/03/2016	-6,67	0,06	-43,6	0,2	20	10	2,0	<LQ	82	<LQ	<LQ	20	18	<LQ	7,4	12,2	<LQ	17,3	44		29	8,7	50	7,9	14,8				3,5	<LQ	437,0	<LQ	11,8	
VASN	01/04/2016	-6,61	0,03	-42,8	0,2	16	12	<LQ	<LQ	34	<LQ	<LQ	20	48	<LQ	17,8	26,8	168,1	63,4	137		41	19,6	59	14,1	13,0				6,3	<LQ	415,0	<LQ	39,0	
VASN	08/04/2016	-6,37	0,05	-41,0	0,2	17	9	2,5	<LQ	20	<LQ	<LQ	17	14	<LQ	6,4	10,5	<LQ	14,7	48		22	5,7	41	3,6	12,3				4,0	<LQ	642,1	<LQ	30,7	
VASN	15/04/2016	-6,61	0,04	-43,1	0,1	19	10	<LQ	<LQ	51	<LQ	<LQ	10	13	<LQ	7,6	9,2	22,8	14,3	49		20	9,0	35	4,3	11,8				<LQ	<LQ	435,1	42,9	29,1	
VASN	22/04/2016	-6,68	0,07	-43,6	0,1	20	8	<LQ	<LQ	39	<LQ	<LQ	26	40	<LQ	6,0	10,1	3,0	15,3	44		17	8,8	34	5,6	11,5				4,2	<LQ	345,8	<LQ	34,8	
VASN	29/04/2016	-6,56	0,06	-43,5	0,1	18	8	<LQ	<LQ	35	<LQ	<LQ	58	15	<LQ	9,7	12,4	12,4	12,8	84		28	7,5	57	8,3	11,9				3,2	<LQ	484,2	<LQ	8,7	
VASN	04/05/2016	-6,56	0,02	-43,7	0,1	11	6	<LQ	<LQ	40	<LQ	<LQ	32	8	<LQ	5,6	12,6	13,5	10,8	31		19	6,0	29	4,0	9,9				<LQ	<LQ	523,9	46,2	24,6	
VASN	13/05/2016	-6,92	0,04	-46,0	0,1	15	10	<LQ	<LQ	16	<LQ	<LQ	24	18	10	7,0	22,0	12,4	26,3	66		23	11,7	39	6,7	8,8				2,5	<LQ	745,6	130,3	32,6	
VASN	20/05/2016	-6,82	0,05	-45,3	0,2	22	8	2,0	<LQ	50	<LQ	<LQ	18	12	7	6,0	14,6	<LQ	16,1	54		28	14,2	58	9,5	20,9				<LQ	<LQ	364,0	27,4	22,3	
VASN	27/05/2016	-6,78	0,04	-44,9	0,2	22	8	<LQ	<LQ	26	<LQ	<LQ	25	8	13	7,3	31,2	21,3	36,5	<LQ		31	13,6	74	8,7	27,0				<LQ	<LQ	891,3	70,2	22,7	
VASN	03/06/2016	-6,96	0,03	-45,9	0,1	25	10	<LQ	<LQ	58	<LQ	<LQ	15	9	5	5,5	41,6	14,8	84,8	196		28	9,1	39	5,7	10,0				<LQ	<LQ	741,8	66,0	27,2	
VASN	10/06/2016	-6,91	0,06	-46,3	0,1	18	9	2,3	<LQ	28	<LQ	<LQ	42	<LQ	13	7,8	26,1	3,0	55,6	<LQ		55	18,1	79	19,1	18,4				<LQ	<LQ			26,1	
VASN	17/06/2016	-6,24	0,02	-41,0	0,1	17	10	<LQ	<LQ	75	<LQ	<LQ	16	<LQ	5	6,1	54,0	63,5	63,3	257		41	11,6	73	7,8	18,5				0,9	<LQ	614,9	13,9	18,0	
VASN	24/06/2016	-7,12	0,04	-48,0	0,1	23	10	<LQ	<LQ	15	<LQ	<LQ	35	<LQ	<LQ	7,8	5,1	8,1	9,0	36		170	<LQ	41	7,7	4,1				2,8	<LQ	<LQ	128,4	123,9	
VASN	01/07/2016	-7,27	0,06	-48,6	0,2	8	<LQ	<LQ	<LQ	16	1	<LQ	15	<LQ	5	5,8	0,9	<LQ	2,2	10	<LQ	2		85	0,3	45	0,4	<LQ	<LQ		<LQ	5,3	23,0	<LQ	2,9
VASN	15/07/2016	-7,33	0,04	-49,8	0,1	7	1	<LQ	<LQ	15	1	<LQ	35	<LQ	5	2,9	1,0	<LQ	2,7	<LQ		2	133	0,4	34	0,2	<LQ	<LQ		<LQ	<LQ	20,0	<LQ	11,3	
VASN	22/07/2016	-5,79	0,05	-37,3	0,2	13	8	2,1	<LQ	129	18	<LQ	20	<LQ	<LQ	7,0	<LQ	<LQ	112,0	<LQ		155	11,6	205	75,3	24,2				46,7	<LQ	<LQ	<LQ	312,3	<LQ
VASN	25/07/2016	-7,06	0,03	-48,2	0,1	32	14	<LQ	<LQ	58	<LQ	<LQ	20	<LQ	<LQ	11,2	1,3	<LQ	22,2	<LQ		300	6,8	43	33,5	7,1				<LQ	<LQ	<LQ	121,8	60,4	
VASN	05/09/2016	-7,76	0,07	-53,5	0,3	5	1	<LQ	<LQ	6	2	<LQ	15	<LQ	18	6,8	3,8	<LQ	1,6	<LQ	<LQ	<LQ	147	0,8	38	0,4	0,2	<LQ		<LQ		7,1	<LQ	<LQ	39,7
VASN	09/09/2016	-8,50	0,26	-60,9	0,1	4	1	<LQ	<LQ	3	0,4	<LQ	13	<LQ	5	2,1	2,6	<LQ	1,2	<LQ	<LQ	<LQ	118	0,6	31	0,2	<LQ	<LQ		<LQ					
VASN	16/09/2016	-6,83	0,04	-42,9	0,4	15	8	1,7	<LQ	112	<LQ	11	9	<LQ	<LQ	9,6	7,3	142,5	25,1	<LQ		9	1,2	8	1,7	2,7				<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VASN	16/09/2016					2	1	<LQ	<LQ	53	1	<LQ	2	<LQ	4	3,3	0,4	4,0	1,5	<LQ	<LQ	1	38	0,8	19	<LQ	0,3	<LQ		<LQ	48,0	<LQ	<LQ	93,0	385,2
VASN	23/09/2016	-7,43	0,02	-48,3	0,1	7	9	<LQ	<LQ	12	3	<LQ	10	<LQ	<LQ	2,5	0,8	<LQ	4,0	<LQ	<LQ	4	63	0,8	26	<LQ	0,9	<LQ		<LQ	<LQ	<LQ	4,5	32,4	
VASN	30/09/2016	-7,46	0,15	-49,4	0,8	7	1	<LQ	<LQ	13	2	<LQ	15	0,4	3	2,7	7,2	<LQ	4,3	7	2	52	1,1	55	0,5	1,9	<LQ				<LQ	<LQ	22,5	<LQ	41,7
VASN	07/10/2016	-6,46	0,64	-43,3	1,3	24	14	1,3	<LQ	166	7	8	10	0,2	<LQ	2,0	5,5	<LQ	9,2	<LQ		18	1,7	50	2,3	14,7				<LQ	<LQ	<LQ	188,0	183,8	
VASN	21/10/2016	-5,32	0,36	-34,4	0,4	1	<LQ	<LQ	<LQ	27	1																								

