

Estimation des apports agricoles et des retombées atmosphériques en éléments en traces et majeurs grâce à un essai de longue durée (dispositif Dehérain à Grignon)

D. Baize⁽¹⁾ et S. Bourgeois⁽²⁾

(1) INRA - Orléans - Science du Sol - BP 20619. 45166 Olivet Cedex

(2) INA Paris-Grignon - Agronomie et Environnement. 78850 Thiverval - Grignon

RÉSUMÉ

Des échantillons de sols prélevés depuis 1938 sur le dispositif Dehérain à Grignon ont été analysés. Les teneurs en 13 éléments en traces ou majeurs ont été déterminées pour quatre dates différentes et trois traitements distincts. L'objectif était d'estimer les flux d'apports correspondant à une agriculture normale et les retombées atmosphériques sur 61 ans. Les labours ayant été approfondis deux fois, des raisonnements en stocks s'imposent mais se heurtent aux incertitudes sur les masses volumiques apparentes des prélèvements du passé. Les stocks calculés pour le mercure sont déjà extrêmement élevés en 1938, puis croissent et ensuite décroissent fortement. L'origine du mercure demeure mystérieuse. Les seules certitudes concernent le flux de phosphore apporté par la fertilisation (+ 167 g.m⁻² en 61 ans) et les quantités de cadmium, de zinc et de plomb des retombées atmosphériques qui ont pu être estimées respectivement à 0,049 - 1,54 et 4,0 g.m⁻² sur 61 ans. Ces valeurs sont compatibles avec les résultats d'autres études similaires.

Mots clés

Éléments en traces, éléments majeurs, cadmium, mercure, retombées atmosphériques, essai de longue durée, Yvelines.

SUMMARY

ASSESSMENT OF AGRICULTURAL INPUTS AND ATMOSPHERIC DEPOSITION OF TRACE AND MAJOR ELEMENTS THANKS TO A LONG-TERM TRIAL (Dehérain experimental plots at Grignon - France)

Soil samples taken on the Dehérain experimental plots in 1938 and later were analysed. Concentrations in thirteen trace and major elements were determined for four sampling dates and three different treatments. The aim was to assess fluxes of metals supplied by usual agriculture and atmospheric deposition through a 61 years period. The ploughed layer was deepened twice so stocks calculation were necessary but we came up against uncertainty about bulk densities of ancient samples. The stocks of mercury calculated were already very high in 1938 then they markedly increased and later they decreased strongly. The origin of mercury remains mysterious. The only certain results are related to the amount of phosphorus supplied by fertilisers (167 g.m⁻² over 61 years) and the fluxes of air-borne cadmium, zinc and

lead which can be assessed respectively at 0,049 - 1,54 and 4,0 g.m² over 61 years. These values are compatible with the results of other similar studies.

Key-words

Trace elements, major elements, cadmium, mercury, atmospheric deposition, long-term trial, Yvelines.

RESUMEN

ESTIMACIÓN DE LOS APORTES AGRÍCOLAS Y DE LAS CAÍDAS ATMOSFÉRICAS EN ELEMENTOS MAYORES Y EN TRAZAS GRACIAS A UN ENSAYO DE LARGA DURACIÓN (dispositivo Deherain a Grignon).

Se analizaron muestras de suelos tomadas desde 1938 sobre el dispositivo Deherain a Grignon. Los contenidos en 13 elementos trazas o mayores fueron determinados por cuatro fechas diferentes y tres tratamientos distintos. El objetivo era estimar los flujos de aportes que corresponden a una agricultura normal y las caídas atmosféricas durante 61 años. Las labranzas fueron profundizadas dos veces, los razonamientos en cantidad se imponen pero chocan contra las incertidumbres sobre las masas volumétricas aparentes de las muestras del pasado. Las cantidades calculadas para el mercurio son ya extremadamente elevadas en 1938, luego crecen y después decrecen fuertemente. El origen del mercurio queda misterioso. Las solas certidumbres conciernan el flujo de fósforo aportado por la fertilización (+ 167 g.m² en 61 años) y las cantidades de cadmio, de zinc y de plomo de las caídas atmosféricas que pudieron ser estimadas respectivamente a 0,049 - 1,54 y 4,0 g.m² en 61 años. Estos valores son compatibles con los resultados de otros estudios similares..

Palabras claves

Elementos trazas, elementos mayores, cadmio, mercurio, caídas atmosféricas, ensayo de larga duración, Yvelines.

En 1875, P. Dehérain créa dans l'enceinte de l'école de Grignon (Yvelines) un champ d'expérience de longue durée qui existe toujours et porte son nom. R. Morel et de nombreux chercheurs ont travaillé sur ce dispositif sur des thématiques variées : N, P, K, Mg, matière organique, microflore, biomasse microbienne (Morel *et al.*, 1976; Morel *et al.*, 1984; Houot et Chaussod, 1995).

L'historique complet de chacune des 79 parcelles est bien connu et de nombreux prélèvements de sols, réalisés en 1938 et ultérieurement, ont été conservés dans de bonnes conditions. Il nous a paru intéressant de récupérer pour analyses un certain nombre d'échantillons stockés et de réaliser en même temps l'analyse du sol de certaines parcelles en 1999, en ce qui concerne sept métaux traces (Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn) et certains éléments majeurs. L'objectif était d'estimer par différence les flux d'apports correspondant à une agriculture normale (fertilisation, fumiers) ainsi que les flux de retombées atmosphériques en région parisienne entre 1938 et 1999.

Des études similaires ont déjà été faites sur échantillons de sols archivés à l'occasion d'expérimentations de longue durée. L'une d'elle a été menée en Grande Bretagne à Rothamsted (Johnston & Jones, 1992). Une autre a porté sur le dispositif des 42 parcelles de Versailles, mis en place en 1928 (Juste et Tauzin, 1986).

MATÉRIEL ET MÉTHODES

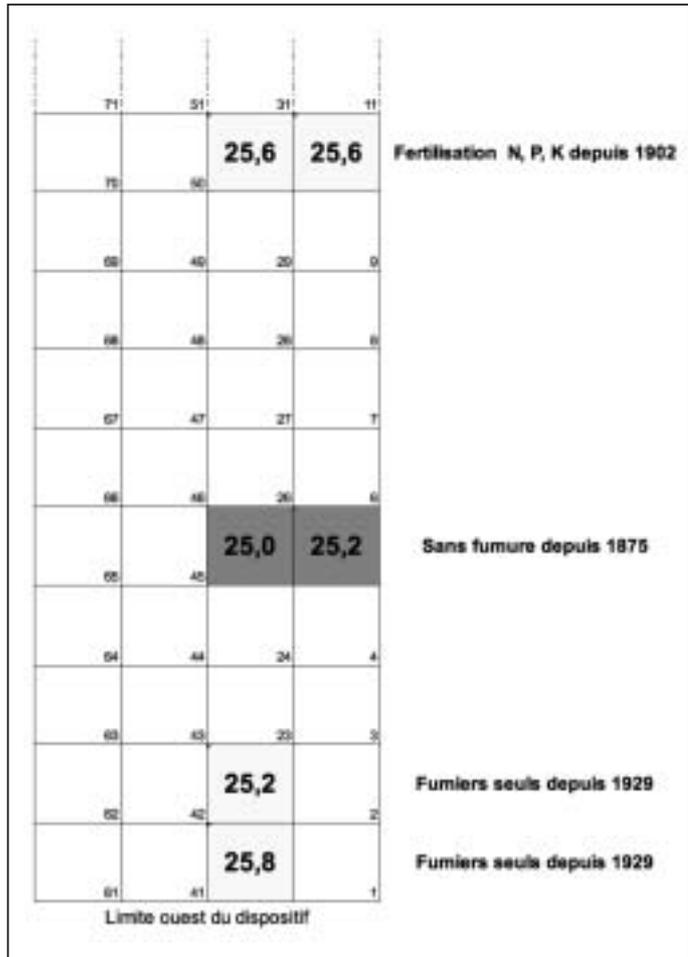
Sol et climat

Situé sur une sorte de replat en bordure du Ru de Gally, tout en bas d'un versant recoupant successivement diverses roches sédimentaires (limons quaternaires, calcaires et marnes du Lutétien, craie du Campanien), le sol du dispositif s'avère très homogène au point de vue physico-chimique (pH compris entre 8,2 et 8,5) et granulométrique (*figure 1*). Les horizons supérieurs sont faiblement calcaires dans la terre fine (de 4,2 à 7,8 g.100 g⁻¹ en surface). Épais de 70 à 100 cm, ils présentent une couleur brun-ocre assez vive (10 YR 4,5/3,5 à l'état humide entre 40 et 60 cm) et leur texture est limono-argileuse (environ 25 g.100 g⁻¹ de particules < 2 µm; 20 g.100 g⁻¹ de limons fins; 36 g.100 g⁻¹ de limons grossiers; 14 g.100 g⁻¹ de sables fins; 5 g.100 g⁻¹ de sables grossiers). Les taux de calcaire vont croissant avec la profondeur et l'on passe progressivement à une formation de pente crayeuse blanchâtre. Selon Morel *et al.* (1976), le sol présenterait un caractère essentiellement colluvial.

