

# Entraînement gravitaire de Cd, Cu, Zn dans des sols reconstitués avec des boues compostées

F.-L. GRETER-DOMERGUE<sup>(1)</sup>J.-C. VEDY<sup>(1)</sup>


---

## RESUME

On étudie, dans des sols reconstitués en lysimètre, le transfert par les eaux gravitaires de Cd, Cu, Zn. Le profil est de type (A1)C. L'horizon (A1) est un mélange de substrat minéral et de matériau organique (compost à base de sciures et des boues d'épuration). Deux types de substrats minéraux sont utilisés : une arénite de grès non carbonaté et une arène granitique. L'effet d'une couverture végétale (graminée, légumineuse) est testé. L'expérience se déroule sur 4 ans, en halle de végétation avec contrôle des flux drainants.

Les résultats portent sur les modalités d'exportation des métaux lourds par les eaux gravitaires d'une part, la couverture végétale d'autre part.

On note à ce sujet :

— la très faible exportation des métaux lourds par drainage, ne dépassant pas 0,4 % des quantités introduites avec le compost. Le cuivre est l'élément le plus exporté alors que les pertes en cadmium peuvent être considérées comme négligeables. En règle générale, c'est dans les systèmes granite que l'on observe les concentrations et les pertes les plus fortes. L'effet de la couverture végétale sur l'exportation des métaux par drainage varie en fonction de l'élément considéré et de la nature du substrat minéral.

— une exportation plus importante des métaux lourds par les végétaux. L'exportation de Cd et Zn par prélèvement racinaire est beaucoup plus efficace que l'exportation par drainage ; pour le cuivre, par contre, les pertes par absorption et drainage sont du même ordre de grandeur. A la fin de la quatrième année, l'exportation des métaux lourds par les plantes est, proportionnellement à la phytomasse produite, un peu moins importante sur grès que sur granite.

---

## LEACHING OF HEAVY METALS (Cd, Cu, Zn) in SLUDGE-COMPOSTED SOILS UNDER LYSIMETRIC CONDITIONS

*Columns of soil made of composted sludge and mineral material were used to study the translocation of heavy metals (Cu, Cd, Zn) in gravitational water. The mineral material is either of granitic origine or a sandstone ; half of the soils were covered with vegetation (ray-grass and clover).*

*During four years, the composition of the graviational waters and the content of heavy metals in the vegetation were determined.*

*The main results are :*

*— a poor exportation of metals in the gravitational waters ; the mineral substratums impact the concentrations of Cd, Cu and Zn (lower under sandstone than under granite), the vegetation having no marked effect. Copper was proportionally the higher exported metal and in this meaning the more mobile, but the total loss did not exceed 0.4 % of the initial amount.*

[1] Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) - IGR-pédologie GR - Ecublens, CH 1015 - Lausanne.

— for zinc and cadmium, a 10 to 30 folds more efficient exportation in the plants, the exportation of copper in the plants and in the waters beings of the same order of magnitude.

The high affinity of copper for the dissolved organic substances can explain its special behaviour : it prevents its adsorption on active materials and diminishes its bioavailability.

**KEY WORDS** : Heavy metals - Gravitational waters - Composted sludge - Lysimeters.

## INTRODUCTION

Le recyclage de boues d'épuration dans les sols, directement ou après compostage, représente souvent une solution possible au problème de l'élimination et de la valorisation de ce type de déchet : avant 1984, 60 % environ des boues d'épuration produites en Suisse étaient recyclées dans les sols agricoles, pourcentage record par comparaison à la situation connue par d'autres pays européens (DAM KOFOED, 1984). De nombreux travaux soulignent l'intérêt de cette pratique pour l'amélioration des propriétés physiques, chimiques et biologiques des sols agricoles (MUSTIN, 1987) ; d'autres recherches démontrent l'importance du rôle joué par ce type de matières organiques dans la réhabilitation des sols dégradés (AYERST, 1978, HINESLY et al., 1982, HALL et VIGERUST, 1983) et dans les opérations techniques de reconstitution de sols à partir de matériaux purement minéraux (CHAWLA et al., 1976).

Toutefois les boues d'épuration et les produits dérivés renferment souvent des polluants métalliques (DAM KOFOED, 1984) et organiques (TARRADELLAS et al., 1985) qui jouent, au plan de leur utilisation dans l'environnement, le rôle de facteur limitant (SAUERBECK, 1987).

Cet article synthétise les résultats d'une étude expérimentale portant sur le transfert par les eaux gravitaires et, le cas échéant, sur l'absorption par les plantes, du cadmium, du cuivre et du zinc dans des profils de sols reconstitués en colonne lysimétrique et soumis à des drainages contrôlés ; des résultats partiels portant exclusivement sur l'analyse de la solution du sol ont déjà été publiés (RENAUD-BEZOT, 1986, STREHLER et VEDY, 1987, KELLER et al., 1987, DOMERGUE et VEDY, 1988). Dans une étape à venir, cette étude sera complétée par l'analyse de la phase matricielle et des interactions organo-minérales après démontage des colonnes de sol.

## I. DISPOSITIF ET PROTOCOLE EXPÉRIMENTAUX, MÉTHODES ANALYTIQUES

### A) DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

Des sols modélisés de type (A<sub>1</sub>)C sont reconstitués dans des lysimètres circulaires en PVC (diamètre 36 cm, haut. 65 cm) (RENAUD-BEZOT, 1986). Un compost fabriqué à partir de boues d'épuration fermentées en anaérobiose et de sciures de bois sert de substrat organique. Ce compost (tableau I) présente une teneur élevée en calcium et en fer utilisé pour la floculation des boues. Le rapport C/N est relativement faible et suggère une aptitude normale à la biodégradation. Les teneurs en métaux lourds sont élevées (en g/tonne de matière sèche : 17 pour Cd, 520 pour Cu et 930 pour Zn) et dépassent les limites autorisées en Suisse pour la commercialisation des composts produits industriellement (limites actuellement fixées à 3 pour Cd, 150 pour Cu et 500 pour Zn, g/tonne de matière sèche) (ordonnance fédérale 1986). Les substrats minéraux

sont de deux types : (a) une arénite de grès permien (dépression de Saint-Dié, Vosges), (b) une arène granitique (massif d'Hohrodberg (Vosges), choisis pour leur faible teneur en limons. Ces matériaux présentent des pH et une texture sensiblement différents, le grès étant le plus argileux et le moins acide ; les caractéristiques du complexe absorbant et les teneurs en sesquioxides (extractions en milieu oxalate et citrate-bicarbonate-dithionite) sont comparables ; les concentrations en métaux lourds sont basses (tableau I).

L'horizon (A<sub>1</sub>) (haut. 36 cm) est un mélange 1/3-2/3 (poids de matière sèche) de compost et de substrat minéral (grès ou granite). Cet horizon présente des caractéristiques globales largement déterminées par le compost. Les teneurs en métaux lourds excèdent les limites admissibles fixées pour la Suisse à 8.0 (Cd), 50 (Cu) et 200 (Zn) g/tonne de matière sèche (ordonnance fédérale 1986).