Samples	Date	$\delta^{18}\text{O}$	SD $\delta^{18}\text{O}$ (‰ vs SMOW)	$\delta^2\text{H}$	SD $\delta^2\text{H}$	Carbama zepine	10,11 Epoxy carbama ze	Flumeq uine	Warfa rine	Caffeine	Metfor min	Trimeth oprim	Sulfamet hoxazol	Cefale xine	Ciproflo xacine	Ofloxac ine	Erythro mycine (ng/L)	Azithro mycine	Roxithro mycine	Spiramyc ine	Clarythro mycine	Oxaze pam	Propranol ol	Sotalol	Metop rolol	Ateno lol	Xylazi ne	Silden file	Acetamino phen	Fenofibric acid	Salicylic acid	Ketoprofe n	Ibuprofen	Diclofenac		
VASN 2	03/02/2017					19	2	<LQ	<LQ	64	8	5	16	<LQ	4	8,1	6,6	9,3	13,1	102	24	20	3,3	47	1,3	5,5	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	10/02/2017					20	2	<LQ	<LQ	75	10	3	11	<LQ	3	7,2	6,3	13,0	9,2	122	24	21	2,3	39	0,9	3,4	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	17/02/2017					30	7	<LQ	<LQ	117	5	<LQ	15	<LQ	7	<LQ	2,6	6,0	8,4	<LQ	12	91	9,0	60	3,4	8,0	<LQ	<LQ	2,4							
VASN 2	24/02/2017					29	5	<LQ	<LQ	97	7	5	22	<LQ	8	<LQ	3,3	3,1	8,9	<LQ	14	42	6,4	58	3,0	13,0	<LQ	0,6	<LQ							
VASN 2	03/03/2017					37	9	<LQ	<LQ	148	10	<LQ	16	<LQ	5	<LQ	2,5	1,6	0,5	<LQ	3	55	3,9	60	2,7	9,2	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	09/03/2017					26	13	<LQ	<LQ	184	5	1	10	<LQ	7	<LQ	3,2	3,2	7,9	29	33	69	7,3	61	2,8	11,4	<LQ	1,2	2,3							
VASN 2	17/03/2017					36	12	<LQ	<LQ	323	5	<LQ	11	<LQ	5	<LQ	4,6	2,3	4,4	24	19	135	9,4	76	4,0	14,8	<LQ	<LQ	2,0							
VASN 2	31/03/2017					20	4	<LQ	<LQ	397	7	5	10	<LQ	4	<LQ	2,5	4,7	1,3	<LQ	6	30	5,1	41	3,5	16,9	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	07/04/2017					19	8	0,0	<LQ	144	6	4	8	<LQ	<LQ	<LQ	1,6	3,9	2,3	<LQ	15	42	4,7	34	2,2	8,9	<LQ	1,0	2,6							
VASN 2	13/04/2017					30	10	<LQ	<LQ	167	16	3	8	<LQ	4	<LQ	3,5	5,4	5,4	<LQ	28	106	8,9	66	3,2	17,1	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	28/04/2017					32	13	<LQ	<LQ	255	4	4	10	<LQ	0	<LQ	3,0	2,4	3,6	<LQ	8	77	7,2	56	2,8	8,8	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	09/05/2017					31	14	<LQ	<LQ	160	21	3	9	<LQ	4	<LQ	4,2	2,4	4,6	<LQ	7	64	7,9	61	2,8	16,7	<LQ	1,0	<LQ							
VASN 2	16/05/2017					26	8	0,9	<LQ	307	7	3	9	<LQ	<LQ	<LQ	2,9	1,4	5,9	<LQ	65	97	6,2	62	3,3	8,7	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	02/06/2017					54	17	0,0	0,3	358	11	5	16	<LQ	<LQ	<LQ	5,2	<LQ	8,0	<LQ	6	240	9,6	98	3,7	9,7	<LQ	<LQ	<LQ							
VASN 2	13/06/2017					55	15	0,6	0,2	141	8	6	15	<LQ	6	<LQ	3,7	<LQ	7,2	14	8	224	10,5	79	4,1	8,1	<LQ	<LQ	2,3							
VASN 2	26/06/2017					61	11	<LQ	<LQ	207	11	8	23	<LQ	10	<LQ	1,8	<LQ	0,9	<LQ	2	92	4,5	67	2,6	6,2	<LQ	<LQ	30,7							
VISTRE 1	18/05/2017	-6,64	0,00	-41,5	0,1	72	19	<LQ	<LQ	101	9	4	25	<LQ	29	<LQ	3,7	<LQ	4,2	<LQ	9	83	22,3	152	3,8	3,3	<LQ	3,1	3,3							
VISTRE 2	18/05/2017					77	30	<LQ	0,2	128	11	4	17	<LQ	23	<LQ	4,2	<LQ	5,7	<LQ	16	147	25,6	135	3,7	4,1	<LQ	2,6	26,0							
VISTRE ANNE	09/09/2015	4,21	0,70	-22,9	1,8	5	1	<LQ	<LQ	12	7	<LQ	<LQ	0,3	4	3,4	1,2	<LQ	1,5	<LQ	<LQ	2	77	3,0	68	0,3	<LQ	<LQ			1,3	<LQ	24,6	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE	25/09/2015	-6,87	0,05	-43,6	0,1	5	0,5	<LQ	<LQ	1	1	<LQ	<LQ	18	0,1	4	3,1	0,8	2,4	2,4	8	2	34	0,5	18	0,6	<LQ	<LQ			0,6	0,9	123,4	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE	20/11/2015	-5,89	0,71	-40,7	1,5	19	13	0,1	<LQ	18	<LQ	<LQ	29	<LQ	66	5,4	1,3	<LQ	2,5	<LQ	53	6,6	22	2,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	192,7	
VISTRE ANNE	27/11/2015	-6,20	0,69	-41,9	1,7	21	10	0,4	<LQ	14	<LQ	<LQ	38	<LQ	44	3,1	5,1	25,0	11,1	123	51	5,8	12	1,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	108,0	