Cette homogénéité morphologique et granulométrique autorise des comparaisons pertinentes entre les différentes parcelles du dispositif (même minéralogie, même fond pédogéochimique naturel local).

Figure 1 - Dispositif géométrique des six parcelles étudiées et teneurs en argile (en g.100 g⁻¹) mesurées en 1999 dans l'horizon de surface.

Figure 1 - Geometrical arrangement of the six plots studied and clay contents measured in 1999 in the surface horizons (expressed as g.100 g⁻¹).



L'environnement climatique du champ d'essai (période 1957-1974) se caractérise ainsi (Morel *et al.*, 1976) :

- * pluviométrie moyenne annuelle : 642 mm
- * excédant hivernal P-ETP = 179 mm (d'octobre à mars)
- * déficit estival ETP-P = 235 mm (d'avril à septembre).

Dispositif - Échantillonnage

Le dispositif expérimental est allongé ouest/est le long du Ru de Gally. Il est constitué de 79 parcelles de 10 x 10 m (Morel *et al.*, 1984).

Prélèvements et mesures 1999

Pour la présente étude, seule la partie sud-ouest a été ré-échantillonnée. Trois traitements ont été retenus, avec deux répétitions pour chacun :

Tableau 1 - Échantillons prélevés en 1999 ou récupérés dans les stocks. Année de prélèvement, numéros des parcelles et profondeurs.
Table 1 - Samples taken in 1999 or found among those kept in stock. Year of sampling, number of plot and depth.

		1938	1956	1980	1999
		surface	surface	surface	surface
sans rien	parcelles	n° 05 et 25			
	profondeur	(0-20 cm)	(0-25 cm)	(0-25 cm)	(0-30 cm)
fumier	parcelles	n° 21 et 22	n° 02 et 22	n° 21 et 22	n° 21 et 22
	profondeur	(0-20 cm)	(0-25 cm)	(0-25 cm)	(0-30 cm)
NPK	parcelles	n° 50 et 70	n° 10 et 30	n° 10 et 30	n° 10 et 30
	profondeur	(0-20 cm)	(0-25 cm)	(0-25 cm)	(0-30 cm)
		1938	1957	1972	1999
		"sous-sol"	"sous-sol"	"sous-sol"	"semi-profondeur"
sans rien	parcelles	n° 05 et 44	n° 05 et 25	n° 05 et 24	n° 05 et 25
	profondeur	?	(40-60 cm)	(25-50 cm)	(40-60 cm)
fumier	parcelles	n° 02 et 42	n° 02 et 22	n° 02 et 22	n° 21 et 22
	profondeur	?	(40-60 cm)	(25-50 cm)	(40-60 cm)
NPK	parcelles	n° 03 et 10	n° 03	n° 10 et 30	n° 10 et 30
	profondeur	?	(40-60 cm)	(25-50 cm)	(40-60 cm)

- "sans engrais depuis 1875"
parcelles n° 05 et 25 dites "sans rien"
- "fumier de bovins seulement depuis 1929"
parcelles n° 21 et 22 dites "fumier"
- et "fumure NPK depuis 1902"
parcelles n° 10 et 30 dites "NPK"

En octobre 1999 nous avons procédé à différents prélèvements et à des mesures *in situ*.

- prélèvements de l'horizon de surface (0-30 cm), composites de sept prises dans le carré central (3 m x 3 m) des six parcelles sélectionnées ;
- prélèvements d'un horizon semi-profond (situé entre 40 et 60 cm), composites de trois prises dans le carré central des six parcelles ;
- mesures de la masse volumique apparente de l'horizon de surface (trois répétitions) dans chaque parcelle, soit 18 mesures réalisées avec des cylindres de 500 cm³.

Récupération d'anciens prélèvements

En automne 1999 nous avons également récupéré des échantillons de terres fines stockés depuis 1938, étiquetés "surface" ou "sous-sol", à trois dates : 1938, 1956 (ou 1957) et 1980 (ou 1972). Ces dates ont été choisies afin de respecter, le mieux possible, un intervalle de 20 ans.

Nous n'avons pas pu toujours trouver des échantillons correspondant exactement aux parcelles et aux dates souhaitées pour les deux profondeurs. Mais nous avons tenu à toujours bien respecter

les trois traitements. Ainsi, n'ayant pas trouvé d'échantillons de "sous-sol" pour l'année 1980, nous les avons remplacés par des prélèvements de 1972 (entre 25 et 50 cm). Pour la même raison, les échantillons de "sous-sol" sélectionnés ont été prélevés en 1957 (entre 40 et 60 cm) alors que les horizons de surface correspondants ont été prélevés en 1956. Dernier exemple : les prélèvements de "sous-sol" de 1938 ne proviennent pas exactement des mêmes parcelles que celles échantillonnées *in situ* en 1999 (tableau 1).

On notera que les échantillons dits "sous-sol" ne correspondent pas aux mêmes profondeurs aux différentes dates. En outre, ce terme "sous-sol" ne nous paraît pas correct puisqu'il s'agit d'horizons de sols, non situés en surface (horizons structuraux Sca du Référentiel Pédologique).

Enfin, on ignore comment ces échantillons anciens ont été prélevés : prélèvement ponctuel ou échantillon composite ? Prises réparties sur l'ensemble des 100 m² ou seulement au centre des parcelles expérimentales ?

Analyses

Trois traitements x deux parcelles (répétitions) x deux profondeurs x quatre dates représentent 48 échantillons nouvellement prélevés ou récupérés parmi des échantillons stockés de longue date. Sur ces 48 échantillons de sols, le Laboratoire d'Analyse de Sols INRA d'Arras a procédé à un certain nombre de déterminations :

- caractérisation pédologique : carbone organique par oxydation sulfochromique (méthode Anne - NF X 31-109) ; pH dans l'eau (NF

X 31-103); CEC par percolation d'une solution d'acétate d'ammonium (méthode Metson - NF X 31-130), et granulométries par la méthode pipette (NF X 31-107);

- teneurs totales en six éléments majeurs (Fe, Ca, Mg, K, P, Mn) et en six métaux traces (Cd, Cu, Cr, Ni, Pb, Zn) après mise en solution par HF + HClO₄ (NF X 31-147). Il s'agit bien du potassium et du phosphore totaux et non des formes assimilables. La concentration en phosphore total est exprimée sous la forme de P₂O₅.
- teneur totale en mercure par une méthode spécifique (mise en solution par un mélange sulfo-nitrique à 60 °C - méthode INRA);

Toutes les analyses ont été réalisées dans le même laboratoire, selon les mêmes méthodes, entre novembre 1999 et février 2000. Toutes les concentrations en métaux traces et en manganèse sont exprimées en mg.kg⁻¹; les concentrations en C organique, Fe, Ca, Mg, K et P₂O₅ sont exprimées en g.100g⁻¹.

Informations complémentaires

- Les échantillons de sols récupérés dans les rayonnages de Grignon étaient stockés dans de grosses boîtes métalliques sous la forme de terre fine < 2 mm. Ils ont donc été prélevés puis préparés à l'émetteur-tamiseur mécanique à cylindres sans aucune précaution particulière vis-à-vis des éléments traces.

- Jusqu'en 1987, les pailles et débris végétaux n'étaient pas réincorporés au sol: l'exportation était donc supérieure à ce qu'elle a été ensuite. A partir de 1987 (introduction d'une culture de maïs), la fertilisation a été doublée dans les traitements "fumure NPK depuis 1902", passant de 40 à 80 kg de P par hectare et de 75 à 150 kg de K par hectare.