Tableau I : Caractéristiques analytiques du compost, des substrats minéraux et des horizons (A<sub>1</sub>).

Symboles : f : fin ; g : grossier ; / : non dosé ; n.d. : non détecté  
Tamm : extraction sélective en milieu oxalate ; M-J ou Mehra-Jackson : extraction sélective en milieu citrate-bicarbonate-dithionite.

*Analytical characteristics of composted sludge, mineral substratum and (A<sub>1</sub>) horizons.*

*f : fine ; g : coarse ; / : not analyzed ; n.d. : not detected ; Tamm : extracted in oxalate ; M-J : extracted in CBD.*

	granulométrie (%)					pH (eau)	pH (KCl)	Fe (o/oo)		Al (o/oo)	
	Sables g	Sables f	Limons g	Limons f	Argille			Tamm	M-J	Tamm	M-J
Compost	/	/	/	/	/	6.6	6.5	/	/	/	/
grès	58	17	4	8	13	6.9	5.6	1.0	7.4	1.7	1.3
granite	72	11	4	8	5	5.8	3.7	3.5	6.2	3.2	1.6
(A <sub>1</sub> ) grès	63	13	5	8	11	6.8	6.6	25.4	33.5	2.2	2.1
(A <sub>1</sub> ) granite	62	13	5	10	10	6.6	6.4	29.8	35.3	2.7	2.2

	Cations échangeables [méq/100g]						pH du sol		Matière organique			
	Ca	Mg	K	Na	S	acid.	T	100 S/T	C (%)	N (%)	C/N	
Compost	72.6	4.29	0.77	0.54	78.20	0.13	78.33	100	33.60	1.56	22	
grès	3.5	2.17	0.33	0.17	6.21	0.00	6.21	100	0.30	0.11	/	
granite	4.9	1.09	0.17	0.18	6.31	0.74	7.05	90	0.14	0.07	/	
(A <sub>1</sub> ) grès	28.5	2.64	0.44	0.36	31.94	0.10	32.04	100	11.40	0.59	19	
(A <sub>1</sub> ) granite	31.8	2.25	0.45	0.40	34.90	0.20	35.10	99	13.00	0.67	19	

	Eléments totaux [mg/g]										
	Na	K	Ca	Mg	Mn	Fe	Al	Si	Cd	Cu	Zn
Compost	0.60	2.20	32.00	2.90	0.16	70	9	28	0.017	0.520	0.930
grès	10.00	48.30	5.30	3.90	0.65	13	64	345	n.d.	0.004	0.033
granite	16.00	47.20	6.60	8.10	0.54	18	68	334	n.d.	0.007	0.042
(A <sub>1</sub> ) grès	6.80	30.40	13.80	3.60	0.36	37	44	221	0.005	0.170	0.310
(A <sub>1</sub> ) granite	9.80	26.80	16.90	6.60	0.34	43	45	206	0.006	0.200	0.370

## B) PROTOCOLE EXPERIMENTAL

Le schéma expérimental consiste en une gestion en parallèle de lysimètres sans couverture végétale (systèmes nus) et de lysimètres végétalisés par un mélange de ray-grass italien (*Lolium italicum*) et de trèfle violet (*Trifolium pratense*) (systèmes végétalisés). Six répétitions par situation ont été effectuées.

L'expérience se déroule en halle de végétation (conditions climatiques naturelles avec suppression des retombées pluviales et arrosages contrôlés). L'installation de lysimètres a été réalisée vers la fin de l'année 1984, la planification de l'expérience comportant une phase préliminaire d'attente de 8 mois assurant la stabilisation des colonnes de terre. Au mois d'avril 1985, la moitié des lysimètres a été végétalisée par repiquage de 6 pieds de trèfle et de 6 pieds de ray-grass par colonne.

Les arrosages par de l'eau déminéralisée sont discontinus et comportent des alternances de phases d'humectation et de dessiccation. D'avril à décembre 1985, il y eu 15 arrosages drainants ; à partir de janvier 1986, un rythme plus espacé d'arrosages a été adopté. Tous les arrosages sont calculés pour correspondre à une pluviométrie annuelle de 1200 mm. En période de forte évapotranspiration, les lysimètres végétalisés reçoivent des apports d'eau supplémentaires pour maintenir la turgescence des plantes sans accroître le drainage. En fin de cycle, le volume drainé sous système végétalisé demeure, pour respecter les règles normales de fonctionnement des écosystèmes, moins important que sous système nu.

### C) MÉTHODES ANALYTIQUES

Les eaux sont filtrées à 0.45  $\mu\text{m}$ . avant d'être analysées. On détermine les paramètres suivants : pH, carbone organique total (COT) (oxydation photochimique par persulfate/oxygène-UV puis détection du gaz carbonique produit par IR), zinc et cuivre (spectroscopie d'émission plasma), cadmium (spectrophotométrie d'absorption atomique sans flamme).

## II. RÉSULTATS

### A) ÉVOLUTIONS TEMPORELLES DU pH ET DES CONCENTRATIONS DU CARBONE ORGANIQUE ET DES MÉTAUX LOURDS

Ces évolutions sont perçues au travers du calcul des moyennes et des valeurs statistiques d'accompagnement (tableau II) et de la représentation des tendances sous forme de courbes lissées d'ordre 3 (figures 1, 2, 3, 4 et 5).

Tableau II : Moyennes et autres valeurs statistiques.

COT : carbone organique total.

*Means, and other statistical values.*

Paramètres	Traitements	Moyennes	Minimum	Maximum	Limites de confiance (P = 2.5)	
pH	granite nu	6.53	4.70	8.10	6.34	6.72
pH	granite végétalisé	6.30	4.70	7.30	6.16	6.43
pH	grès nu	7.66	5.75	8.16	7.60	7.71
pH	grès végétalisé	7.45	5.60	8.05	7.37	7.52
COT [mgC/l]	granite nu	93	18	194	86	101
COT [mgC/l]	granite végétalisé	71	21	160	64	78
COT [mgC/l]	grès nu	72	12	166	65	79
COT [mgC/l]	grès végétalisé	64	22	178	56	71
Cu [ $\mu\text{g/l}$ ]	granite nu	84	27	192	79	89
Cu [ $\mu\text{g/l}$ ]	granite végétalisé	74	37	157	69	79
Cu [ $\mu\text{g/l}$ ]	grès nu	37	12	91	35	39
Cu [ $\mu\text{g/l}$ ]	grès végétalisé	35	16	135	33	38
Zn [ $\mu\text{g/l}$ ]	granite nu	76	1	709	57	96
Zn [ $\mu\text{g/l}$ ]	granite végétalisé	66	1	702	48	84
Zn [ $\mu\text{g/l}$ ]	grès nu	36	0	333	28	43
Zn [ $\mu\text{g/l}$ ]	grès végétalisé	69	1	754	48	90
Cd [ $\mu\text{g/l}$ ]	granite nu	0.45	0.01	3.00	0.34	0.55
Cd [ $\mu\text{g/l}$ ]	granite végétalisé	0.43	0.01	2.50	0.31	0.54
Cd [ $\mu\text{g/l}$ ]	grès nu	0.11	0.01	2.30	0.07	0.16
Cd [ $\mu\text{g/l}$ ]	grès végétalisé	0.16	0.01	1.30	0.11	0.20

## 1. pH

Les pH moyens (tableau II) se situent à des valeurs proches de la neutralité, les eaux sous granite étant les plus acides. L'effet de la couverture végétale est peu marqué mais tend à accroître légèrement l'acidité des eaux gravitaires.

