



HAL
open science

Flux et stocks de métaux sur des parcelles agricoles de grande culture : synthèse de quatre années du suivi du réseau QUASAPROVE

Emma Koo Seen Lin

► **To cite this version:**

Emma Koo Seen Lin. Flux et stocks de métaux sur des parcelles agricoles de grande culture : synthèse de quatre années du suivi du réseau QUASAPROVE. [Stage] Ecole Nationale Supérieure en Environnement, Géoressources et Ingénierie du Développement Durable (ENSEGID), FRA. 2014, 50 p. hal-02801672

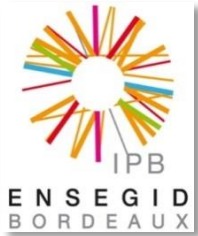
HAL Id: hal-02801672

<https://hal.inrae.fr/hal-02801672>

Submitted on 5 Jun 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Centre INRA Bordeaux-Aquitaine
UMR 1391 ISPA – INRA - Bordeaux Science Agro.
UMR ISPA, Equipe Biogéochimie des éléments traces
Avenue E. Bourleaux BP 81 – 33883 Villenave d'Ornon

Rapport de stage ENS 2^{ème} année

EMMA KOO SEEN LIN

**FLUX ET STOCKS DE METAUX SUR DES PARCELLES AGRICOLES DE
GRANDE CULTURE : SYNTHÈSE DE QUATRE ANNEES DU SUIVI DU
RESEAU QUASAPROVE**

DU 19 MAI AU 5 SEPTEMBRE 2014

Maître de stage : Laurence DENAIX (laurence.denaix@bordeaux.inra.fr)

Tuteur de stage : Olivier ATTEIA (olivier.atteia@ipb.fr)

REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier Laurence Denaix, ma maître de stage et la directrice de recherche et de l'UMR 1391 ISPA (Interactions Sol Plante Atmosphère) à l'INRA-Bordeaux Aquitaine, pour m'avoir accueillie au sein du centre, fait confiance et orientée tout le long du stage.

Je remercie également Stéphane Thunot pour son aide dans le tri et la récolte de données, et pour sa disponibilité.

Enfin, je souhaite adresser un grand merci à toute l'équipe du département, ainsi qu'aux stagiaires de passage et aux doctorants qui m'ont accueillie dans une ambiance de travail chaleureuse et qui ont su me faire partager leurs expériences professionnelles et leurs connaissances.

AVERTISSEMENT

Ce rapport est le résultat d'un travail effectué par un élève-ingénieur de 2ème année.

Ce document est tel qu'il a été remis par l'élève ingénieur et ne comporte aucune correction ni commentaire de l'ENSEGID. Ce rapport ne doit donc être considéré que comme un exercice de formation.

SOMMAIRE

1	Généralités sur les éléments traces et problématique de la contamination des productions agricoles	6
1.1	Présentation des éléments traces étudiés	6
1.1.1	L'aluminium (Al)	6
1.1.2	L'arsenic (As)	6
1.1.3	Le cadmium (Cd).....	7
1.1.4	Le chrome (Cr)	7
1.1.5	Le cuivre (Cu)	8
1.1.6	Le cobalt (Co)	8
1.1.7	Le césium (Cs).....	8
1.1.8	Le fer (Fe).....	9
1.1.9	Le manganèse (Mn).....	9
1.1.10	Le nickel (Ni)	9
1.1.11	Le plomb (Pb).....	10
1.1.12	Le thallium (Tl)	10
1.1.13	Le zinc (Zn).....	10
1.1.14	L'uranium (U)	11
1.2	Problématique de la contamination des productions agricoles	11
2	Présentation du réseau QUASAPROVE	12
2.1	Description	12
2.2	Objectifs	13
3	Objectifs du stage	13
4	Présentation de la démarche	14
4.1	Protocole de prélèvement	14
4.2	Analyse des échantillons.....	14
4.3	Analyses des données	15
4.3.1	Données au niveau des sols.....	15
4.3.2	Données au niveau des plantes	16
4.3.3	Données au niveau des intrants	16
4.3.4	Bilan des stocks et des flux	17
5	Etude des résultats.....	18
5.1	La contamination des sols.....	18
5.1.1	Etat des lieux de la contamination	18
5.1.2	Les différentes sources de contamination des éléments traces présents dans les sols	20
5.1.3	Relations entre les éléments dans les sols	24
5.2	Les retombées atmosphériques.....	25
5.3	Les intrants agricoles.....	26
5.3.1	Bilan des pratiques actuelles	26
5.3.2	Niveaux de contamination des intrants	27
5.3.3	Les amendements organiques en agriculture biologique.....	28
5.3.4	Calcul de flux d'ETM à la parcelle apportés par les intrants agricoles pour chaque type de culture	29
5.4	La contamination des végétaux.....	32
5.4.1	Etat des lieux de la contamination	32
5.4.2	Relations entre les éléments dans les plantes.....	33
5.4.3	Facteurs explicatifs des niveaux de contamination	34
5.5	Les flux à la parcelle.....	36
5.5.1	Flux d'exportation par les récoltes	36
5.5.2	Bilan des flux globaux.....	36
5.5.3	Evolution annuelle des flux et des stocks	37
5.5.4	Bilan des flux par itinéraire.....	41