- Suivant l'évolution des techniques, la profondeur du labour est passée en 1954 de 20 à 25 cm (passage d'un bêchage à l'utilisation d'un motoculteur) et, en 1984, de 25 à 30 cm (labour avec un tracteur). A chaque fois, l'horizon de surface humifère et plus chargé en éléments traces ou majeurs anthropogènes (Pb, Cd, Zn, P) a été mélangé avec une partie de l'horizon sous-jacent, moins humifère et moins chargé en ces mêmes éléments. Cette hypothèse, qui correspond à la situation générale des sols en France, est confirmée par les résultats de 1938 (*tableaux 6 et 8*).

- En juin 1944 une bombe est tombée sur les parcelles 63-64-83-84 creusant un entonnoir de 10 m de diamètre et 3 m de profondeur (Morel *et al.*, 1984). La terre projetée alentour fut soigneusement enlevée.

- En 1974, une usine d'incinération d'ordures ménagères a été mise en service à Plaisir, à 2,4 km à vol d'oiseau et au sud-ouest du dispositif expérimental.

- Les rendements en maïs obtenus en 1987 variaient de 4 t de grains par ha pour le traitement "sans rien" à 8 t ha⁻¹ pour le traitement "NPK" (Houot et Chaussod, 1995).

Cette étude comporte cinq dimensions. D'abord les trois dimensions de l'espace géographique: il y a un haut (sud) et un bas

(nord), car le dispositif est situé au pied d'une longue pente faible; un amont (est) et un aval (ouest) puisqu'il est situé à proximité immédiate du Ru de Gally et parallèlement. De faibles gradients pourraient en résulter. L'axe vertical surface/profondeur est aussi à prendre en compte le long duquel des transferts ont pu avoir lieu.

La dimension temporelle est évidente, puisqu'on cherche à déterminer si des évolutions se sont produites de 1938 à nos jours avec des mesures intermédiaires en 1956 et 1980. Enfin, il y a la dimension traitements: des différences devraient être détectables entre ces trois traitements, fortement typés et maintenus à l'identique pendant presque un siècle.

RÉSULTATS ET DISCUSSION

Homogénéité de la parcelle 30 en 1999

Les 7 prises de l'horizon de surface du centre de la parcelle 30 (fumure NPK depuis 1902) ont été analysées séparément afin d'évaluer l'effet combiné de l'incertitude analytique et de la variabilité spatiale à l'échelle métrique et comparées à l'échantillon composite réalisé avec elles (*tableau 2*).

C'est le plomb qui semble l'élément le plus variable sur cette petite superficie de 9 m². Quelques singularités sont à noter: les teneurs en Zn et Cd du composite sont nettement supérieures à la fourchette des valeurs obtenues séparément pour les 7 prises, ainsi que le pH.

Homogénéité de la partie étudiée du dispositif

Cette homogénéité a été jugée en fonction des variables qui n'avaient aucune raison d'être modifiées par les différents traitements: le taux d'argile et les concentrations en fer, chrome et nickel. Les 6 taux d'argiles mesurés en surface sont identiques à 1 % près (*figure 1*). Les valeurs sont très semblables (*tableau 3*), tout au plus peut-on constater que les parcelles 30, 10 et 05 (situées au sud-est) sont un peu plus riches en Ni, Cr et Fe et contiennent moins de calcium que les trois autres, situées au sud-ouest. Il existe en effet un léger gradient de calcaire (donc de calcium) déjà très bien cartographié (Morel *et al.*, 1984 - p. 279).

Valeurs régionales de référence

Dans le cadre de la Collecte nationale INRA - ADEME (Baize *et al.*, 2005), nous disposons de statistiques sur les concentrations en éléments traces mesurées dans les horizons de surface de sols agricoles destinés à des épandages de boues d'épuration urbaines. Les résultats relatifs aux quatre départements agricoles d'Ile de France figurent au *tableau 4*.

Dans le cas particulier du mercure, nous disposons des résultats de l'étude portant sur 2 149 analyses d'horizons de surface de

Tableau 2 - Composition des sept prélèvements unitaires et de l'échantillon composite réalisés sur la parcelle 30.**Table 2** - Composition of the seven unit samples and composite sample taken on the plot number 30.

	C. org.	pH	Ca	Mg	K	Fe	Mn	Zn	P₂O₅	Pb	Cd
	g.kg ⁻¹		g 100 g ⁻¹	mg kg ⁻¹	mg kg ⁻¹	g 100 g ⁻¹	mg kg ⁻¹	mg kg ⁻¹			
30 a	9,9	8,3	1,90	0,38	1,24	2,22	493	61,8	0,192	50,5	0,447
30 b	10,8	8,3	1,84	0,40	1,28	2,28	489	63,0	0,196	52,7	0,475
30 c	10,6	8,3	1,70	0,39	1,28	2,25	496	60,5	0,190	50,5	0,456
30 d	11,0	8,3	1,75	0,39	1,27	2,27	501	60,8	0,192	48,1	0,456
30 e	10,3	8,3	1,83	0,40	1,31	2,30	481	62,1	0,197	50,7	0,471
30 f	9,8	8,2	1,57	0,39	1,30	2,29	491	64,2	0,182	46,3	0,445
30 g	9,9	8,3	1,84	0,40	1,30	2,32	506	60,5	0,190	51,4	0,475
moyenne	10,3	8,3	1,80	0,39	1,28	2,28	494	61,8	0,191	50,0	0,461
<i>Ecart-type</i>	<i>0,482</i>	<i>0,038</i>	<i>0,112</i>	<i>0,008</i>	<i>0,024</i>	<i>0,033</i>	<i>8,174</i>	<i>1,394</i>	<i>0,005</i>	<i>2,142</i>	<i>0,013</i>
composite	10,1	8,6	1,86	0,38	1,24	2,23	489	65,3	0,190	48,7	0,495

sols du Bassin parisien (Baize *et al.*, 2001). Cette étude a montré que la médiane des teneurs en mercure s'établissait à 0,05 mg.kg⁻¹ et que le neuvième décile valait 0,13 mg.kg⁻¹ (tableau 5).

Horizons non situés en surface

Nous commençons la présentation des résultats par ces horizons car, dans le cadre de notre étude, ils devraient montrer des compositions relativement proches de l'état naturel initial. Dans les tableaux 6 et 7, les moyennes d'un même traitement sont seules présentées quand les valeurs des deux répétitions sont voisines.

Résultats de 1938 (tableau 6)

On notera les teneurs assez élevées en cadmium (d'origine probablement naturelle en lien avec les matériaux calcaires environnants (Baize *et al.*, 1999) et en mercure (voir ci-dessus). La parcelle 05 est plus riche que les autres en Pb, Cu et Hg sans que l'on sache pourquoi. De même la parcelle 02 pour Cd et P₂O₅ et la parcelle 03 pour Cd.

Dans ces horizons non situés en surface mais encore peu profonds, les teneurs en ETM sont proches du niveau du fond pédogéochimique naturel local mais une influence de l'agriculture par descente mécanique (vers de terre) ou transferts verticaux n'est pas impossible. Des différences notables existent déjà entre les différents traitements et entre certaines répétitions. Il semble que l'on soit déjà assez loin de l'état naturel initial.

Résultats de 1999 (tableau 7)

L'impact des apports de fumier se fait bien sentir sur la teneur en carbone, même à cette profondeur (40-60 cm). Il se fait sentir également pour le cadmium et le phosphore. Une anomalie en plomb est constatée dans la parcelle n° 21, nette également pour Hg (et

Tableau 3 - Concentrations en Ni, Cr, Fe et Ca totaux des horizons de surface en 1999.**Table 3** - Total concentrations in Ni, Cr, Fe and Ca of surface horizons in 1999.

	parcelle	Ni	Cr	Fe	Ca
				g.100 g ⁻¹	g.100 g ⁻¹
NPK	n° 30	24,2	57,9	2,28	1,78
	n° 10	24,2	60,8	2,31	1,68
Sans rien	n° 25	21,8	56,6	2,21	2,39
	n° 05	23,1	56,6	2,30	1,81
Fumier	n° 22	22,4	54,4	2,21	3,03
	n° 21	22,9	54,8	2,24	3,11

peut-être pour Cu). Tout ceci est peut-être dû à une meilleure activité biologique (avec brassages) de l'ensemble de l'épisolum, bien au-delà de la seule couche labourée.