Sous granite, le pH des eaux gravitaires (figure 1), légèrement inférieur à 5 lors des premiers drainages, augmente de plus de 2 unités pour atteindre, vers la fin de l'été 1986, les valeurs maximales de 7.7 en système nu et 7.1 en système végétalisé. La phase d'accroissement se réalise en deux temps avec un palier durant l'hiver et le printemps 1985-1986 ; ce palier est suivi, mais en système végétalisé seulement, d'un épisode de décroissance rapide, de durée inférieure à 4 mois. Les eaux en système végétalisé deviennent alors plus acides que celles en système nu, inversant les tendances notées entre mai 1985 et avril-mai 1986. Au delà de juin 1986, l'écart entre les systèmes se comble lentement mais persiste encore après février 1988. En fin d'expérience les pH se situent entre 6.5 et 7.0.

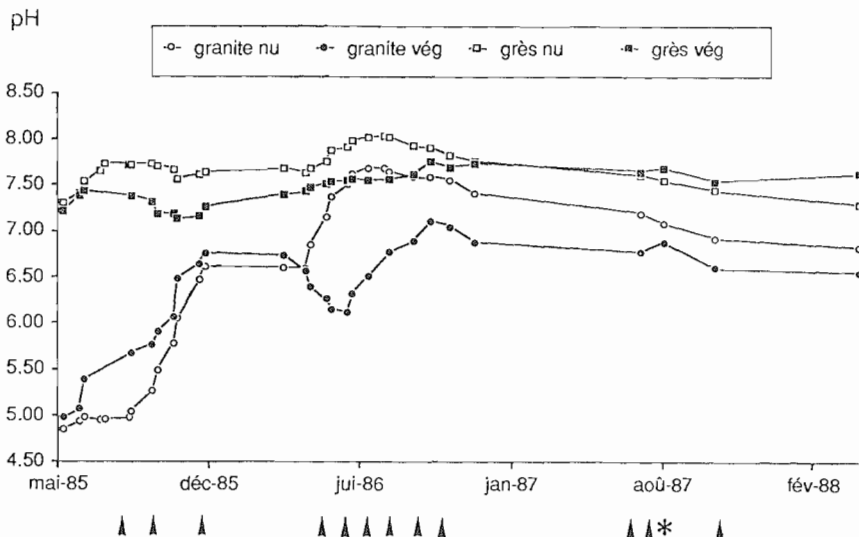


Figure 1 : Evolution du pH moyen des eaux gravitaires prélevées sous les systèmes analysés (courbes lissées d'ordre 3). Les symboles  $\blacktriangle$  indiquent une récolte de végétaux, le symbole \* un repiquage.

*Mean pH pattern in gravitational waters collected under the soil columns. The symbol  $\blacktriangle$  indicates harvesting, the symbol \* planting out.*

Sous grès, le pH des percolats, initialement compris entre 7.0 et 7.5, augmente progressivement, les valeurs maximales de la fin de l'été 1986 se situant à 8.0 en système nu et à 7.8 en système végétalisé. Puis les pH décroissent, tout en demeurant au-dessus de 7.0 en fin d'expérience. L'effet de la couverture végétale n'est significative qu'entre le début du drainage et décembre 1986 : durant cette phase, le système végétalisé donne des eaux gravitaires un peu plus acides que le système nu.

## 2. Carbone organique total (COT)

Les concentrations moyennes en COT des eaux gravitaires (tableau II) sont plus élevées sous granite que sous grès, sous système nu que sous système végétalisé, l'effet de la couverture végétale étant particulièrement marqué dans le système granite.

L'évolution du COT est remarquablement homogène dans tous les systèmes (figure 2). Les premiers percolats contiennent des teneurs en COT supérieures à  $130 \text{ mg.l}^{-1}$ . Dès juin-juillet 1985 pourtant, les concentrations diminuent rapidement pour avoisiner  $50 \text{ mg.l}^{-1}$  en décembre 1985 ; elles restent stables durant l'hiver et le début du printemps ; puis elles augmentent à nouveau, atteignant un deuxième maximum en juin-juillet 1986. Ultérieurement, les teneurs diminuent pour se stabiliser entre 30 et  $50 \text{ mg.l}^{-1}$  en fin d'expérience. A partir de novembre 1986, la concentration de COT devient plus forte sous les systèmes végétalisés.

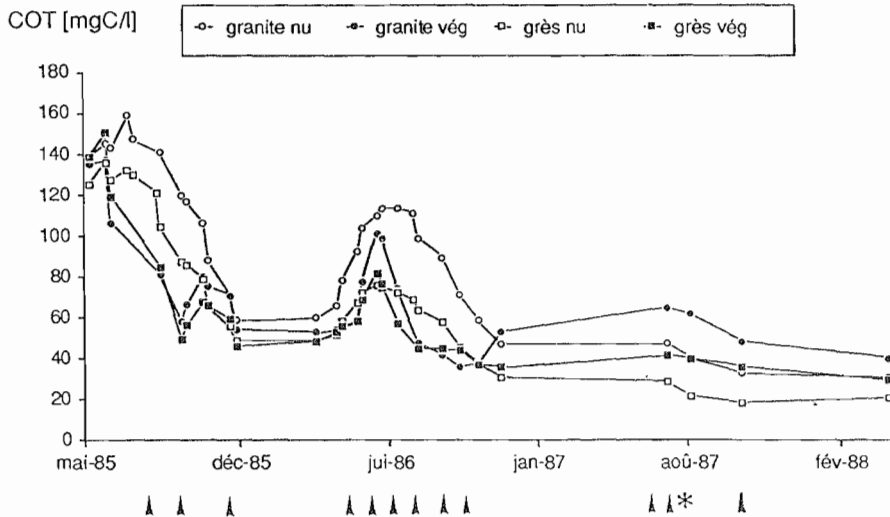


Figure 2 : Evolution de la concentration moyenne du carbone organique dissous (mg C/l) dans les eaux gravitaires. Légende : voir figure 1.

*Mean TOC pattern in gravitational waters (mg C/l).*

## 3. Cuivre

Les valeurs moyennes de concentration (tableau II) opposent les deux types de substrats minéraux : faibles concentrations sous le grès, fortes concentrations sous le granite. L'effet de la couverture végétale est peu marqué en système grès mais tend à réduire plus nettement les concentrations en système granite.