VISTRE ANNE	04/12/2015	-5,43	0,36	-40,3	1,0	21	10	0,1	<LQ	8	<LQ	<LQ	50	<LQ	83	6,5	3,2	<LQ	4,4	154	96	4,7	23	1,1	1,8	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	183,2	
VISTRE ANNE	11/12/2015	-6,17	0,62	-40,1	0,9	26	48	0,3	<LQ	16	<LQ	<LQ	80	<LQ	162	11,2	6,1	32,7	16,6	393	196	20,9	74	10,8	1,5	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	<LQ	22,9	231,8	
VISTRE ANNE	18/12/2015	-6,43	0,36	-41,0	0,5	61	49	0,1	<LQ	16	<LQ	<LQ	38	<LQ	208	8,6	3,6	18,7	47,4	161	228	17,6	69	7,0	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	<LQ	12,3	273,9		
VISTRE ANNE	08/01/2016	-5,95	0,39	-41,2	1,0	29	62	0,2	<LQ	21	<LQ	<LQ	71	<LQ	75	11,9	5,9	23,9	18,5	146	171	14,4	48	6,1	<LQ	<LQ	<LQ			2,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	244,0	
VISTRE ANNE	22/01/2016	-6,53	0,11	-40,6	0,3	24	51	0,6	<LQ	15	<LQ	<LQ	82	<LQ	181	15,1	5,8	23,6	63,4	547	173	19,4	99	7,7	<LQ	<LQ	<LQ			16,6	<LQ	<LQ	<LQ	37,4	327,9	
VISTRE ANNE	05/02/2016	-6,22	0,47	-40,6	0,8	4	0,3	<LQ	<LQ	5	0,3	<LQ	3	<LQ	4	2,6	0,3	<LQ	2,1	<LQ	7	21	0,5	21	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ			0,9	<LQ	10,6	7,1	39,1	
VISTRE ANNE	12/02/2016	-5,57	0,70	-37,4	1,1	5	1	<LQ	<LQ	2	0,3	<LQ	12	<LQ	6	2,6	2,2	4,1	2,6	12	15	38	1,1	4,2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	16,5	37,1	<LQ	78,7	
VISTRE ANNE	04/03/2016	-6,33	0,48	-41,2	0,2	5	2	<LQ	<LQ	7	0,3	<LQ	3	<LQ	4	2,5	4,0	3,7	1,3	<LQ	26	21	0,3	23	<LQ	<LQ	<LQ			1,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE	18/03/2016	-6,76	0,69	-44,4	0,9	2	<LQ	<LQ	<LQ	5	0,3	<LQ	4	<LQ	4	3,0	0,8	4,5	1,3	12	2	11	0,5	13	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	47,6	<LQ	<LQ		
VISTRE ANNE	25/03/2016	-6,14	0,41	-40,4	0,6	5	<LQ	<LQ	<LQ	3	0,3	<LQ	7	<LQ	3	3,0	0,8	3,7	1,1	10	1	23	0,1	23	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	26,1	<LQ	16,1		
VISTRE ANNE	30/03/2016	-6,76	0,04	-40,4	0,2																															
VISTRE ANNE	01/04/2016	-6,39	0,30	-40,6	0,8	3	<LQ	<LQ	<LQ	7	0,3	<LQ	0,3	<LQ	3	2,3	0,6	3,7	1,1	11	3	12	0,3	10	<LQ	<LQ	<LQ			0,9	2,8	25,0	<LQ	<LQ		
VISTRE ANNE	08/04/2016	-6,36	0,03	-40,5	0,7	2	<LQ	<LQ	<LQ	2	<LQ	<LQ	18	<LQ	4	2,9	2,5	4,1	3,0	<LQ	2	17	0,8	18	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	239,3	<LQ	<LQ		
VISTRE ANNE	15/04/2016	-6,01	0,42	-39,8	0,8	2	<LQ	2,0	<LQ	2	<LQ	<LQ	27	<LQ	3	4,7	3,0	3,1	2,8	11	3	26	1,2	21	1,2	<LQ	0,3	<LQ			<LQ	<LQ	48,7	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE	22/04/2016					2	<LQ	<LQ	<LQ	6	0,3	<LQ	13	<LQ	3	2,4	0,6	4,0	1,5	<LQ	2	19	0,5	18	<LQ	<LQ	<LQ									
VISTRE ANNE	29/04/2016	-6,40	0,13	-40,4	0,4	2	<LQ	<LQ	<LQ	6	1	<LQ	7	<LQ	4	3,3	1,2	4,5	1,3	<LQ	1	18	1,5	9	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	69,7	<LQ	<LQ		
VISTRE ANNE	06/05/2016	-6,49	0,03	-40,6	0,1	2	<LQ	<LQ	<LQ	7	1	<LQ	4	<LQ	6	4,6	0,8	7,9	<LQ	11	<LQ	34	1,2	21	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	172,0	11,9	<LQ		
VISTRE ANNE	13/05/2016	-5,63	0,04	-37,5	0,1	1	<LQ	<LQ	<LQ	4	7	<LQ	144	<LQ	10	3,4	2,6	66,5	10,9	41	9	411	13,7	308	11,9	19,5	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	1232,9	<LQ	<LQ
VISTRE ANNE	21/05/2016	-5,62	0,38	-38,5	0,6	6	2	<LQ	<LQ	11	1	<LQ	14	1	5	2,6	2,0	4,6	4,1	<LQ	4	102	2,2	70	1,6	<LQ	<LQ			2,6	<LQ	19,1	<LQ	178,1		
VISTRE ANNE	27/05/2016	-5,87	0,20	-39,5	0,3	3	<LQ	<LQ	<LQ	1	0	<LQ	18	<LQ	4	2,4	1,5	<LQ	3,2	8	0,4	64	2,3	47	0,0	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	<LQ	157,2	<LQ	21,8	
VISTRE ANNE	17/06/2016	-5,93	0,54	-38,0	0,9	4	1	<LQ	<LQ	8	<LQ	<LQ	2	<LQ	5	2,4	2,5	<LQ	1,6	5	3	50	1,2	27	<LQ	<LQ	<LQ			<LQ	4,2	17,4	<LQ	14,0		
VISTRE ANNE	01/07/2016	-6,21	0,60	-39,2	0,7	7	0	<LQ	<LQ	1	0	<LQ	13	<LQ																						