La fertilisation semble avoir eu un léger impact sur les teneurs en K total mais pas sur P₂O₅ total. Les teneurs en Hg ont baissé et peuvent être considérées comme redevenues quasiment normales (sauf cas de la parcelle n° 21).

Horizons de surface

Résultats de 1938 (tableau 8)

Une différenciation très nette apparaît déjà à cette époque entre les trois traitements pour P₂O₅ et Cd pour lesquels "NPK" > "fumier" > "sans rien". Pour K, le traitement "NPK" présente une teneur légèrement supérieure mais la différence est statistiquement non signi-

Tableau 4 - Horizons de surface de sols agricoles susceptibles de recevoir des boues d'épuration urbaines. Concentrations totales en métaux exprimées en mg.kg⁻¹. Mise en solution par HF + HClO₄ avant dosages. Départements Seine et Marne, Yvelines, Essonne et Val d'Oise.

Table 4 - Ploughed horizons of soils likely to be spread with urban sewage sludge. Total metal concentrations expressed as mg.kg⁻¹. Digestion by HF + HClO₄. Seine et Marne, Yvelines, Essonne and Val d'Oise.

	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn	< 2 µm g.100 g⁻¹
<i>Effectif</i>	1014	1028	1026	1029	1031	1028	932
1 ^{er} décile	0,16	30,5	8,3	12,2	21,0	41,0	13,8
1 ^{er} quartile	0,20	38,6	10,2	15,6	23,5	49,0	16,1
Médiane	0,26	45,3	12,4	19,5	26,4	56,0	19,0
3 ^e quartile	0,33	51,9	16,5	24,3	31,7	65,0	22,9
9 ^e décile	0,42	59,4	22,3	28,2	42,7	77,3	26,8

ficative. Dès 1938 l'effet des apports organiques se marque nettement dans les teneurs en carbone organique : "fumier" > "NPK" > "sans rien".

Les teneurs en Pb et Hg semblent déjà nettement différenciées selon les traitements. Pour le plomb, "NPK" > "fumier" > "sans rien", et les teneurs paraissent déjà élevées en valeurs absolues (*tableau 4*) à une époque où on ne peut évoquer l'impact du plomb lié au trafic automobile. Pour le mercure, "fumier" >> "NPK" > "sans rien" et les niveaux de teneurs sont tout à fait anormaux (*tableau 5*), correspondant à des niveaux de contamination importante. Cette concentration en mercure beaucoup plus forte des traitements "fumier" constitue-t-elle un indice pour en comprendre l'origine ?

Donc, dès 1938, les résultats montrent déjà des différenciations en fonction des trois traitements et des teneurs extraordinaires en mercure.

Tableau 5 - Concentrations en mercure dans les horizons de surface des sols du Bassin parisien (Baize *et al.*, 2001).

Table 5 - Mercury concentrations in surface horizons of soils of the Paris basin (Baize *et al.*, 2001).

	Hg
<i>effectif</i>	2149
1 ^{er} décile	0,03
1 ^{er} quartile	0,04
Médiane	0,05
3 ^e quartile	0,08
9 ^e décile	0,13
maximum	1,36

Présente étude : toutes les 24 valeurs comprises entre 0,38 et 1,62 mg.kg⁻¹

Tableau 6 - Concentrations (moyennes des deux répétitions ou valeurs unitaires) des horizons de "sous-sol" en 1938. Les valeurs nettement plus élevées sont en gras.

Table 6 - Concentrations (means or values of each plot) of "sub-soil" horizons in 1938. Markedly higher values are in bold.

	Parcelles	C org.	Cd	Pb	Cu	Hg	P₂O₅
		g.100 g ⁻¹	mg.kg ⁻¹	mg.kg ⁻¹	mg.kg ⁻¹	mg.kg ⁻¹	g.100 g ⁻¹
NPK	n° 03	0,83	0,432				
	moyenne			20,7	11,8	0,125	0,096
	n° 10	0,56	0,217				
Sans rien	n° 05	0,83		30,1	15,3	0,300	
	moyenne		0,231				0,093
	n° 44	0,70		22,7	13,1	0,170	
Fumier	n° 02	0,79	0,323				0,142
	moyenne			20,8	12,8	0,115	
	n° 42	0,56	0,182				0,074

Tableau 7 - Concentrations (moyennes des 2 répétitions ou valeurs unitaires) des horizons de semi-profondeur (40-60 cm) en 1999. Les valeurs nettement plus élevées sont en gras.

Table 7 - Concentrations (means or values of each plot) of medium-depth horizons (40-60 cm) in 1999. Markedly higher values are in bold.

	Parcelles	C org. g.100g ⁻¹	Pb mg.kg ⁻¹	Cd mg.kg ⁻¹	Cu mg.kg ⁻¹	Hg mg.kg ⁻¹	K g.100 g ⁻¹	P ₂ O ₅ g.100 g ⁻¹
NPK	n° 30 & 10	0,445	21,7	0,173	10,6	0,075	1,34	0,090
Sans rien	n° 25 & 05	0,560	19,6	0,234	10,3	0,050	1,29	0,083
Fumier	n° 22	0,640	19,7		11,4	0,080		
	moyenne			0,261			1,22	0,101
	n° 21	0,760	37,7		14,7	0,290		

Tableau 8 - Concentrations (moyennes des 2 répétitions) des horizons de surface (0-20 cm) en 1938. Les valeurs nettement plus élevées sont en gras.

Table 8 - Concentrations (means of both plots) of surface horizons (0-20 cm) in 1938. Markedly higher values are in bold.

	Parcelles	C org. g.100 g ⁻¹	P ₂ O ₅ g.100 g ⁻¹	K g.100 g ⁻¹	Hg mg.kg ⁻¹	Pb mg.kg ⁻¹	Cd mg.kg ⁻¹
NPK	n° 50 & 70	1,34	0,190	1,29	0,765	63,0	0,381
Sans rien	n° 05 & 25	1,16	0,122	1,23	0,595	52,9	0,303
Fumier	n° 21 & 22	1,45	0,168	1,23	1,340	61,5	0,349

Tableau 9 - Concentrations (moyennes des 2 répétitions) des horizons de surface (0-30 cm) en 1999. Les valeurs nettement plus élevées sont en gras.

Table 9 - Concentrations (means of both plots) of surface horizons (0-30 cm) in 1999. Markedly higher values are in bold.

	Parcelles	C org. g.100 g ⁻¹	P ₂ O ₅ g.100 g ⁻¹	K g.100 g ⁻¹	Hg mg.kg ⁻¹	Pb mg.kg ⁻¹	Cd mg.kg ⁻¹	Ni mg.kg ⁻¹
NPK	n° 10 & 30	1,035	0,196	1,290	0,505	51,7	0,461	24,2
Sans rien	n° 05 & 25	0,770	0,112	1,225	0,400	51,1	0,381	22,5
Fumier	n° 21 & 22	1,245	0,161	1,245	0,465	53,0	0,411	22,7

Résultats de 1999 (tableau 9)

Ces résultats confirment les différenciations que l'on pouvait attendre : par exemple des teneurs en P₂O₅, K et Cd totaux beaucoup plus fortes dans les parcelles fertilisées "NPK" que dans les autres parcelles ou des teneurs en C organique supérieures dans les parcelles "fumier" par rapport aux autres traitements. En règle générale, les traitements "sans rien" présentent les teneurs les plus faibles en tous les éléments anthropogènes (P₂O₅, K, Pb, Cd).

Évolutions temporelles des teneurs

La comparaison des teneurs moyennes mesurées pour chaque traitement aux quatre dates permet d'envisager les évolutions sur 61 ans. Un certain nombre de résultats étaient attendus et sont sim-

plement confirmés par les chiffres (C, P, Cd) ; d'autres paraissent plus difficiles à interpréter (Pb, Cu, K).