Dès les premières phases de drainage (figure 3), les concentrations en cuivre sont systématiquement plus élevées sous granite que sous grès et le demeurent pendant toute la durée de l'expérience. Jusqu'en novembre 1986, les concentra-

tions moyennes sont plus faibles en systèmes végétalisés ; au-delà de cette date pourtant, la tendance s'inverse et les concentrations deviennent supérieures en systèmes végétalisés.

L'évolution saisonnière est manifeste pendant l'année 1986. De manière comparable à ce que nous avons noté pour le COT, les mois de juin et de juillet 1986 correspondent aux concentrations maximales, l'amplitude des fluctuations étant plus marquée en système granite qu'en système grès.

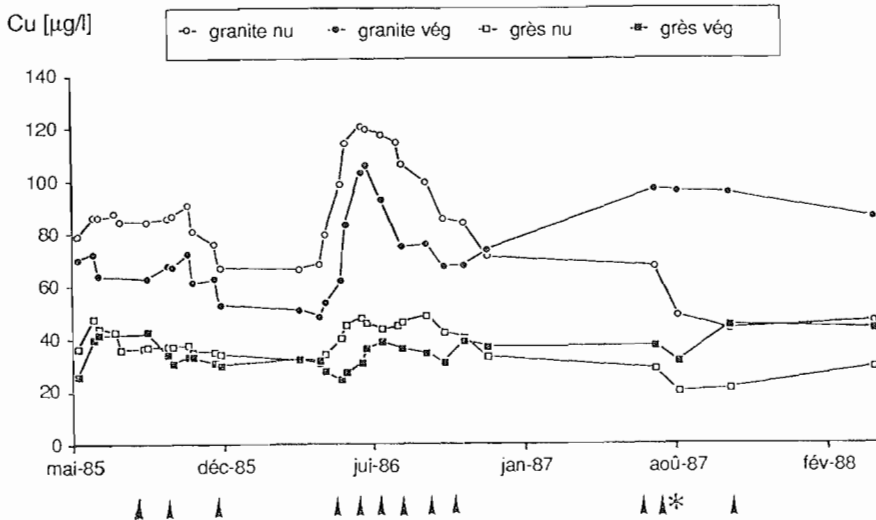


Figure 3 : Evolution de la concentration moyenne du cuivre total dissous ( $\mu\text{g/l}$ ) dans les eaux gravitaires. Légende : voir figure 1.

*Mean total copper concentration pattern in gravitational waters ( $\mu\text{g/l}$ ).*

#### 4. Zinc

Les valeurs moyennes de concentration des systèmes nus (tableau II) sont deux fois moins élevées sous grès que sous granite. L'effet de la couverture végétale diffère suivant la nature du substrat minéral : en système granite, on observe une réduction des concentrations, en système grès, une augmentation.

Deux parties distinctes composent la courbe de l'évolution temporelle des concentrations (figure 4) :

— de mai à décembre 1985, une diminution rapide des concentrations (de  $300 \mu\text{g.l}^{-1}$  à moins de  $50 \mu\text{g.l}^{-1}$ ) ;

— de décembre 1985 à la fin de l'expérience, une phase au cours de laquelle les concentrations restent plus stables (en dessous de  $50 \mu\text{g.l}^{-1}$ ). Nous constatons toutefois, depuis janvier 1987, une augmentation lente de la teneur en zinc des eaux gravitaires.

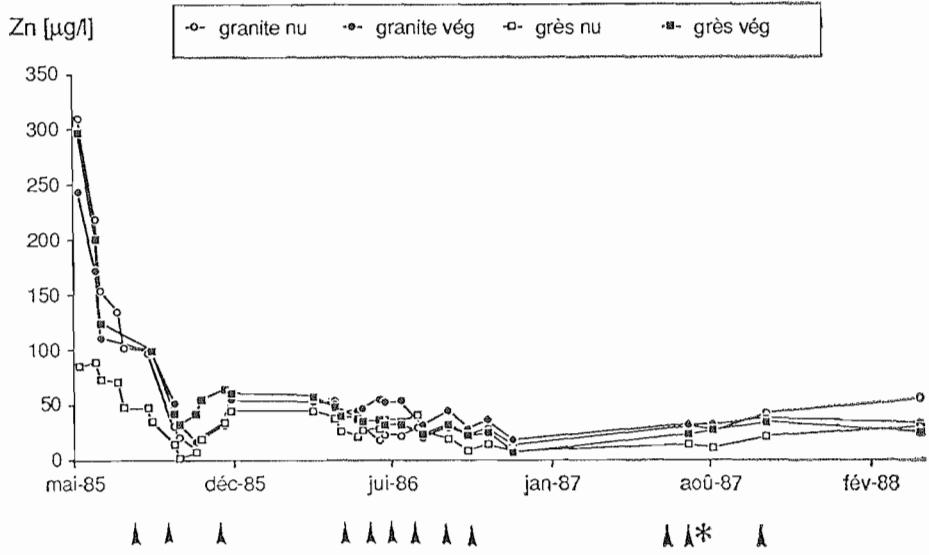


Figure 4 : Evolution de la concentration moyenne du zinc total dissous ( $\mu\text{g/l}$ ) dans les eaux gravitaires. Légende : voir figure 1.

*Mean total zinc concentration pattern in gravitational waters ( $\mu\text{g/l}$ ).*

### 5. Cadmium

Les concentrations moyennes (tableau II) opposent les substrats minéraux : les valeurs sont plus faibles sous grès que sous granite. L'effet de la couverture végétale est peu marqué en système granite mais pourrait accroître les concentrations moyennes en système grès.

L'évolution temporelle des concentrations des eaux gravitaires en cadmium (figure 5) suit de très près celle du zinc.

Les premières eaux de drainage présentent des concentrations comprises entre 1.6 et 2.0  $\mu\text{g.l}^{-1}$  en système granite, entre 0.45 et 0.70  $\mu\text{g.l}^{-1}$  en système grès. Après cette phase d'exportation qui met en évidence le rôle du substrat minéral, toutes les concentrations chutent en dessous du  $\mu\text{g.l}^{-1}$  ; dès juin 1986, les concentrations ne dépassent plus 0.2  $\mu\text{g.l}^{-1}$ .



Cd [ $\mu\text{g/l}$ ]

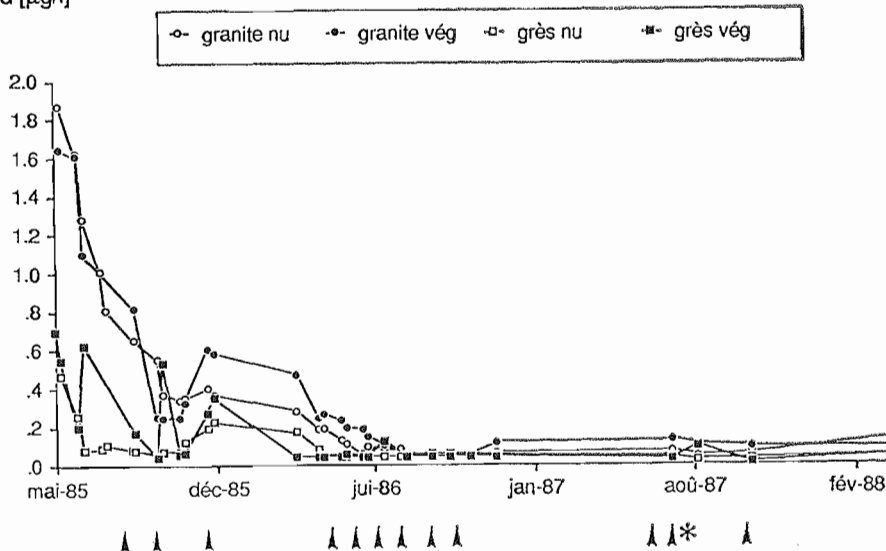


Figure 5 : Evolution de la concentration moyenne du cadmium total dissous ( $\mu\text{g/l}$ ) dans les eaux gravitaires. Légende : voir figure 1.