Samples	Date	δ ¹⁸ O	SD δ ¹⁸ O	δ ² H	SD δ ² H	10,11		Carbama zepine	Epoxy carbamaze	Flumeq uine	Warfa rine	Caffeine	Metfor min	Trimeth oprim	Sulfamet hoxazol	Cefale xine	Ciproflo xacine	Ofloxac ine	Erythro mycine	Azithro mycine	Roxithro mycine	Spiramyci ne	Clarythro mycine	Oxaze pam	Propranol ol	Sotalol	Metop rolol	Ateno lol	Xylazi ne	Sildena file	Acetamino phen	Fenofibric acid	Salicylic acid	Ketoprofe n	Ibuprofen	Diclofenac	
						(‰ vs SMOW)																															
VISTRE ANNE 1	24/03/2017	-6,36	0,85	-41,1	0,9			93	27	<LQ	<LQ	350	32	13	92	<LQ	56	3,7	23,8	4,0	<LQ	207	46	70	59,9	194	4,2	90,4	<LQ	1,1	<LQ	200,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1881,3
VISTRE ANNE 1	31/03/2017	-6,36	0,36	-41,2	1,1	26	2	<LQ	<LQ	4	1	1	10	<LQ	6	2,4	0,4	5,5	<LQ	18	2	7	10,5	20	1,1	1,6	<LQ	0,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	104,7
VISTRE ANNE 1	07/04/2017	-6,42	0,05	-41,3	0,2	33	5	<LQ	<LQ	<LQ	21	2	4	7	<LQ	9	<LQ	2,8	1,9	<LQ	<LQ	<LQ	18	8,7	37	2,3	3,5	<LQ	0,7	4,6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	47,8	66,3
VISTRE ANNE 1	13/04/2017	-6,54	0,02	-42,1	0,6	40	9	0,04	<LQ	<LQ	24	2	4	12	<LQ	9	<LQ	2,4	3,3	<LQ	<LQ	<LQ	25	17,7	51	2,5	3,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	118,0
VISTRE ANNE 1	28/04/2017	-6,11	0,03	-38,8	0,1	42	12	0,04	<LQ	<LQ	33	3	4	37	<LQ	11	<LQ	2,3	1,5	2,3	<LQ	1	42	11,3	90	3,4	4,6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,6	<LQ	<LQ	<LQ	83,3	145,9
VISTRE ANNE 1	09/05/2017	-6,34	0,07	-40,5	0,2	42	16	0,4	<LQ	<LQ	64	3	6	14	<LQ	11	<LQ	4,0	10,5	9,7	<LQ	14	43	15,7	77	2,6	4,8	2	6,5	<LQ	1,5	<LQ	<LQ	<LQ	46,1	139,1	
VISTRE ANNE 1	02/06/2017	-6,75	0,06	-42,7	0,2	80	29	0,3	0,2	248	4	3	30	<LQ	31	<LQ	7,2	<LQ	0,0	<LQ	6	117	21,8	211	3,5	3,8	<LQ	2,4	7,7	2,7	<LQ	<LQ	<LQ	40,2	142,1		
VISTRE ANNE 1	13/06/2017	-6,31	0,05	-39,1	0,2	103	42	0,3	0,8	114	7	8	31	<LQ	77	<LQ	18,1	<LQ	11,8	<LQ	8	218	27,9	472	5,1	3,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	8,9	<LQ	<LQ	<LQ	32,5	164,4	
VISTRE ANNE 1	27/06/2017	-6,58	0,06	-41,0	0,2	16	2	0,1	<LQ	<LQ	15	1	2	2	<LQ	6	2,0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2	9	4,3	<LQ	0,6	<LQ	<LQ	0,7	4,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	60,4	
VISTRE ANNE 2	20/01/2017					40	11	<LQ	<LQ	<LQ	232	116	4	32	<LQ	11	7,6	4,4	50,2	5,1	288	94	29	27,9	109	8,1	81,9	<LQ	1,0	5,3	<LQ	<LQ	294,3	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	27/01/2017					19	4	<LQ	<LQ	<LQ	447	24	5	3	<LQ	<LQ	4,6	4,0	10,1	2,4	151	33	27	8,3	40	1,0	6,9	<LQ	0,9	2,8							
VISTRE ANNE 2	03/02/2017					31	7	<LQ	<LQ	<LQ	19	12	5	7	<LQ	7	5,4	7,2	7,2	5,5	170	69	56	12,0	98	1,8	7,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	09/02/2017					27	4	<LQ	<LQ	<LQ	23	8	2	10	<LQ	3	3,4	<LQ	4,2	2,2	39	8	12	6,8	35	1,3	3,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	17/02/2017					113	8	<LQ	<LQ	<LQ	11	2	2	19	<LQ	7	5,3	12,7	4,0	2,1	45	19	16	13,4	<LQ	2,0	7,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	24/02/2017					49	12	<LQ	<LQ	<LQ	17	1	1	29	<LQ	237	3,8	0,1	0,8	0,1	15	5	16	6,5	56	1,2	4,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	03/03/2017					48	5	<LQ	<LQ	<LQ	16	2	1	31	<LQ	6	5,2	3,8	4,4	0,1	57	7	14	12,1	88	1,8	6,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,3					
VISTRE ANNE 2	10/03/2017					44	6	<LQ	<LQ	<LQ	21	1	1	20	<LQ	7	4,3	3,4	2,7	1,1	40	4	13	15,5	73	1,7	6,9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	17/03/2017					56	11	<LQ	<LQ	<LQ	10	3	4	19	<LQ	10	3,8	6,2	1,4	1,0	67	6	18	17,2	84	2,6	9,1	<LQ	1,0	<LQ							
VISTRE ANNE 2	24/03/2017					113	20	<LQ	<LQ	<LQ	205	31	11	110	<LQ	57	5,2	19,2	8,5	0,0	224	31	36	47,3	<LQ	3,9	78,8	<LQ	0,8	<LQ							
VISTRE ANNE 2	31/03/2017					26	3	<LQ	<LQ	<LQ	8	1	1	7	<LQ	4	2,4	<LQ	1,4	<LQ	18	0	10	4,3	22	0,5	1,6	<LQ	0,5	<LQ							
VISTRE ANNE 2	07/04/2017					35	12	0,2	<LQ	<LQ	76	2	3	4	<LQ	5	<LQ	2,7	1,0	0,4	<LQ	4	66	11,1	34	1,7	3,3	<LQ	<LQ	<LQ	3,7						
VISTRE ANNE 2	13/04/2017					53	24	0,2	<LQ	<LQ	76	2	5	6	<LQ	10	<LQ	3,1	2,7	0,1	<LQ	5	114	24,5	67	1,8	2,8	<LQ	1,5	1,7							
VISTRE ANNE 2	28/04/2017					58	28	0,0	0,5	121	2	1	30	<LQ	10	<LQ	4,5	2,2	8,5	<LQ	16	177	19,7	125	2,6	6,4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE ANNE 2	09/05/2017					51	28	0,3	<LQ	<LQ	136	3	5	8	<LQ	8	<LQ	4,1	9,2	13,8	<LQ	28	133	22,0	89	3,0	4,2	1	10,5	3,7							
VISTRE ANNE 2	02/06/2017					89	59	<LQ	0,7	354	4	8	25	<LQ	29	<LQ	10,5	<LQ	1,4	<LQ	17	242	21,8	283	3,4	4,1	<LQ	1,2	6,8								
VISTRE ANNE 2	13/06/2017					130	84	<LQ	2,1	190	8	7	23	<LQ	65	<LQ	32,9	<LQ	16,6	<LQ	20	438	21,2	454	4,2	4,3	<LQ	4,5	<LQ								
VISTRE ANNE 2	27/06/2017					17	1	<LQ	<LQ	<LQ	5	1	2	2	<LQ	3	2,3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1	7	8,1	24	0,9	<LQ	<LQ	<LQ	3,8							
VISTRE CANDIAC 161116 1	16/11/2016					211	77	1,9	3,2	103	14	<LQ	71	<LQ	52	<LQ	12,8	20,8	30,6	79	140	554	29,4	282	10,4	16,9	<LQ	4,8	<LQ								
VISTRE CANDIAC 161116 2	16/11/2016					176	60	1,3	3,4	78	8	<LQ	61	<LQ	50	<LQ	13,3	17,9	35,7	92	61	539	22,1	251	8,1	18,8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	
VISTRE CANDIAC AVAL REJET 1	16/11/2016					5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	29	<LQ	<LQ	2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	1,3	<LQ	<LQ	55	17	1,3	2	1,5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,7						
VISTRE CANDIAC AVAL REJET 1	16/11/2016					5	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	28	<LQ	<LQ	3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2,4	<LQ	<LQ	63	22	1,1	2	1,1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	3,9						
VISTRE CLOS 1	18/12/2015	-7,12	0,19	-48,3	0,2	12	2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	2	<LQ	16	<LQ	7	5,2	0,4	33,9	4,0	3	0	166	2,5	71	4,3	7,1	<LQ									
VISTRE LE CAILAR 161116 1	16/11/2016					109	36	1,2	1,2	37	8	<LQ	42	<LQ	52	<LQ	11,2	8,8	26,4	<LQ	45	250	25,0	276	8,0	16,3	<LQ	2,7	<LQ								
VISTRE LE CAILAR 161116 2	16/11/2016					175	66	1,6	1,8	81	8	<LQ	42	<LQ	61	<LQ	15,3	7,1	36,2	<LQ	64	464	25,1	268	9,7	19,6	<LQ	3,8	<LQ								
VISTRE LE MOULIN 161116 1	16/11/2016					230	108	3,3	3,6	30	7	<LQ	82	2	86	<LQ	13,2	187,1	62,7	102	80	927	60,5	398	14,9	38,2	<LQ	5,3	<LQ								
VISTRE LE MOULIN 161116 2	16/11/2016					209	90	3,5	3,2	32	6	<LQ	72	0	79	<LQ	11,8	163,6	58,9	145	53	833	63,6	363	14,4	51,8	<LQ	5,6	<LQ								