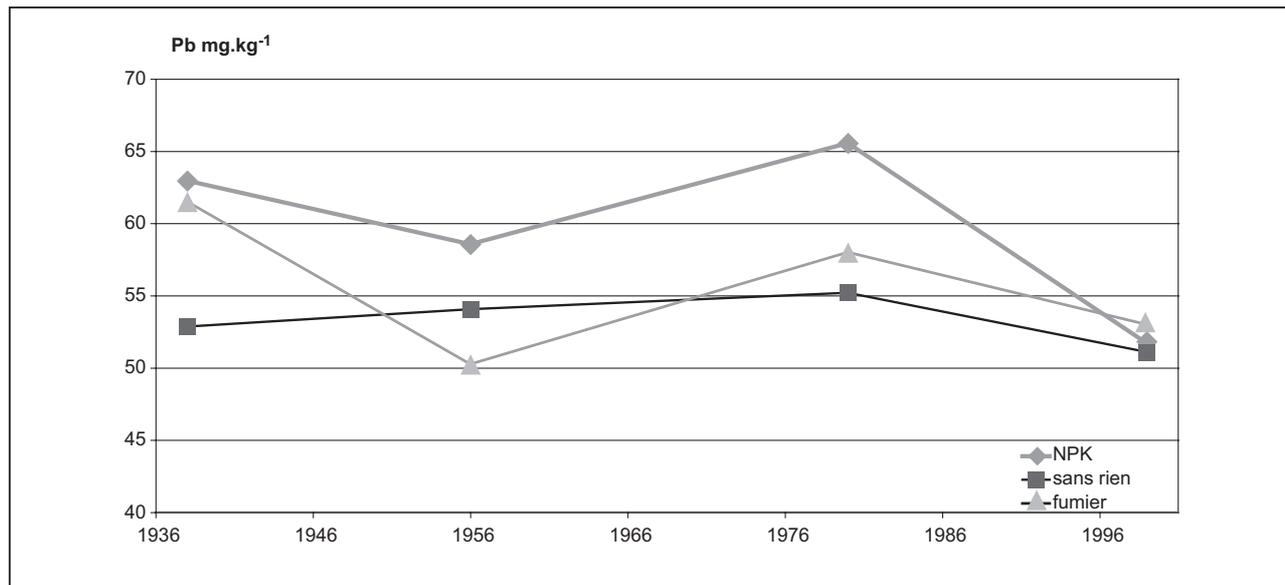
Les fortes variations attendues

On notera principalement (tableau 10) :

- une décroissance très nette du carbone organique dans les parcelles fertilisées "NPK" et surtout dans les parcelles sans aucune fumure ;
- une augmentation progressive du Cd pour les trois traitements, même celui sans fumure ;
- une tendance à la croissance du phosphore total dans les parcelles fertilisées "NPK" (malgré l'approfondissement des labours) mais plutôt à la diminution pour les autres traitements.

Tableau 10 - Évolution temporelle des teneurs en C, P₂O₅ et Cd dans les horizons de surface.**Table 10** - Changes through time of contents in C, P₂O₅ and Cd in surface horizons.

		1938	1956	1980	1999
Carbone org. g.100 g ⁻¹	NPK	1,340	1,050	1,040	1,035
	Sans rien	1,155	0,935	0,860	0,770
	Fumier	1,445	1,270	1,360	1,245
P₂O₅ g.100 g ⁻¹	NPK	0,190	0,176	0,213	0,196
	Sans rien	0,122	0,114	0,116	0,112
	Fumier	0,168	0,153	0,163	0,161
Cadmium mg.kg ⁻¹	NPK	0,381	0,408	0,458	0,461
	Sans rien	0,303	0,318	0,336	0,381
	Fumier	0,349	0,332	0,398	0,411

Figure 2 - Évolution temporelle des teneurs en plomb dans les horizons de surface.**Figure 2** - Evolution of Pb contents through time in surface horizons.

Les diminutions apparentes (tableau 11)

C'est le cas de Pb (figure 2) et de Cu dont les teneurs ont tendance à fluctuer mais dont les concentrations mesurées en 1999 sont nettement inférieures à celles de 1938. Les deux approfondissements des labours intervenus en 1954 et 1984 sont certainement les causes principales de ces fluctuations. En effet, les teneurs en Pb et en Cu sont bien plus faibles dans les horizons de "sous-sols" que celles mesurées en surface (tableaux 7 et 11), et l'approfondissement des labours a entraîné une dilution. Entre 1956 et 1980, on constate que les concentrations en plomb augmentent dans les trois traitements, en relation avec les retombées atmosphériques et notamment avec celles liées au trafic automobile.

Les teneurs en K dans les 3 traitements baissent après le pre-

mier approfondissement du labour. Puis elles remontent nettement malgré le deuxième approfondissement, dans les parcelles "NPK" (où la fertilisation potassique a doublé à partir de 1987) mais aussi dans les parcelles "sans rien" où pourtant il n'y a eu aucun apport direct.

Le nickel et les autres éléments "invariables" (tableau 11)

Ni est un bon exemple d'un élément non anthropogène qui ne montre pas de variation notable dans le temps. Il reste insensible aux deux approfondissements des labours car les teneurs en Ni de surface sont peu différentes de celles mesurées en profondeur. Il en va de même pour Cr et Fe (données non présentées).

Tableau 11 - Évolution temporelle des teneurs en Pb, Cu, K et Ni dans les horizons de surface.**Table 11** - Evolution of contents of Pb, Cu, K and Ni through time in surface horizons.

		1938	1956	1980	1999
Plomb mg.kg ⁻¹	NPK	63,0	58,6	62,5	51,7
	Sans rien	52,9	54,1	55,2	51,1
	Fumier	61,5	50,7	58,0	53,0
Cuivre mg.kg ⁻¹	NPK	27,0	23,3	25,5	22,4
	Sans rien	22,1	21,5	21,0	19,5
	Fumier	23,8	21,5	21,6	21,7
Potassium g.100 g ⁻¹	NPK	1,290	1,240	1,285	1,290
	Sans rien	1,230	1,165	1,200	1,225
	Fumier	1,230	1,160	1,240	1,245
Nickel mg.kg ⁻¹	NPK	25,5	24,0	24,2	24,2
	Sans rien	23,0	23,1	23,2	22,5
	Fumier	23,2	22,3	23,2	22,7

Le cas particulier du mercure (tableau 12)

Dans les échantillons de surface prélevés en 1938, on a dosé des teneurs très élevées, comprises entre 0,56 et 1,62 mg.kg⁻¹ (moyenne générale sur les 6 valeurs = 0,90). En 1956, les teneurs ont encore augmenté (0,83 à 1,30 mg.kg⁻¹ - moyenne générale = 1,13). Puis, de 1956 à 1980, elles diminuent très nettement (0,43 à 0,60; moyenne générale = 0,52). En 1999, elles valent de 0,38 à 0,53 mg.kg⁻¹ (moyenne générale 0,46), ce qui demeure nettement anormale (Baize *et al.*, 2001). Le mercure est connu pour être susceptible de volatilisation à température ambiante (Schlüter, 1993; Steinnes, 1995). Il est donc capable de redistribution à court terme et sur différentes distances. On voit mal cependant pourquoi apparaît une augmentation si importante entre 1938 et 1956.

Évolution des stocks

Les stocks ont été calculés aux quatre dates et pour les trois traitements pour les 30 premiers centimètres (tableau 13). Pour ces calculs, ont été prises en compte les teneurs mesurées, les profondeurs successives des labours et les masses volumiques apparentes (MVA) mesurées en 1999. Nous avons fait l'hypothèse que les MVA des horizons labourés n'avaient pas varié depuis 1938 et que celles des couches 20-30 et 25-30 cm valaient 1,40. Outre l'incertitude qui porte sur les analyses elles-mêmes, celle introduite par la méconnaissance des véritables MVA dans le passé pèse certainement assez lourd.

Dans l'interprétation que nous pourrions donner des résultats bruts de ces calculs (tableau 13), les exportations par les récoltes nous restent inconnues. De même, d'éventuelles pertes verticales, évoquées par différents auteurs (Camobreco *et al.*, 1996; McBride *et al.*, 1997; Richards *et al.*, 1998; Zhang, 2003), ne sont pas quantifiées. Dans notre cas, il ne s'agit pas d'épandages plus ou moins massifs de boues d'épuration comme c'est souvent le cas dans la litté-

rature internationale. Les pertes verticales par lixiviation sont probablement assez faibles, étant donné la granulométrie et le pH du sol dans son ensemble, mais elles ne peuvent pas être exclues. Le transfert mécanique de matières, particulièrement dans les parcelles où l'activité biologique est bien entretenue par l'apport régulier de fumiers est tout à fait envisageable. Nous avons vu que les horizons prélevés en 1999 entre 40 et 60 cm dans les parcelles "fumier" présentaient des teneurs en carbone organique nettement supérieures à celles mesurées dans les autres parcelles aux mêmes profondeurs (tableau 7). Une telle augmentation peut résulter de transferts de matières organiques sous différentes formes et certains éléments traces, même peu mobiles, peuvent avoir accompagné ces transferts.