*Mean total cadmium concentration pattern in gravitational waters ( $\mu\text{g/l}$ ).*

B) BILANS DES EXPORTATIONS DE MÉTAUX LOURDS

1. Exportations par drainage

Après quatre années de drainage, l'exportation des métaux lourds par les eaux gravitaires est très faible, ne dépassant pas 0.4 % des quantités introduites avec le compost.

En système nu, c'est le cuivre qui est l'élément le plus éliminé par drainage ; viennent ensuite le zinc puis le cadmium.

Pour les deux substrats minéraux, la présence d'une couverture végétale limite les pertes par drainage (cuivre) ou ne les modifie que fort peu (cadmium) ; elle réduit l'exportation de zinc pour le granite mais l'accroît pour le grès (+ 60 %) (tableau III).

C'est en deuxième année que les pertes de cuivre sont les plus importantes (figure 7). A l'inverse, les exportations de zinc (figure 8) et de cadmium (figure 6) sont maximales la première année.

Tableau III : Exportation des métaux par les eaux gravitaires et par les plantes en fin d'expérience.

*Total quantities of metals exported in gravitational waters and in plants.*

		granite nu	granite végétalisé	grès nu	grès végétalisé
Cadmium [ $\mu\text{g}$ ] exporté	par la végétation		366.0		266.0
	par les eaux gravitaires	40.2	35.0	11.5	11.6
	total	40.2	401.0	11.5	277.6
Zinc [ $\mu\text{g}$ ] exporté	par la végétation		91'364		75'238
	par les eaux gravitaires	6'306	4'911	3'337	5'274
	total	6'306	96'275	3'337	80'512
Cuivre [ $\mu\text{g}$ ] exporté	par la végétation		6'019		5'259
	par les eaux gravitaires	9'188	5'164	4'411	2'522
	total	9'188	11'183	4'411	7'781

### Exportation du cadmium

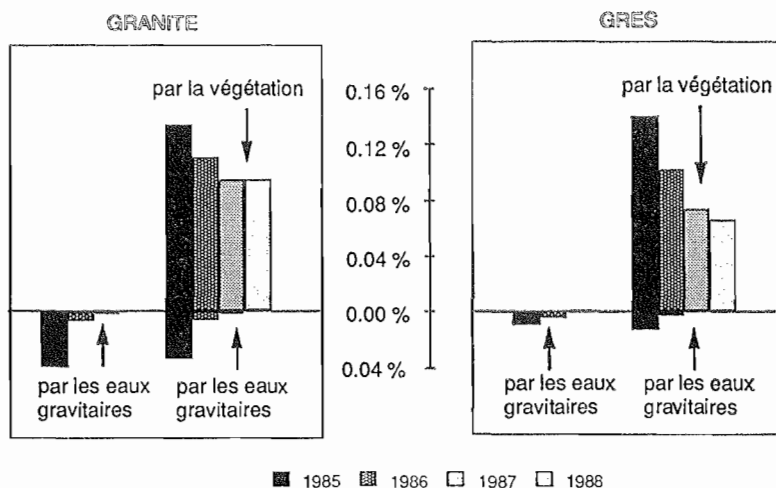


Figure 6 : Exportation du cadmium par les eaux gravitaires et par la végétation, exprimée en pourcentage de la quantité de cadmium introduite avec le compost, au cours des quatre années de l'expérience.

*Mean total cadmium concentration pattern in gravitational waters ( $\mu\text{g/l}$ ).*

### Exportation du cuivre

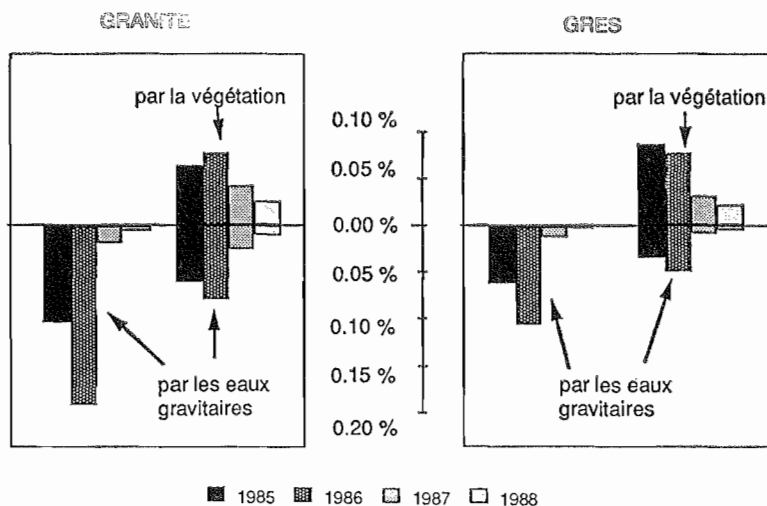


Figure 7 : Exportation du cuivre par les eaux gravitaires et par la végétation, exprimée en pourcentage de la quantité de cuivre introduite avec le compost, au cours des quatre années de l'expérience.

*Copper exported in gravitational waters and in vegetation.*

## Exportation du zinc

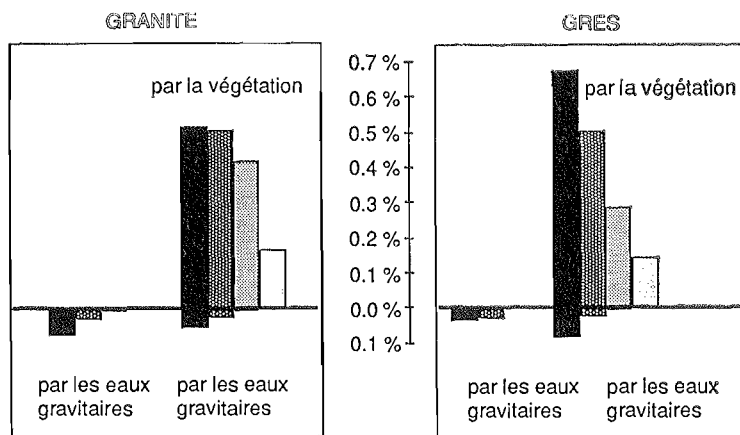


Figure 8 : Exportation du zinc par les eaux gravitaires et par la végétation, exprimée en pourcentage de la quantité de zinc introduite avec le compost, au cours des quatre années de l'expérience.