Annexe 3 : Concentration en COEs et isotopes de l'eau des eaux souterraines des clusters

Sample s	Date	δ ¹⁸ O	SD-δ ¹⁸ O	δ ² H	SD-δ ² H	Carbam azépine	Epox carbazé	Flumeq urine	Warfar ine	Caféine	Méform ine	Trimeth oprim	Sulfamé thiazol	Céféso ne	Ciprofo lavacine (ng/L)	Ofloxaci ne	Erythro mycine	Azithro mycine	Roxithro mycine	Spiram yline	Clarith romycine	Oxazap am	Propran olol	Sotalol	Métoprol ol	Aténolol	Xylazine	Sildenafil	Acetam inophen e	Acet fenorol	Acet salicyliq ue	Kétoprof en	Ibuprofe n	Diclofen ac	
6462	GW	25072016	-8.16	0.06	-55.6	0.1	42.4	<LQ	<LQ	56.9	<LQ	<LQ	0.5	0.7	<LQ	0.9	<LQ	12	0.9	<LQ	<LQ	0.7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	5.0	0.0	
6462	GW	25092016	-8.39	0.07	-56.3	0.1	39.8	<LQ	<LQ	85.0	<LQ	<LQ	0.7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	9.9	<LQ	0.1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
6462	GW	21092016	-8.56	0.08	-57.6	0.5	38.2	<LQ	<LQ	13.5	<LQ	<LQ	0.7	<LQ	<LQ	0.9	0.6	<LQ	0.2	24.6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				2.5	0.0	0.0	7.0	0.0	
6462	GW	27102016	-8.08	0.07	-55.5	0.4	60.9	17.4	<LQ	11.1	<LQ	<LQ	1.1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0.8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	8.3	0.0	5.1	
6462	GW	28112016	-8.09	0.11	-55.8	0.5	25.30	<LQ	<LQ	1.93	<LQ	<LQ	0.49	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0.62	0.60	0.31	0.19	0.19	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				2.4	0.0	0.0	0.0	0.0
6462	GW	05012017	-8.18	0.03	-55.6	0.1	28.97	7.99	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0.39	<LQ	0.16	<LQ	<LQ	<LQ	0.59	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
6462	GW	19032017	-8.32	0.04	-56.9	0.1	62.2	14.1	<LQ	<LQ	4.6	<LQ	0.1	0.9	0.0	0.0	0.1	14	0.3	0.0	0.2	0.0	0.3	0.0	0.2	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
6462	GW	09032017	-7.77	0.30	-54.0	1.8	63.6	16.4	<LQ	<LQ	2.9	<LQ	0.0	0.6	0.0	0.0	0.3	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.3	0.0	0.3	0.1	0.0	0.3	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
6462	GW	12042017	-8.25	0.08	-56.0	0.3	58.2	14.3	<LQ	<LQ	4.8	0.1	0.0	12	0.0	0.0	0.0	0.4	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.8	0.0	0.0	0.3	0.0	0.3	0.0	0.0	20.2	0.0	0.0	
6462	GW	16092017	-8.23	0.08	-55.4	0.3	54.8	11.2	<LQ	<LQ	2.1	<LQ	0.2	15	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.4	0.1	1.3	0.0	0.0	59.0	0.0	0.0	0.0	
6462	GW	26092017	-8.41	0.03	-57.0	0.1	45.8	8.4	<LQ	<LQ	<LQ	0.1	0.0	1.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.2	0.0	0.0	0.0	18.6	0.0	0.0	0.0	
61297	GW	09032016	-7.95	<LQ	<LQ	<LQ	13.2	<LQ	<LQ	3.2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
61297	GW	25072016	-7.37	0.05	-48.4	0.1	23.7	0.1	<LQ	<LQ	30.3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
61297	GW	25092016	-7.61	0.06	-49.3	0.2	23.3	<LQ	<LQ	<LQ	19.9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				2.7	0.0	0.0	0.0	0.0	
61297	GW	21092016	-7.70	0.11	-49.9	0.4	25.3	0.3	0.2	<LQ	10.8	<LQ	<LQ	3.4	<LQ	<LQ	13	<LQ	2.6	0.9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
61297	GW	27102016	-7.60	0.04	-49.2	0.1	26.2	0.8	0.3	<LQ	16.6	<LQ	<LQ	3.4	<LQ	<LQ	0.7	0.5	<LQ	0.7	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0.1	0.1		0.0	0.0	0.0	0.0	6.3	
61297	GW	28112016	-7.22	0.01	-48.1	0.1	9.74	0.21	<LQ	<LQ	153	<LQ	<LQ	1.41	<LQ	0.23	<LQ	0.88	0.62	1.00	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	5.0	0.0
61297	GW	05012017	-7.70	0.04	-49.8	0.2	6.89	0.19	<LQ	<LQ	0.82	<LQ	<LQ	1.65	<LQ	0.16	<LQ	0.25	<LQ	<LQ	0.56	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
61297	GW	10032017					25.1	0.6	<LQ	<LQ	1.6	<LQ	0.6	2.7	0.0	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
61297	GW	09032017	-7.69	0.04	-50.5	0.0	26.1	1.0	<LQ	0.1	4.3	<LQ	0.2	2.8	0.0	0.0	0.0	0.4	2.9	0.0	0.0	0.1	0.0	0.0	0.0	0.3	0.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
61297	GW	12042017	-7.76	0.06	-50.5	0.1	25.0	0.6	<LQ	<LQ	3.3	0.1	0.2	4.9	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.2	0.0	1.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
61297	GW	16092017	-7.41	0.06	-49.2	0.1	25.5	0.7	<LQ	<LQ	3.5	<LQ	0.4	5.3	0.0	0.6	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.9	0.0	14	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
61297	GW	16092017	-7.64	0.03	-49.9	0.2	26.5	0.7	<LQ	<LQ	2.5	<LQ	<LQ	5.6	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.3	0.0	0.2	0.0	0.0	1.1	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
ANNE 1	GW	22072016					22.6	3.5	0.3	<LQ	0.8	<LQ	<LQ	21.3	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	3.2	<LQ	<LQ	129.5	<LQ	67.2	11	<LQ				27.9	0.0	225.8	0.0	10.6	
ANNE 1	GW	26092016	-5.98	0.05	-37.7	0.2	24.4	3.8	0.3	<LQ	2.7	<LQ	<LQ	68.9	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	19.0	<LQ	<LQ	160.3	0.6	59.1	2.3	<LQ				22.3	0.0	0.0	0.0	0.0	
ANNE 1	GW	23092016					25.6	2.4	0.2	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	66.6	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0.7	<LQ	<LQ	19.9	<LQ	63.2	1.1	<LQ				0.0	0.0	267.2	0.0	74.8	
ANNE 1	GW	28102016					43.4	3.2	0.4	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	20.4	<LQ	<LQ	<LQ	4.6	4.8	12.0	2.2	<LQ	10.1	0.7	<LQ						160.5	0.0	8.4		
ANNE 1	GW	18112016					10.41	1.30	0.16	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	14.45	<LQ	<LQ	0.31	<LQ	2.19	<LQ	2.21	7.84	0.51	13.3	0.54	<LQ				11.4	0.0	0.0	0.0	0.0	
ANNE 1	GW	05012017					12.13	1.86	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	7.79	<LQ	<LQ	<LQ	0.51	0.76	1.12	<LQ	127	1.85	0.17	0.32				2.5	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
ANNE 1	GW	17032017	-6.09	0.04	-39.0	0.3	98.5	9.6	<LQ	<LQ	7.8	0.2	0.1	7.0	0.0	0.0	0.2	0.8	12	0.0	2.1	0.0	0.0	8.5	0.4	0.0	0.0	0.0	0.5	0.0	0.0	89.9	0.0	0.0	
ANNE 1	GW	10032017	-5.48	0.36	-37.8	0.6	105.5	7.9	<LQ	<LQ	6.3	<LQ	<LQ	10.8	0.0	0.0	0.4	0.7	17	0.0	2.8	3.0	0.0	215	0.4	0.0	0.0	0.0	0.8	0.0	0.0	127.2	0.0	0.0	
ANNE 1	GW	13042017					177.5	12.0	2.7	<LQ	17	0.1	<LQ	16.2	0.0	0.0	0.1	1.0	0.8	14	0.0	3.2	3.3	0.1	17.1	0.6	0.0	0.0	0.1	3.6	3.7	0.0	0.0	0.0	0.0
ANNE 1	GW	27062017					180.2	12.8	2.1	0.2	<LQ	0.1	0.5	616	0.0	0.0	0.0	6.8	0.4	4.7	0.0	10.8	3.1	0.7	43.5	0.9	0.0	0.0	7.0	55.2	0.0	0.0	0.0	160.1	
ANNE 2	GW	22072016	-11.07	0.05	-77.6	0.4	6.2	1.0	<LQ	<LQ	43.5	<LQ	<LQ	7.1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	13.9	
ANNE 2	GW	26092016	-10.69	0.02	-75.2	0.2	8.0	1.5	<LQ	<LQ	26.3	<LQ	<LQ	6.9	<LQ	12	0.9	1.0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	0.4	0.2		0.0	0.0	0.0	0.0	9.9	
ANNE 2	GW	23092016					9.7	2.1	145.0	<LQ	137.8	<LQ	<LQ	7.5	<LQ	13.0	9.0	0.7	<LQ	1.0	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
ANNE 2	GW	25112016	-8.91	0.05	-61.8	0.2	4.18	0.72	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	4.65	<LQ	<LQ	<LQ	10.3	0.78	<LQ	0.44	4.44	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
ANNE 2	GW	06012017	-10.12	0.56	-67.2	1.0	2.96	0.51	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	3.36	<LQ	<LQ	<LQ	0.69	<LQ	0.40	4.02	<LQ	0.09	<LQ	<LQ	<LQ				0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
ANNE 2	GW	09032017	-6.33	0.03	-39.8	0.3	98.4	9.1	<LQ	<LQ	0.8	0.0	0.0	6.6	0.0	0.0	0.2	0.0	11	0.0	2.3	0.8	0.0	4.8	0.4	0.0		0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
CHE AİM GW		29072016	-6.79	0.05	-45.3	0.2	20.9	1.0	<LQ	0.5	69.1	<LQ	<LQ	3.1	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	5.8	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ		0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	
CHE AİM GW		25092016	-6.91	0																															

Annexe 4 : Information supplémentaires

a. Liste des étudiants soutenus par ce consortium ou affiliés à ce consortium.