Ces calculs impliquent également qu'il n'y a pas eu transferts de matières d'une parcelle vers l'extérieur, voire vers une parcelle voisine ayant subi un autre traitement. Williams *et al.* (1987), dans un champ expérimental présenté comme "a field sloping slightly from northeast to southwest" décrivent des mouvements latéraux du sol sur plusieurs mètres dans le sens de la pente, hors de la parcelle d'essai amendée initialement par des boues. Ce champ était régulièrement travaillé par un outil rotatif. Dans le cas du dispositif Dehérain, la pente est pratiquement nulle, l'érosion et le ruissellement ne peuvent pas être invoqués. En revanche, un transfert latéral de l'horizon de surface sur quelques mètres, suite au travail par un motoculteur (après 1954) puis par un tracteur (à partir de 1984) demeure possible. Selon Yingming and Corey (1993), sur la quantité de métaux retrouvés onze ans après application de boues hors d'une parcelle de 42 m², jusqu'à 3 m à l'extérieur de la parcelle traitée, 56 % sont partis selon l'axe de labour et 44 % perpendiculairement.

Étant donné que toutes les pertes en éléments traces et majeurs ayant éventuellement affecté les horizons de surface n'ont pas pu être quantifiées, les estimations des apports agricoles et des retom-

Tableau 12 - Évolution temporelle des teneurs en mercure dans les horizons de surface.*Table 12* - Changes of mercury contents through time in surface horizons.

		1938	1956	1980	1999
Mercure mg.kg ⁻¹	NPK	0,765	1,235	0,595	0,505
	Sans rien	0,595	0,910	0,470	0,400
	Fumier	1,340	1,255	0,505	0,465

Tableau 13 - Évolution temporelle des stocks calculés sur les 30 premiers centimètres.*Table 13* - Changes through time of stocks calculated for the first 30 centimetres.

		1938	1956	1980	1999	Évolution sur 61 ans
Cadmium mg.m ⁻²	NPK	140,7	163,0	186,3	200,1	59,4
	Sans rien	123,7	134,5	146,3	172,6	48,9
	Fumier	127,4	137,2	165,5	180,0	52,6
Plomb g.m ⁻²	NPK	21,1	22,8	24,7	22,4	1,3
	Sans rien	19,2	21,8	23,0	23,2	4,0
	Fumier	20,9	20,1	23,6	23,2	2,3
Zinc g.m ⁻²	NPK	25,8	26,3	28,1	27,0	1,25
	Sans rien	25,7	27,0	27,6	27,2	1,54
	Fumier	25,6	27,2	30,2	28,5	2,90
Carbone kg.m ⁻²	NPK	4,85	4,13	4,22	4,49	-0,36
	Sans rien	4,56	3,88	3,69	3,49	-1,07
	Fumier	5,17	5,03	5,52	5,45	0,28
Nickel g.m ⁻²	NPK	10,71	10,30	10,43	10,51	-0,20
	Sans rien	10,53	10,35	10,33	10,19	-0,34
	Fumier	10,48	9,79	10,06	9,94	-0,54
P₂O₅ g.m ⁻²	NPK	684	699	691	851	167
	Sans rien	498	487	502	507	9
	Fumier	603	626	672	705	102
Potassium kg.m ⁻²	NPK	5,59	5,40	5,56	5,60	0,01
	Sans rien	5,53	5,30	5,40	5,55	0,02
	Fumier	5,46	5,14	5,38	5,45	-0,01
Mercure mg.m ⁻²	NPK	239	459	232	219	-20
	Sans rien	204	355	194	181	-23
	Fumier	407	471	202	204	-203

bées atmosphériques à partir des variations temporelles des stocks seront des estimations par défaut.

Appauvrissement en carbone

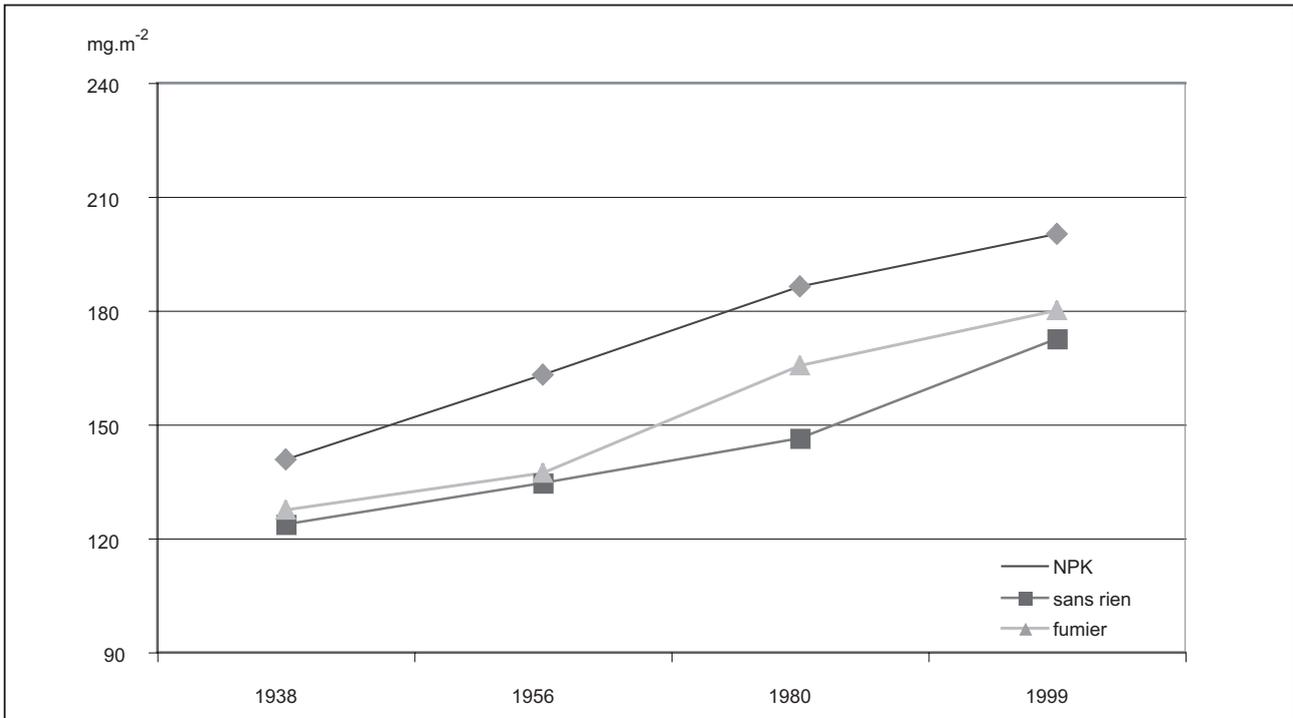
Ce phénomène est très net pour le traitement "sans rien" (de 4,56 à 3,49 kg.m⁻²). Celui amorcé entre 1938 et 1980 pour les parcelles "NPK" semble s'inverser après 1980, probablement grâce à l'enfouissement des pailles. Seul le traitement "fumier" permet de maintenir voire d'augmenter le taux de carbone dans l'horizon de surface.

Retombées atmosphériques

Les différences enregistrées entre 1938 et 1999 dans les parcelles "sans rien" permettent d'évaluer les apports par retombées atmosphériques. On constate en effet une augmentation continue des stocks de Cd à raison de 48,9 mg.m⁻² au total sur 61 ans (*figure 3*). Ceci représente une augmentation moyenne de 8,0 g.ha⁻¹.an⁻¹, à comparer avec 6,0 g.ha⁻¹.an⁻¹ pour la période 1960-1984 à Versailles (Juste et Tausin, 1986) et 14 g.ha⁻¹.an⁻¹ pour la période 1970-1991 à Rothamsted (Johnston & Jones, 1992).

Figure 3 - Évolution temporelle des stocks de cadmium calculés sur les 30 premiers centimètres.

Figure 3 - Changes through time of stocks of cadmium calculated for the first 30 centimetres.