*Zinc exported in gravitational waters and in vegetation.*

## 2. Exportations par absorption racinaire

Comme on l'a mentionné précédemment, la moitié des lysimètres a été végétalisée, au départ de l'expérience, par repiquage de 6 pieds de ray-grass italien et de 6 pieds de trèfle violet.

La gestion de cette couverture végétale a été la suivante : 15 coupes sur 4 ans à raison de 3 la première année, 6 la seconde année, 3 la troisième année et 3 la quatrième année. Chaque récolte porte sur l'ensemble de la production aérienne. En août 1987, le dépérissement des plantes dû à une phase de sécheresse trop forte a entraîné la nécessité d'un nouveau repiquage qui s'est effectué suivant les mêmes modalités qu'au démarrage de l'expérience ; notons que la nouvelle implantation s'est faite sans élimination préalable du système racinaire de la précédente couverture.

La production totale de matière sèche ne semble pas dépendre du substrat minéral.

Les concentrations en métaux lourds mesurées dans les plantes sont de l'ordre de  $1 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour le cadmium,  $15 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour le cuivre et  $220 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour le zinc, les valeurs étant légèrement plus élevées dans les plantes des systèmes grès. Ces valeurs dépassent nettement les concentrations mesurées dans des plantes herbacées monocotylédones et dicotylédones ayant poussé sur des sols naturels non contaminés ( $0.01$  à  $0.3 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour Cd,  $2$  à  $19 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour Cu et  $10$  à  $115 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour Zn) (ALLEN et al., 1974), les valeurs critiques déterminées par MacNICOL et BECKET (1985) comme seuils de toxicité pour les végétaux étant de  $5 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour Cd,  $10 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour Cu et  $100 \mu\text{g.g}^{-1}$  pour Zn. Dans le cas du zinc et du cadmium, l'exportation par la plante excède largement l'exportation par drainage : en fin de quatrième année, le rapport (masse exportée par la plante/masse exportée par drainage) se monte à 186 (Zn, granite) et à 14.3 (Zn, grès), à 10.5 (Cd, granite) et à 22.9 (Cd, grès). Pour le cuivre, ce rapport est plus faible : il est de 1.2 pour le granite et de 2.1 pour le grès. BERTET et al. (1984) observent également, dans un essai d'une année

une exportation du zinc par les eaux gravitaires beaucoup plus faible que celle réalisée par diverses espèces de plantes cultivées. Les valeurs qu'ils rapportent permettent de calculer un rapport (masse exportée par la plante/masse exportée par drainage) variant de 6.6 à 22.2 suivant l'espèce végétale cultivée.

### III. DISCUSSION

L'étude du transfert en système lysimétrique de Cd, Cu, Zn par les eaux gravitaires nous permet, en fonction du protocole expérimental choisi, de préciser : 1) le rôle du substrat minéral, 2) le rôle de la couverture végétale, sur la dynamique d'exportation de ces métaux lourds par drainage et, le cas échéant, par absorption racinaire, en relation avec certains paramètres physico-chimiques du milieu.

#### A) CONSIDÉRATIONS GÉNÉRALES

L'exportation de Cd, Cu, Zn par drainage est négligeable, quantitativement et en pourcentage des teneurs introduites par le compost. Cette constatation démontre la faible mobilité originelle des métaux lourds dont les 99 % sont introduits par les boues d'épuration entrant dans la composition du compost. De nombreux autres travaux (voir par exemple WILLIAMS et al., 1980, O'CONNOR et al., 1983, CLINE et O'CONNOR, 1984, RAPPAPORT et al., 1988) ont montré que la presque totalité des métaux lourds introduits par des boues d'épuration, compostées ou non, restent dans les sols. L'extraction séquentielle des métaux lourds d'une boue d'épuration digérée en anaérobiose met en évidence que les formes « échangeables » et « adsorbées » représentent, pour Cd et Zn d'une part, pour Cu d'autre part, moins de 0.2 % et moins de 1.6 % des quantités totales ; conjointement, ce sont les formes liées aux carbonates et les formes résiduelles qui prédominent pour le Cd, les formes liées aux matières organiques pour le Cu, les formes liées aux carbonates pour le Zn (EMMERICH et al., 1982). Cette faible mobilité originelle est peu altérée par le compostage à quelques nuances près liées à des modifications du spectre biochimique des fractions humifiées : diminution de l'humine et augmentation des acides fulviques et humiques (SIMEONI et al., 1984). De toute évidence aussi et comme nous le montrent les premiers résultats du fractionnement des métaux lourds de la matrice (résultats non publiés), cette faible mobilité originelle est également peu altérée par une évolution de quatre ans conduite en l'absence de couverture végétale.

En système nu, le cuivre est l'élément qui est, en pourcentage de l'apport initial, le plus exporté par drainage ; viennent suite le zinc puis le cadmium. Ce résultat peut paraître surprenant, la littérature s'accordant pour reconnaître au cuivre une mobilité moindre que celles du zinc et du cadmium. Le cuivre présente, en effet, une affinité particulièrement élevée pour les minéraux argileux, les hydroxydes amorphes de fer et d'aluminium, les oxydes de fer et de manganèse sans oublier les matières humiques avec lesquelles il se combine dans des réactions de complexation et de chélation ; de plus, des interactions avec la microflore du sol sont possibles : certains types de bactéries peuvent accumuler du cuivre (MILLER, 1981).

Lorsqu'on considère cependant la dynamique annuelle d'entraînement sur 4 ans, on constate que l'exportation maximale de Cu se produit pendant la deuxième année de drainage alors que les transferts de Cd et Zn par les

eaux gravitaires sont immédiats et principalement réalisés au cours de la première année. Dans ces conditions il faut admettre que le cuivre présente un entraînement retardé que l'on pourrait expliquer au travers d'une approche de la spéciation de ces éléments en solution. Nous avons en effet montré (DOMERGUE et VEDY, 1988) que l'essentiel du cuivre des eaux gravitaires était chargé négativement et associé à des composés organiques dont la taille était plus grande ou égale à 1000 Daltons, donc essentiellement sous forme complexée ; à l'inverse le zinc était électropositif, principalement sous forme ionique  $Zn^{2+}$  ; c'est probablement aussi le cas du cadmium, l'analogie de comportement supposé entre le zinc et le cadmium étant conforté par le coefficient de corrélation entre le Cd et le Zn ( $r \approx + 0.7$ ). On peut mettre en évidence la relation entre le cuivre et la matière organique, spécialement évidente à partir de 1986 (comparer les figures 2 et 3), le coefficient de corrélation étant de  $r \approx + 0.8$  pour le granite. Cet entraînement retardé et prolongé du cuivre est subordonné à l'entraînement de la matière organique soluble.