Nom	Sexe	Organisation hôte	Pays	Domaine d'études	Diplôme obtenu	Thèse de doctorat Titre de la thèse	Tâche dans le projet
Friederike Breuer	f	HMGU	Allemagne	Hydrologie	MSc	Étude des paramètres de sorption et de dégradation de contaminants organiques émergents sélectionnés dans différentes conditions hydrologiques.	Expériences de laboratoire sur colonne
Marleen Schübl	f	HMGU	Allemagne	Hydrologie	MSc	Étude sur les paramètres de sorption et de dégradation de certains produits pharmaceutiques dans le cadre d'expériences en colonne contrôlée en laboratoire.	Expériences de laboratoire sur colonne
Océane Dufies	f	Nîmes CHU	France	Biologie	MSc	Étude épidémiologique sur les entérobactériacées multirésistantes de Vistre	Identification des bactéries multirésistantes et des gènes associés
Caroline Buyse	F	Université de Nîmes	France	Sciences de la Terre et de la vie	B.Sc.	L'impact de l'infiltration des eaux de surface sur la qualité des eaux souterraines de l'aquifère de Vistrenque.	Sélection de puits contaminés pour l'étude de la tâche I
Corobel Beleños, Júlia	Femme	ICRA	Espagne	Hydrogéochimie, modélisation des transports	MSc	Présence d'antibiotiques vétérinaires dans les eaux souterraines Étude de cas : l'aquifère du Baix Fluvià	Recherche, modélisation
Gómez Villarroja, Albert	Mâle	ICRA	Espagne	l'écoulement des eaux souterraines	MSc	Modélisation numérique de l'écoulement des eaux souterraines de l'aquifère alluvial Baix Fluvia.	Modélisation numérique

b. Liste du personnel soutenu par ce consortium ou affilié à ce consortium

Nom	Sexe	Organisation hôte	Pays	Domaine d'études	Tâche dans le projet
Aleksandra Kiecak	f	HMGU	Allemagne	Hydrogéologue	Expériences de laboratoire sur les lots et les colonnes
Lara Sassine	F	CHROME - UNÎMES	France	Hydrogéochimiste	Toutes les tâches du WVP I et du site web
Axelle cadrière	F	CHROME - UNÎMES	France	microbiologiste	Échantillonnage sur le terrain, analyses biologiques (BMR) et interprétation dans WPI
Corinne Le Gal La Salle	Femme	CHROME - UNÎMES	France	Hydrogéochimiste	Échantillonnage sur le terrain, analyse chimique et interprétation chez WPI et le coordinateur du consortium.
Mira Petrovic	Femme	ICRA	Espagne	Chimie, analyse du COU	Analyse chimique, interprétation des données.
Carles Borrego Moré Borrego Moré	Mâle	ICRA	Espagne	Microbiologie	Microbiologie, interprétation des données et rédaction de rapports/documents.
David Brusi Belmonte	Mâle	UdG	Espagne	Hydrogéologie	Travail de terrain, interprétation des données
Rafael Marcé Romero	Mâle	ICRA	Espagne	Écologie	Travail de terrain, interprétation des données

Anna Menció Domingo	Femme	UdG	Espagne	Hydrogéochimie, statistiques	Hydrogéochimie, traitement des données statistiques et rédaction de rapports et de papiers.
Mercè Boy Roura Roura	Femme	ICRA	Espagne	Sciences de l'environnement, hydrologie	Travail sur le terrain et logistique, interprétation des données et rédaction de rapports/papier.
Mireia Fillol Homs	Femme	ICRA	Espagne	Microbiologie	Analyse microbiologique, interprétation des données et rédaction de rapports/documents.
Meritxell Gros Calvo	Femme	ICRA	Espagne	Chimie, analyse du COU	Travail sur le terrain, analyse chimique, interprétation des données et rédaction de rapports/papier.
David Soler Hernández Hernández	Mâle	UdG	Espagne	Géophysique	Levés géophysiques, travaux sur le terrain

c. Mobilité du personnel et des étudiants soutenus par ce consortium ou affiliés à ce consortium.

Nom	Sexe	Organisation hôte	Lieu de la visite	Objet de la visite	Durée de la visite	Résultat de la visite
J. Mas Pla	M	UNÎMES	Nîmes	Réunion de lancement persistante	7-8/10/2014	Rencontre et échange sur les procédures et la mise en œuvre de la recherche
C. Stumpp	F	UNÎMES	Nîmes	Réunion de lancement persistante	7-8/10/2014	Rencontre et échange sur les procédures et la mise en œuvre de la recherche
Aleksandra Kiecak	F	ICRA	Gérone	Visite du site sur le terrain, échange de laboratoire	13/09-05/09/2015	Echange sur la procédure analytique
M. Boy-Roura	F	UNÎMES	Nîmes, France	Visite du site sur le terrain, visite du laboratoire	7-11/09/2015	Echange sur la procédure analytique
Aleksandra Kiecak	F	UNÎMES	Nîmes	Visite du site sur le terrain, échange de laboratoire	15/09-18/09/2015	Echange sur la procédure analytique

C. Le Gal La Salle	F	OIGE	Munchen Allemagne	Réunion de mi-parcours persistante	21-23/10/2015	Rapport de résultats et définition des objectifs du projet
J. Mas Pla	M	OIGE	Munchen Allemagne	Réunion de mi-parcours persistante	21-23/10/2015	Rapport de résultats et définition des objectifs du projet
L. Sassine	F	ICRA	Girone, Espagne,	Échange de laboratoire,	16 -19/03/2015	visite du site sur le terrain et échange sur la procédure d'analyse
L. Sassine	F	OIGE	Allemagne	Réunion de mi-parcours persistante	21-23/10/2015	Rapport de résultats et définition des objectifs du projet
L. Sassine	F	OIGE	Allemagne	Echange de laboratoire	17/01/2016- 04/02/2016	Mise en place d'expériences en colonne en accord avec le site de l'aquifère de Vistrenque.
Aleksandra Kiecak	F	UNIMES	Nîmes	Échange de laboratoire, analyse d'échantillons d'eau provenant d'expériences sur lots.	07.02-13.02.2016	Analyses de l'eau
M. Boy-Roura	F	OIGE	Allemagne	Réunion de mi-parcours persistante	21-23/10/2015	Rapport de résultats et définition des objectifs du projet
M. Boy-Roura	F	OIGE	Allemagne	Echange de laboratoire	17/01/2016- 04/02/2016	Mise en place d'expériences sur colonnes en accord avec le site du champ aquifère de l'Empordà.

d. Collaboration, coordination, mobilité et synergies

La collaboration entre les partenaires de l'équipe PERSIST a été très efficace et efficiente. En plus de la relation constructive et positive, elle a été favorisée par des infrastructures de laboratoire similaires et des compétences complémentaires. Trois réunions ont été organisées à Nîmes, Munich et Gérone pour suivre le travail de chaque partenaire et développer des stratégies communes pour atteindre les objectifs du projet. Des vidéoconférences ont été organisées entre les réunions pour suivre l'avancement des travaux.

La mobilité des chercheurs postdoctoraux a été très efficace, consistant en des visites sur le terrain sur les sites de Vistrenque et de l'Empordà, ainsi qu'en des expériences en laboratoire. Grâce à l'échange en laboratoire, les post-doctorants du projet travaillaient sur des expériences conjointes renforçant les résultats du projet et apprenant de nouvelles techniques. Les post-doctorants allemands et français ont pris connaissance de la procédure d'analyse des COE dans les installations de l'ICRA, ce qui les a aidés à développer leur méthode d'analyse dans leur établissement d'origine pour les analyses des COE. Des post-doctorants ont également appris la méthodologie d'analyse des isotopes de l'eau à l'Université de Nîmes. Des chercheurs postdoctoraux français et espagnols du WP1 et du WP2, ont participé à la mise en place d'expérimentations en lots des techniques d'apprentissage du WP3 et ont contribué à la construction du WP3 focus en accord avec les spécificités du site sur le terrain.

La collaboration aux travaux d'analyse en nature a été efficace. Il s'agissait d'un exercice de comparaison entre laboratoires à partir d'échantillons dopés aux antibiotiques, préparés à l'ICRA et analysés dans les différents laboratoires des partenaires. Le WP2 a bénéficié de la collaboration entre partenaires pour les analyses des isotopes de l'eau à l'Université de Nîmes (France) et les analyses du tritium à l'IGOE (Allemagne). Le WP3 a bénéficié de l'infrastructure des laboratoires de l'UNîmes en raison d'un instrument défectueux au HMGU pour l'analyse des COE. Les microbiologistes de l'ICRA ont participé à l'analyse des gènes de résistance aux antibiotiques dans les sédiments à partir d'expériences en colonne pour le WP3. La recherche multidisciplinaire a été encouragée par le projet impliquant la collaboration d'hydrologues de l'environnement avec des biologistes de l'environnement et des patriciens de la santé. La collaboration a également permis d'introduire l'ensemble du projet dans des conférences internationales distinctes par tous les partenaires afin d'accroître la diffusion et la discussion sur les résultats.