Les stocks de Pb et de Zn augmentent aussi mais dans de moindres mesures (4 g.m⁻² en 61 ans pour Pb; 1,54 g.m⁻² pour Zn), soit en moyenne annuelle :

- 650 g.ha⁻¹ de Pb (930 g.ha⁻¹.an⁻¹ pour la période 1929-1984 à Versailles);
- et 250 g.ha⁻¹ de Zn (813 g.ha⁻¹.an⁻¹ pour la période 1929-1984 à Versailles).

Les stocks calculés pour Ni ne montrent pas de modification notable. Les retombées de ce métal sont quasi nulles. En outre la stabilité de ces bilans montre que les calculs ne sont pas excessivement faux. Les stocks calculés pour P et K restent invariants.

Apports agricoles

Logiquement, les parcelles "fumiers" devraient avoir reçu les mêmes apports atmosphériques que les autres parcelles auxquels s'ajoutent les métaux contenus dans les fumiers (Zn, Cu et Cd). Il en va de même des parcelles "NPK" où les impuretés des fertilisants chimiques (principalement Cd lié aux engrais phosphatés) s'ajoutent aux retombées atmosphériques.

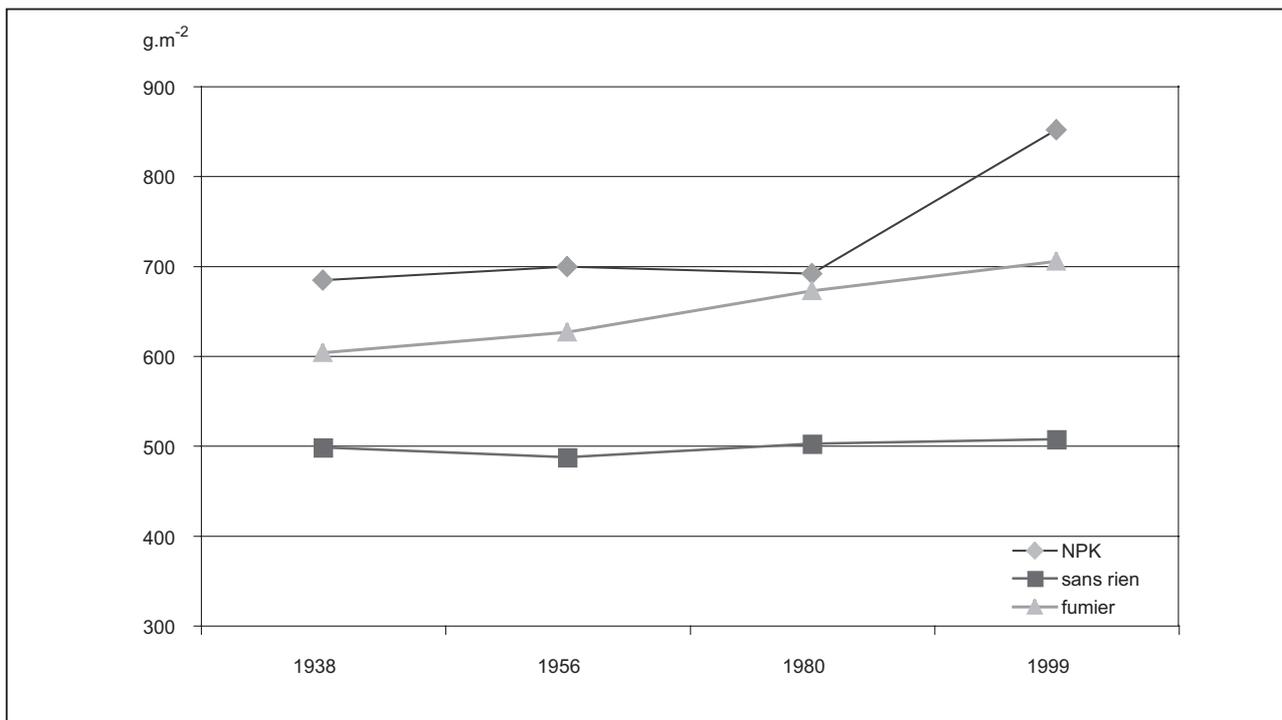
L'augmentation des stocks de Cd est nettement supérieure dans les parcelles "fumier" et "NPK" à celle observée dans les parcelles "sans rien" (figure 3): 10,5 mg.m⁻² de Cd peuvent être imputés aux seuls engrais phosphatés sur 61 ans, soit un apport moyen

annuel de 1,72 g.ha⁻¹, valeur cohérente avec les données de la littérature (2 g.ha⁻¹.an⁻¹ à Rothamsted depuis 1940 pour un apport annuel de 0,4 t/ha de superphosphates). En outre, 3,7 g.m⁻² de Cd peuvent être imputés aux épandages de fumier, soit un apport moyen de 0,6 g.ha⁻¹.an⁻¹ (1,54 g.ha⁻¹.an⁻¹ à Versailles).

En ce qui concerne Pb et Zn, les résultats sont peu nets et peu cohérents : les augmentations des stocks sur 61 ans sont inférieures dans les parcelles NPK à celles observées dans les parcelles "sans rien". Dans le cas du zinc, on peut invoquer des exportations importantes dans les grains de maïs, bien supérieures dans les parcelles NPK à celles des parcelles "sans rien" (où le rendement est bien plus faible). On ne trouve guère d'explication pour le plomb, métal réputé peu phytodisponible. En revanche, le stock de Zn des parcelles "fumier" est supérieur au stock des parcelles "sans rien", comme on pouvait s'y attendre.

Les stocks de K total apparaissent constants au cours du temps et ils présentent les mêmes valeurs pour les trois traitements. Ceci pourrait résulter du fait que la fraction dite "assimilable" représente peu de choses par rapport au potassium constitutif des minéraux argileux.

En ce qui concerne P₂O₅ total (figure 4), on observe une augmentation continue dans les parcelles "fumier" (102 g.m⁻² au total). Dans les parcelles "NPK" il y a stagnation entre 1938 et 1980 puis un accroissement brutal entre 1980 et 1999

Figure 4 - Évolution temporelle des stocks calculés de P_2O_5 total sur les 30 premiers centimètres.**Figure 4** - Changes through time of stocks of total P_2O_5 calculated for the first 30 centimetres.

(+ 160 g.m⁻²) suite au doublement de la dose de fertilisants opéré en 1987. A partir de cette date, les apports de phosphore ont été très supérieurs aux exportations par les récoltes.

Cas du mercure (figure 5)

Les estimations de stocks confirment les évolutions des teneurs : des stocks déjà très élevés dès 1938, puis de fortes augmentations (inégaux selon le traitement) entre 1938 et 1956, puis la perte de la moitié de ce stock entre 1956 et 1980, suivie d'une relative stagnation.

La contamination des échantillons au cours de la préparation de la "terre fine" au laboratoire en 1938, 1956 et 1986 est peu vraisemblable. Pourquoi une telle contamination se serait-elle reproduite à 3 dates aussi éloignées ? Il ne peut s'agir non plus d'une contamination au cours de la conservation car, en 1999, nous avons bien prélevé sur le terrain des échantillons à teneurs anormales en Hg qui n'ont jamais séjourné dans le local de stockage.

Il s'agirait donc bien d'une pollution du sol par Hg, celle-ci ayant commencé à se produire avant 1938 et ayant pris un maximum d'ampleur entre 1938 et 1956. La cause peut être externe (source industrielle ancienne) ou interne et agricole comme, par exemple, résultant de traitements de semences ou de l'utilisation de produits phytosanitaires contenant des composés mercuriels. Ensuite, on doit

imaginer une volatilisation massive pour expliquer la diminution radicale des teneurs observées.