## B) ROLE DU SUBSTRAT MINÉRAL

En système nu, les pertes de Cd, Cu, Zn sont, après quatre ans, plus conséquentes sous granite que sous grès : à l'évidence, le granite retient moins les métaux lourds que le grès. Parmi les facteurs évocables pour expliquer cette différence de comportement entre les deux substrats, il est difficile d'envisager la CEC (pH 7) des horizons ( $A_1$ ), 1,6 fois plus élevée dans le granite que dans le grès ; conjointement, les teneurs en fer et en aluminium extraits en milieu oxalate (Ox. ou Tamm) et en milieu citrate-bicarbonate-dithionite (CBD ou MEHRA-JACKSON) sont un peu plus grandes dans le ( $A_1$ ) sur granite. Ces différences, en faveur du granite, existent également dans l'horizon C. Actuellement on ne peut rester qu'au stade des hypothèses. Trois éventualités, au moins, demeurent :

— la première serait liée à l'acidité plus grande des eaux gravitaires sous granite avec pour conséquence une mobilité accrue des métaux : c'est notamment le cas du zinc et du cadmium dont les concentrations dans les eaux gravitaires augmentent lorsque le pH diminue.

— la seconde pourrait se rapporter aux capacités d'adsorption sur les argiles plus élevées dans le grès, ne serait-ce que pour des raisons de quantité en dehors de tout problème d'ordre minéralogique (2,4 fois plus d'argiles granulométriques dans le grès) ;

— la troisième ferait référence aux processus de minéralisation et d'humification et à leur importance relative. Comme nous l'avons montré par ailleurs (VEDY, 1973) une arène granitique favorise la minéralisation des matières organiques fraîches, alors qu'une arénite gréseuse tend, à l'inverse, à privilégier les processus d'humification. La concentration de matière organique en solution est d'ailleurs dans cet essai toujours plus élevée sous granite que sous grès.

Les deux premières hypothèses expliqueraient une immobilisation, dépendante du pH, du Cd et du Zn sur les argiles des substrats, ce qui serait en accord avec le fait que la rétention dans les sols du Cd et du Zn diminue lorsque le pH baisse (McBRIDE et BLASIAK, 1979, IYENGAR et al., 1981, HARTER, 1983, SANDERS, 1983, BARROW, 1986, KING, 1988) et que la teneur en argiles est le principal facteur influençant la rétention du Zn (LABAUVE et al., 1988) ; la troisième hypothèse tiendrait compte d'une exportation du cuivre qui dépendrait essentiellement de la concentration des complexants organiques pouvant passer dans les eaux gravitaires, limitant ainsi l'adsorption du cuivre ionique par les argiles des substrats minéraux. Ce point de vue est également défendu par DUDLEY et al. (1986) et par KONIG et al. (1986).

### C) ROLE DE LA COUVERTURE VÉGÉTALE

L'activité racinaire se traduit par un accroissement de la mobilité des métaux lourds qui sont, en quasi totalité, accumulés par la plante. Ainsi, la présence d'une couverture végétale, bien qu'augmentant l'exportation totale et donc la mobilité de Cd, Cu, Zn, n'accroît pas les pertes par drainage. Tout se passe comme si les métaux mobilisés au niveau de la rhizosphère étaient entièrement absorbés par les plantes.

Le zinc et le cadmium, dont les quantités exportées par les eaux gravitaires sont très faibles en 1988 (figures 4 et 5) et qui semblent donc fixés dans le sol, sont encore sous une forme assimilable pour les végétaux en fin d'expérience : en effet, l'exportation du zinc et du cadmium par la végétation est relativement importante (voir figures 6 et 8). Dans cette étude, l'effet de la pollution du sol par des métaux lourds semble présenter un risque à plus long terme pour la contamination de la couverture végétale que pour celle des aquifères. En effet, la concentration des métaux dans les feuilles ne montre aucune tendance à la baisse, la diminution de l'exportation visible sur les figures 6, 7 et 8 étant due essentiellement à une baisse de la production végétale.

La caractérisation des espèces métalliques n'a été effectuée que dans les eaux gravitaires récoltées en dessous de l'horizon minéral ; on peut néanmoins admettre que dans la solution du sol au niveau de l'horizon (A<sub>1</sub>), le cuivre doit être essentiellement complexé par la matière organique, et le zinc et le cadmium sous forme libre. Les racines des plantes sont donc en contact avec des métaux ayant des formes chimiques bien différentes. Ceci permettrait d'expliquer le fait que la disponibilité du zinc et du cadmium est supérieure à celle du cuivre si l'absorption des métaux par les racines est effectivement proportionnelle à l'activité des métaux en solution et non à leur concentration totale dans le sol.

### CONCLUSION

Dans les conditions dans lesquelles s'est effectuée cette étude, le risque de lourds dans les eaux gravitaires, leur disponibilité pour les végétaux et les quantités totales exportées sont bien différentes selon le métal étudié : le cuivre, complexé par la matière organique, a une activité faible en solution, ce qui diminue son adsorption sur les argiles et son assimilation par les végétaux, facilitant son passage dans les eaux gravitaires. Au contraire, le cadmium et le zinc, essentiellement sous forme ionique, peuvent être immobilisés par adsorption sur les argiles et plus facilement assimilés par les plantes.

Dans les conditions dans lesquelles s'est effectuée cette étude, le risque de pollution des aquifères par les métaux lourds est minime, mais la charge totale du sol en métaux lourds est élevée, et il n'est pas certain que ces métaux se trouvent sous une forme complètement inerte (preuve en est la mobilisation importante au niveau de la rhizosphère) : le cadmium et le zinc pourraient facilement passer dans les eaux gravitaires en cas d'acidification du système, et le cuivre être mobilisé si la concentration de composés organiques solubles augmente. On ne peut donc que conseiller d'utiliser pour des expériences de revégétalisation des composts très peu pollués.

Si une seule application de compost suffit à la formation d'un sol à partir d'un substrat minéral, la solution pourrait être acceptable à court terme en ce qui concerne la pollution des aquifères, mais même dans ce cas, on

peut se demander ce qu'il faut faire des végétaux : peut-on les utiliser comme fourrage, les composter sur place ou les brûler ?

Ce travail est financé par le Fond national Suisse de la recherche scientifique (projet n° 2.169-0.83). Nous tenons à remercier Christiane RENAUD-BEZOT et Catherine STREHLER pour leur collaboration.