Le partenaire de l'ICRA a collaboré avec le Laboratoire des Contaminants des Virus de l'Eau et de l'Alimentation de l'Université de Barcelone. Ce groupe développe un projet dans le cadre du même appel JPI (METAWATER, JPIW2013-095-c03-01) relatif à la présence de virus dans les eaux souterraines utilisées pour l'irrigation. En particulier, notre groupe leur a transféré la base de données des puits de l'aquifère du Baix Fluvià, ainsi que la base de données hydrochimique correspondante, afin de faciliter la collecte des eaux souterraines pour l'analyse des virus.

Le projet a bénéficié d'un financement externe. A l'ICRA, des fonds supplémentaires ont été obtenus de :

I) Projet espagnol CGL2014-57215-C4-2-R (2015-2017) explicitement lié à PERSIST. Le financement de ce projet a aidé à assister à des conférences internationales/nationales spécifiques qui n'étaient pas budgétées dans le projet PERSIST, et a aidé à diffuser les résultats.

II) Le Fonds de l'Université de Gérone (MPCUdG2016/061) a aidé les chercheurs de l'UdG à assister à certaines réunions.

III) Le projet Beatriu de Pinós 2014-BP-BP-B_00046, soutenu par le Secrétaire pour les Universités et la Recherche du Conseil de l'Economie et de la Connaissance du Gouvernement Catalan, a couvert quelques visites sur le terrain et l'analyse de la contribution de M. Gros à ce projet.

WP1, au laboratoire CHROME, a bénéficié d'un financement externe de 10 K€ de la joint-venture Vistrenque et Costières pour l'analyse et le suivi sur le terrain.

3. Tableau des livrables

Max. 3 pages

Nom du jalon ou du produit livrable	Partenaire chef de file (pays)	Date de réalisation/livraison (jj/mm/aaaaaa)	Veillez expliquer les changements, les difficultés rencontrées et les nouvelles solutions adoptées.
WP0			
Rapport de la réunion de lancement	Université de Nîmes (France)	21 octobre 2015	
Rapport de mi-parcours	Université de Nîmes (France)	6 avril 2016	
Site Web	Université de Nîmes (France)	Février 2016	
WPI			
I-Distribution spatiale des COEs, ainsi que d'autres composantes d'intérêt. Élaboration d'un modèle conceptuel du devenir des COEs dans l'aquifère. Cas du bassin de Vistrenque.	Université de Nîmes (France)	Mars 2016	L'enquête du COEs de l'aquifère de Vistrenque est terminée. Rapport interne transmis à l'organisme de financement ONEMA. Les résultats et les principales conclusions ont été soumis à des ateliers et conférences internationales distinctes.
I.2 - Évaluation de la variabilité spatiale et temporelle des COEs et des pathogènes résistants dans l'eau des cours d'eau.	Université de Nîmes (France)	Mars 2017	Le rapport a été envoyé à l'ONEMA et est en cours de révision.

Nom du jalon ou du produit livrable	Partenaire chef de file (pays)	Date de réalisation/livraison (jj/mm/aaaaaa)	Veillez expliquer les changements, les difficultés rencontrées et les nouvelles solutions adoptées.
I.3-Investigation des processus de transfert des COEs de l'eau des cours d'eau vers les puits de forage à l'aide de traceurs de carreaux de résidence aquatique.	Université de Nîmes (France)	Juillet 2017	La surveillance des puits et des eaux de surface sur 7 sites est terminée. Les paramètres géochimiques et les analyses sont achevés et les enregistrements sont interprétés. L'achèvement complet de cette tâche a été retardé en raison de problèmes d'analyse et de l'échantillonnage différé du tritium. En raison du coût des analyses du tritium, le choix du site d'échantillonnage n'a été fait qu'après avoir analysé tous les autres résultats. Les analyses de tritium prennent 6 mois pour la repousse de l'hélium. Cela a retardé les résultats et l'interprétation. Les analyses sont terminées et le rapport est en cours d'élaboration et sera soumis à l'ONEMA d'ici la fin 2018.
WP2			

Nom du jalon ou du produit livrable	Partenaire chef de file (pays)	Date de réalisation/livraison (jj/mm/aaaaaa)	Changements, les difficultés rencontrées et les nouvelles solutions adoptées.
2.1 Répartition spatiale des COEs (tableau, cartes), ainsi que des autres composantes d'intérêt. Élaboration d'un modèle conceptuel du devenir des COEs dans l'aquifère.	ICRA	Octobre 2016	Une base de données complète avec toutes les données de l'enquête de terrain 2015-2016 a été créée et validée par ses auteurs pour répondre à cet élément livrable. Cette base de données comprend les résultats d'échantillonnage mensuels et est accessible à tous les chercheurs de l'ICRA par le biais d'un site intranet comme base de données de référence pour le traitement et l'analyse des données. Un résumé des principales conclusions, hypothèses et travaux futurs a été distribué aux chercheurs de l'ICRA lors de chacune des réunions de groupe ; ce rapport est mis à jour pour inclure de nouvelles contributions au projet. Un modèle conceptuel pour la dynamique hydrogéologique et la migration des solutés a été élaboré à partir d'informations géologiques (profils géophysiques, données potentiométriques, etc.) et de données hydrochimiques, isotopiques et COE. Le modèle conceptuel est testé par sa mise en œuvre en tant que modèle numérique de flux et de transport. Le premier bulletin annuel de l'ICRA a été publié sur les sites Web du projet (http://persist.unimes.fr/) et de l'ICRA (http://www.icra.cat).

Nom du jalon ou du produit livrable	Partenaire chef de file (pays)	Date de réalisation/livraison (jj/mm/aaaaaa)	Veillez expliquer les changements, les difficultés rencontrées et les nouvelles solutions adoptées.
2.2 Détermination de l'ampleur des facteurs hydrologiques et chimiques sur les transports des COEs dans les systèmes aquifères		Août 2017	L'analyse des facteurs qui contrôlent le transport des antibiotiques dans les aquifères a été discutée sur la base de données de terrain. Sur la base de leur interprétation, et à la lumière d'un manque de corrélation spatiale soutenue par l'analyse géostatistique, nous concluons que la concentration d'antibiotiques montre une grande variabilité dans les aquifères. Ceci est principalement dû au comportement réactif (sorption) de ces polluants, qui est encore en cours de recherche et de compréhension. D'autres facteurs sont la représentativité du puits d'échantillonnage, en particulier l'étendue de leur zone de capture ; la grande variabilité de la teneur en antibiotiques du fumier appliqué, qui restera généralement inconnue à l'échelle régionale, et la nature diffuse parcellaire de la pollution antibiotique dérivée de la fertilisation. Voir Boy-Roura et al (2018).
WP3			
3.1 : Estimation des temps de transit moyens et des distributions des temps de transit sur les sites de terrain. Stumpp C, Kiecak A, Knorr B (2016) HMGU rapport interne de mi-parcours mettant l'accent sur l'importance des temps de transit de l'eau pour évaluer le devenir des contaminants organiques émergents dans les eaux souterraines.	HMGU (Allemagne)	01/07/2016	Pour réaliser l'estimation des temps de transit moyens sur le terrain, il est essentiel de disposer d'observations mensuelles à partir des points d'échantillonnage. Ces données ont plutôt été recueillies à la fin du projet et, par conséquent, aucune estimation du temps de transit n'était possible pendant la durée du projet. Néanmoins, nous avons pu tirer des conclusions sur les temps de transit en ce qui concerne le devenir des contaminants à partir des expériences menées en laboratoire.

Nom du jalon ou du produit livrable	Partenaire chef de file (pays)	Date de réalisation/livraison (jj/mm/aaaaaa)	Veillez expliquer les changements, les difficultés rencontrées et les nouvelles solutions adoptées.
3.2 : Identification des taux de sorption et de dégradation à partir de la modélisation du transport réactif de traceur et des courbes de percée des COEs mesurées dans des expériences en laboratoire sur colonne. Kiecak, A, Breuer, F, Stumpp, C (2017) : rapport interne de mi-parcours du HMGU axé sur l'identification des taux de sorption et de dégradation à partir de la modélisation du transport réactif des traceurs et des courbes de rupture des COEs mesurées dans des expériences en colonne de laboratoire (version actualisée, 07.2017).	HMGU (Allemagne)	01/07/2017	Aucun changement ou nouvelle solution n'a dû être adoptée pour le livrable.