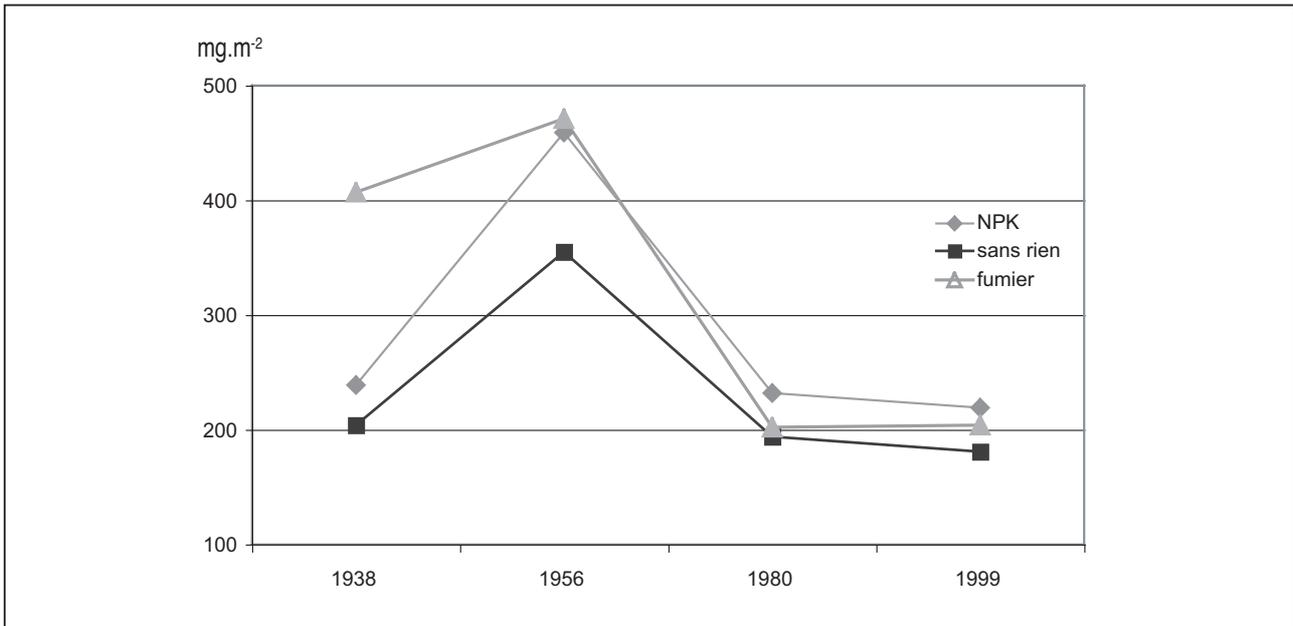
D'après Andersson (cité in Schlüter, 1993), des traitements de semences pourraient apporter jusqu'à 2 g de Hg.ha⁻¹.an⁻¹ aux sols agricoles. Entre 1938 et 1956 (soit 18 ans), cela représenterait +3,6 mg.m⁻², chiffre sans commune mesure avec les augmentations estimées (+ 64 ; + 151 ou + 220 mg.m⁻² selon le traitement). Faut-il faire appel à l'explosion de la bombe en 1944 pour expliquer la plus grosse part d'une telle augmentation, car le fulminate de mercure a longtemps été employé comme explosif dans les détonateurs ?

CONCLUSIONS

Nous pensons pouvoir exploiter le dispositif Dehérain et profiter à la fois de l'ancienneté de certains échantillons encore disponibles et de la quantité d'informations accumulées depuis plus d'un siècle pour évaluer les apports agricoles ainsi que les retombées atmosphériques en éléments traces. Nous nous sommes heurtés cependant à un grand nombre de difficultés. L'une d'entre elles est que nous n'avons pas pu travailler exactement sur les mêmes parcelles aux quatre dates. Une autre difficulté réside dans des différences inexplicables constatées entre deux répétitions d'un même traitement (tableaux 6 et 7).

Figure 5 - Évolution temporelle des stocks de mercure calculés sur les 30 premiers centimètres.

Figure 5 - Changes through time of stocks of mercury calculated for the first 30 centimetres.



Raisonnement sur les seules concentrations peut être trompeur, d'autant que les labours ont été approfondis deux fois. Des raisonnements sur stocks s'imposaient donc mais ils se heurtent à d'autres obstacles, telles que de grosses incertitudes sur les masses volumiques apparentes des échantillons prélevés dans le passé. En outre, nous n'avons pas pu prendre en compte les exportations par les récoltes qui demeurent inconnues, ni les pertes par éventuels transferts verticaux ou latéraux.

Les teneurs mesurées et les stocks calculés pour le mercure, extrêmement élevés, demeurent d'origine mystérieuse. Les seules certitudes claires concernent le cadmium et le phosphore pour lesquels nous avons obtenu des valeurs estimées d'augmentation au cours du temps, assez grossières mais compatibles avec les résultats d'autres études similaires.

Les chiffres estimés pour Pb et Zn sont moins probants. Grignon est situé dans une zone moins "urbaine" que le centre INRA de Versailles, d'où des retombées atmosphériques de moindre ampleur. En outre, les évolutions à quantifier sont probablement du même ordre de grandeur que les incertitudes qui pèsent sur certains chiffres qui ont servi de base à nos calculs.

REMERCIEMENTS

Notre gratitude va à C. Le Lay et H Gaillard pour leur appui technique sur le terrain et aux techniciens de Grignon qui ont maintenu en état le dispositif depuis des décennies.

Remerciements également aux lecteurs critiques dont les remarques constructives nous ont aidé à améliorer ce manuscrit.

BIBLIOGRAPHIE

- Baize D., Deslais W. et Gaiffe M., 1999 - Anomalies naturelles en cadmium dans les sols de France. *Étude et Gestion des Sols*, 6, pp. 85-104.
- Baize D., Deslais W., Bourennane H. et Lestel L., 2001 - Cartographie du mercure dans l'horizon de surface des sols agricoles dans le centre du Bassin parisien. *Étude et Gestion des Sols*, 3, pp. 167-180.
- Baize D., Deslais W. et Saby N., 2005 - Teneurs en huit éléments en traces (Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Se, Zn) dans les sols agricoles en France. Résultats d'une collecte de données à l'échelon national. ADEME. (à paraître).
- Camobreco V., Richards B.K., Steenhuis T.S., Peverly J.H., and McBride M.B., 1996 - Movement of heavy metals through undisturbed and homogenized soil columns. *Soil Science*, 161, 11, pp. 740-750.
- Houot S. et Chaussod R., 1995 - Impact of agricultural practices on the size and activity of the microbial biomass in a long-term field experiment. *Biol. Fertil. Soils*, 19, pp. 309-316.
- Johnston A. E. & Jones K.C., 1992 - The cadmium issue. Long-term changes in the cadmium content of soils and the crops grown on them. *Proc. Intern. Workshop Phosphate Fertilizers and the Environment*, Tampa. pp. 255-269.
- Juste C. et Tauzin J., 1986 - Évolution du contenu en métaux lourds d'un sol de limon maintenu en jachère nue après 56 années d'application conti-

- nue de divers engrais et amendements. C.R. Acad. Agric. Fr., 72, 9, pp. 739-746.
- McBride M.B., Richards B.K., Steenhuis T., Russo J., and Sauvé S., 1997 - Mobility and solubility of toxic metals and nutrients in soil fifteen years after sludge application. *Soils Science*, 162, 7, pp. 487-500.
- Morel R., Chabouis C. et Bourgeois S., 1976 - Quelques résultats expérimentaux obtenus sur le champ Dehérain. *Ann. Agron.*, 27, (5-6), pp. 855-879.
- Morel R., Lasnier T. et Bourgeois S., 1984 - Les essais de fertilisation de longue durée de la station agronomique de Grignon. Résultats expérimentaux 1938-1982. INRA, Paris, 335 pages.
- Richards B.K., Steenhuis T.S., Peverly J.H. & McBride M.B., 1998 - Metal mobility at an old, heavily loaded sludge application site. *Environmental Pollution*, 99, pp. 365-377.
- Schlüter K., 1993 - The fate of mercury in soil. A review of current knowledge. Comm. of the European Communities, Environment & quality of life - Soil and groundwater research, report IV.
- Steinnes E., 1995 - Mercury. In: Alloway B.J. (ed.). *Heavy metals in soils*. 2nd edition. Blackie Academic & Professional.
- Williams D.E., Vlamis J., Pukite A.H., and Corey J.E., 1987 - Metal movement in sludge-amended soils: a nine-year study. *Soils Science*, 143, 2, pp. 124-131.
- Yingming L. and Corey R.B., 1993 - Redistribution of sludge-borne cadmium, copper and zinc in a cultivated plot. *J. of Environmental Quality*, vol. 22, n° 1, 1-8.
- Zhang Y., 2003 - 100 years of Pb deposition and transport in soils in Champaign, Illinois, USA. *Water, Soil and Air pollution*, 146, pp. 197-210.