Reçu pour publication : Mai 1989

Accepté pour publication : Juillet 1989

### BIBLIOGRAPHIE

- ALLEN S.E., GRIMSHAW H.M., PARKINSON J.A. and QUARMBY C., 1974.** — Chemical analysis of ecological materials, Blackwell Scientific Publications Efd S.E. Allen 565 pp.
- AYERST J.M., 1978.** — The effect of compaction of coal shale on the revegetation of spoil heaps. *Reclamation Review* 1, 27-30.
- BARROW N.J., 1986.** — Testing a mechanistic model. IV. Describing the effects of pH on zinc retention by soils. *Journal of Soil Science* 37, 295-302.
- BERTHET J., AMIARD J.C., AMIARD-TRIQUET C. et METAYER C., 1984.** — Etude expérimentale de la relation entre la forme physico-chimique du zinc et sa disponibilité à l'égard des végétaux cultivés, Application à l'utilisation agricole de boues de stations d'épuration. *Plant and Soil* 82, 231-246.
- CHAWLA V.K., YIP J. and COHEN D.B., 1976.** — Recycling of liquid digested sewage sludge on dredged river sand. *Environ. Canada Report No. EPS 4-WP-76-3.*
- CLINE G.R. and O'CONNOR G.A., 1984.** — Cadmium sorption and mobility in sludge-amended soil. *Soil Science* 138, 248-254.
- DAM KOFOED A., 1983.** in : *Utilisation of Sewage Sludge on Land : Rates of Application and Long-Term Effects of Metals.* CEC Proc. Uppsala 7-9 June 1983, Eds Berglund S., R.D. Davis and P. L'Hermite. D. Reidel Publishing Compagny.
- DOMERGUE F.-L. and VEDY J.-C., 1988.** — Heavy metal speciation in lysimetric waters issued from composted sludge/mineral substrat soil profiles. In *Heavy Metals in the Hydrological Cycle.* Eds M. Astruc and J.N. Lester. Publications Division, Selper Ltd., London. Printed by Printext Ltd., London, pp. 119-126.
- DUDLEY L.M., McNEAL B.L. and BRAHAM J.E., 1986.** — Time-dependant changes in soluble organics, copper, nickel and zinc from sludge amended soils. *J. Environ. Qual.* 15, 188-192.
- EMMERICH W.E., LUND L.J., PAGE A.L. et CHANG A.C., 1982.** — Solid Phase Forms of Heavy Metals in Sewage Sludge-Treated Soils, *J. Environ. Qual.* 11, 178-181.
- HALL J.E. and E. VIGERUST, 1983.** — The use of sewage sludge in restoring disturbed and derelict land to agriculture, pp. 91-102. In : *Utilisation of Sewage Sludge on Land : Rates of Application and Long-term Effects of Metals.* CEC Proc. Uppsala 7-9 June 1983, Eds Berglund S., R.D. Davis and P. L'Hermite. D. Reidel Publishing Compagny.
- HARTER R.D., 1983.** — Effect of soil pH on adsorption of lead, copper, zinc and nickel, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 47, 47-51.
- HINESLY T.D., REDBORG K.E., ZIEGLER E.L. and ROSE-INNES I.H., 1982.** — Effects of chemical and physical changes in strip-mined spoil amended with sewage sludge on the uptake of metals by plants, pp. 339-352. In *Land Reclamation and Biomass Production with Municipal Wastewater and sludge.* Eds. W.F. Sopper. E.M. Leakes and R.K. Bastian, Pennsylvania State University Press, University Park PA.

- IYENGAR S.S., MARTENS D.C. and MILLER W.P.**, 1981. — Distribution and plant availability of soil zinc fraction. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 45, 735-739.
- KELLER C., BOURRIE G. and VEDY J.-C.**, 1987. — Formes de l'alcalinité dans les eaux gravitaires : influence des métaux lourds contenus dans les composts. *Science du sol* 25, 17-29.
- KING L.D.**, 1988 — Retention of cadmium by several soils of the southeastern United States. *J. Environ. Qual.* 17, 246-250.
- KONIG N., BACCINI P. and ULRICH B.**, 1986. — Der Einfluss der natürlichen organischen Substanzen auf die Metallverteilung zwischen Boden und Bodenlösung in einer sauren Waldboden. *Z. Pflanzenernaehr. Bodenk.* 149, 68-82.
- LABAUVE J.M. KOTUBY-AMACHER J. and GAMBRELL R.P.**, 1988. — The effect of soil properties and a synthetic municipal landfill leachate on the retention of Cd, Ni and Zn in soil and sediment materials. *Journal WPCF* 60, 379-385.
- MacNICOL R.D. and P.H.T. BECKET**, 1985. — Critical tissue concentrations of potentially toxic elements. *Plant and Soil* 85, 107-129.
- McBRIDE M.B. and BLASIAK J.J.**, 1979. — Zinc and copper solubility as a function of pH in an acid soil. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 43, 866-870.
- MILLER W.D.**, 1981. — Sequential extraction of Cu from soil components and Cu-amended soils. Ph. D. Thesis. Virginia Polytechn. Inst. and State University, Blackburg. 162 pp.
- O'CONNOR G.A., ESSINGTON M.E., ELRASHIDI M. and BOWMAN R.S.**, 1983. — Nickel and zinc sorption in sludge-amended soils. *Soils Science* 135, 228-235.
- RAPPAPORT B.D., MARTENS D.C., RENEAU R.B. Jr and SIMPSON T.W.**, 1988. — Metal availability in sludge-amended soils with elevated metals levels. *J. Environ. Qual.* 17, 42-47.
- RENAUD-BEZOT Christiane**, 1986. — Interactions compost-supports minéraux en systèmes lysimétriques : 1. variations saisonnières de la composition chimique des eaux gravitaires au cours des 5 premiers mois de drainage. *Bull. Soc. Suisse de Pédologie* (10), pp. 11-24.
- SANDERS J.R.**, 1983. — The effect of pH on the total and free ionic concentrations of manganese, zinc and cobalt in soil solutions. *Journal of Soil Science* 34, 315-323.
- SAUEBERCK D.**, 1987. — Effects of agricultural practices on the physical, chemical and biological properties of soils : part II - Use of sewage sludge and agricultural wastes. *Scientific Basis for Soil Protection in the European Community*, CEC, Elsevier Applied Science, edited by H. Barth and P. L'Hermitte, CEC, Brussels, Belgium, pp. 181-210.
- SIMEONI L.A., BARBARICK K.A. and SABEY B.R.** 1984. — Effect of Small-Scale Composting of Sewage Sludge on Heavy Metals Availability to Plants. *J. Environ. Qual.* 13, 264-269.
- STREHLER C. and VEDY J.-C.**, 1987. — Dynamics of Cd, Cu and Zn in composted sludge/mineral substrate lysimetric systems. *Coll. « Vulnerability of Soil and Groundwater to Pollutants »*, Int. Conf. Noordwijk aan See, The Netherlands, March 30-April 3, pp. 687-690.
- TARRADELLAS J., MUNTAU H. and BECK H.**, 1985. — Abundance and analysis of PCBs in sewage sludge in : Processing and use of organic sludge and liquid agricultural wastes, CEC IV International Symposium Rome, Italy, 8-11 October 1985, Ed. P. L'Hermitte, D. Riedel Publishing Company pp. 124-149.
- VEDY J.-C.**, 1973. — Relations entre le cycle biogéochimique des cations et l'humification en milieu acide. Thèse Doc. Etat, Université Nancy I, 115 pp.
- WILLIAMS D.E., VLAMIS J., PUKITE A.H. and COREY J.E.**, 1980. — Trace element accumulation, movement, and distribution in the soil profile from massive application of sewage sludge. *Soil Science* 129, 119-132.