4. Participation à des réunions de consortium, des conférences, des ateliers, des cours de formation et d'autres événements.

Nom de l'événement	Date	Lieu	Partenaires participants	Objet
Réunion de lancement	07/10/2014	Nîmes, France	Stumpp, C ; Mas-Pla, J ; Le Gal La Salle, C ; Sassine, L	Coordination du projet, règlement des questions opérationnelles.
Réunion d'expérimentation en laboratoire	11/03/15	Bruxelles, Belgique	Stumpp, C ; Boy-Roura, M ; Le Gal La Salle, C ; Sassine, L	Avancement du projet / mise en place des expériences sur colonne à la lumière du travail sur le terrain.
Réunion de mi-parcours	21-23/10/15	Munich, Allemagne	Stumpp, C ; Mas-Pla, J ; Le Gal La Salle, C ; Kiecak, A ; Boy-Roura, M ; Sassine, L ; Sassine, L.	Présentation des résultats de l'avancement des travaux sur le terrain Approche et plan de modélisation de l'expérience en laboratoire
FH-DGGG Tagung (conférence nationale allemande sur l'hydrogéologie)	13-17/04/2016	Karlsruhe (Allemagne)	HMGU	Présentation par affiches
Réunion d'examen à mi-parcours du JPI sur l'eau	30/11/2016	Vienne	HMGU, UNimes	Présentation du projet au JPI Eau
Conférence de l'AISH	10-14/07/2017	Port Elizabeth, Afrique du Sud	HMGU	Présentation orale
44e Congrès de l'AIH	25-29/09/2017	Dubrovnik, Croatie	HMGU	Deux présentations orales (Prix de la meilleure présentation orale d'un jeune scientifique)
Les polluants émergents, de nouveaux défis pour la gestion des eaux souterraines	19-20/05/2016	Orléans, France	J. Mas-Pla, M. Boy-Roura	Oral presentation: Occurrence et devenir des polluants émergents (antibiotiques) dans un aquifère alluvial et leur influence sur les bactéries multi-résistantes (Bas-Fluvia, Catalogne)
Conférence JPI sur l'eau	19 mai 2016	Rome, Italie	C. Le Gal La Salle, Unimes	Présentation par affiches

Les polluants émergents: de nouveaux défis pour la gestion des eaux souterraines.	19-20 mai 2016	BRGM Orléans (France)	. Sassine, L., C. Le Gal La Salle, S. Rigaud, P. Meffre, Z. Benfodda, J.P. Lavigne, P. Verdoux, S. Ressouche, R. Roig.	présentation orale: Occurrence et devenir des contaminants émergents et des pathogènes résistants dans un continuum eau de surface/eau souterraine à une échelle locale : Cas de la nappe de la Vistrenque
Vers une eau souterraine durable dans l'agriculture - Conférence internationale reliant la science et la politique 2016	28-30/06/2016	San Francisco, Californie, États-Unis	J. Mas-Pla, M. Boy-Roura	Présentation orale : Explorer l'origine et la migration des antibiotiques dans les aquifères afin d'évaluer leur impact sur la qualité des ressources en eau souterraine.
Vers une eau souterraine durable dans l'agriculture - Conférence	28-30/06/2016	San Francisco, Californie, États-Unis	J. Mas-Pla, M. Boy-Roura	Devenir et persistance des contaminants émergents et des bactéries multirésistantes dans un continuum d'eaux de surface - eaux souterraines (projet PERSIST).

internationale reliant la science et la politique 2016				
XVIIIe Congrès de l'Association ibérique de limnologie	4-8 juillet 2016	Tortosa, Espagne	M. Fillol	Présentation orale : Dynamique spatio-temporelle de la pollution par les antibiotiques et son impact sur la résistance microbienne des eaux souterraines dans un aquifère alluvial.
Eaux souterraines et société : 60 ans de l'AIH - 43e Congrès de l'AIH,	25-29 septembre 2016	Montpellier, France	J. Mas-Pla, M. Boy-Roura, A. Menció, M. Gros.	Présentation orale : Évolution spatiale et temporelle des antibiotiques dans l'aquifère alluvial du Baix Fluvià et son impact sur la qualité des ressources en eaux souterraines.
Eaux souterraines et société : 60 ans de l'AIH - 43e Congrès de l'AIH,	25-29 septembre 2016	Montpellier, France	J. Mas-Pla, M. Boy-Roura, A. Menció, M. Gros.	Présentation par affiches : la présence et le devenir des antibiotiques dans les sols fertilisés avec du fumier et l'évaluation de leur persistance et de leur potentiel de migration vers les masses d'eau souterraine.
Eaux souterraines et société : 60 ans de l'AIH - 43e Congrès de l'AIH,	25-29 septembre 2016	Montpellier, France	L. Sassine ; C. Le Gal La Salle, M. Khaska, J. Mas-Pla, M. Boy-Roura,	Variabilité spatiale des COEs dans un aquifère alluvial peu profond couplé à une approche géochimique. Cas du bassin de Vistrenque
Eaux souterraines et société : 60 ans de l'AIH - 43e Congrès de l'AIH,	25-29 septembre 2016	Montpellier, France	Kiecak A., Sassine L., Boy Roura M., Mas Pla J., Le Gal La Salle C., Elsner M., Stumpp C.	Présentation par affiches : Estimation des coefficients de sorption de certains produits pharmaceutiques dans le cadre d'expériences contrôlées en laboratoire.
Congrès hispano-portugais sur les eaux souterraines dans le deuxième cycle de planification hydrologique.	28-30 novembre 2016	Madrid, Espagne	J. Mas-Pla	Présentation orale : Interprétation des résultats de l'étude sur la présence et l'évolution des antibiotiques dans les eaux souterraines du Baix Fluvià (bassins internes) dans le contexte de la planification hydrologique.
LuWQ2017 - Conférence internationale et interdisciplinaire sur l'utilisation des terres et la qualité de l'eau - Effet de l'agriculture sur l'environnement,	29 mai - 1er juin 2017	La Haye, Pays-Bas	M. Gros	Présentation par affiches La persistance et le devenir des antibiotiques et des produits pharmaceutiques vétérinaires dans les sols agricoles après l'amendement du fumier et l'évaluation de leur potentiel de migration vers les masses d'eau souterraine. Présentation par affiches : Variabilité spatio-temporelle de la pollution des eaux souterraines par les antibiotiques et les bactéries multirésistantes dans une

				zone agricole : l'aquifère alluvial Baix Fluvià (NE de l'Espagne)...
2ème Conférence du JPI sur l'eau "Polluants émergents dans les écosystèmes d'eau douce".	6-7 juin 2018	Helsinki, Finlande	J. Mas-Pla	Présentation orale : Comportement hydrogéologique des antibiotiques dans les eaux souterraines : Un défi pour la gestion des ressources en eau
2ème Conférence du JPI sur l'eau "Polluants émergents dans les écosystèmes d'eau douce".	6-7 juin 2018	Helsinki, Finlande	C. Le Gal La Salle, Sassine Lara I, Mahmoud Khaska Verdoux Patrick I, Ressouche Sophie2, Roig Benoit I	Présentation par affiches : Composés pharmaceutiques émergents dans les puits privés et les champs de puits d'un aquifère alluvial typique - une approche géochimique.
2ème Conférence du JPI sur l'eau "Polluants émergents dans les écosystèmes d'eau douce".	6-7 juin 2018	Helsinki, Finlande	K. Khaska , C. Le Gal La Salle, Sassine Lara, Verdoux Patrick, Ressouche Sophie, Roig Benoit	Présentation par affiches : Transfert de composés pharmaceutiques émergents dans les légumes de jardin - une approche géochimique
Réunion finale	02-05/04/17	Gérone Espagne	Stumpp, C ; Mas-Pla, J ; Le Gal La Salle, C ; Kiecak, A ; Boy-Roura, M ; Sassine, L ; Sassine, L.	Réunion finale