INTRODUCTION

De nombreux flux de métaux ayant différentes origines existent dans les sols agricoles. Ces métaux peuvent alors se stocker dans les parcelles agricoles en plus ou moins grande quantité. Les éléments métalliques présents à faible dose sont qualifiés d'« éléments traces métalliques » (ETM) et peuvent être toxiques. Ils sont naturellement présents dans les sols car ils proviennent en partie de la roche. La pollution diffuse des retombées atmosphériques et les intrants agricoles, tels que les engrais, les amendements et les effluents d'élevage, peuvent également expliquer la présence d'éléments traces dans les sols. Sauf en cas de contaminations atmosphériques élevées, la majorité des éléments traces accumulés dans les grains de céréales proviennent du sol (Smolders 2001). Cependant, la totalité des éléments présents dans le sol n'est pas disponible pour les végétaux. Pour qu'un élément trace soit absorbé par un végétal, il faut qu'il soit libéré de la matrice solide du sol et qu'il passe en solution. Des paramètres tels que le pH, la teneur en matières organiques ou la spéciation de l'élément jouent un rôle sur la biodisponibilité des métaux. L'acidification des sols accroît la biodisponibilité alors qu'une augmentation de la teneur en matières organiques du sol va limiter la mobilité et la biodisponibilité des éléments traces (McLaughlin and Singh 1999). Ils doivent être surveillés particulièrement car ils ne sont pas biodégradables et peuvent être persistants dans les écosystèmes. L'étude des flux et des stocks de ces contaminants s'appuie donc sur l'interaction entre l'atmosphère, la plante et le sol.

La problématique de la contamination de l'alimentation est un enjeu majeur. Les consommateurs sont exposés aux contaminants présents sous forme de résidus dans l'alimentation. L'étude EAT2 de l'Anses montre des risques de dépassement des seuils toxicologiques pour le plomb, le cadmium et l'arsenic inorganique. Ainsi, la constitution d'un réseau de parcelles suivi sur plusieurs années consécutives va permettre de quantifier les flux d'éléments traces à la parcelle et d'estimer les risques pour la santé humaine.

Un réseau de parcelles gérées par les fermes expérimentales des lycées agricoles, les unités expérimentales INRA et les instituts techniques agricoles partenaires du RMT QUASAPROVE a permis d'obtenir une meilleure caractérisation des niveaux de contamination en éléments traces en conditions de plein champ. Le réseau QUASAPROVE compte 58 parcelles suivies dans toute la France. Parmi ces dernières, huit sont en agriculture biologique contre cinquante en agriculture conventionnelle. Des enquêtes ont permis de connaître les pratiques agricoles exercées. L'ensemble des données recueillies est recensé dans une base de données. Des synthèses annuelles ont permis de donner des valeurs de référence des contaminations en arsenic, cadmium, césium, chrome, aluminium, cuivre, cobalt, fer, manganèse, nickel, plomb, thallium, uranium et zinc du blé tendre, blé dur, tournesol et maïs, dans des conditions pédoclimatiques variées. De plus, des échantillons de sols et de plantes sont prélevés sur le terrain. Ainsi, les caractéristiques pédologiques et la composition chimique du sol en éléments majeurs et traces peuvent être analysées.

Le stage vise à faire la synthèse de quatre années de suivi du réseau QUASAPROVE en étudiant les flux et les stocks de métaux sur des parcelles agricoles de grande culture.

C'est donc en étudiant les résultats obtenus au niveau des sols, des plantes, des intrants, et des retombées atmosphériques que des bilans de flux et de stocks vont pouvoir être construits. De plus, des prédictions sur les variations de stock peuvent être établies. Ainsi, cette analyse vise à construire un modèle d'accumulation des éléments traces dans les sols pour tester *in fine* des scénarios.

Tout d'abord, une étude au préalable sur les éléments traces analysés et leurs impacts sur les productions agricoles est nécessaire. Il faut ensuite présenter le réseau QUASAPROVE afin de définir ses objectifs. Puis, les objectifs du stage selon les données du réseau sont établis. Enfin, la présentation de la démarche ainsi que l'étude des résultats au niveau des sols, des plantes et des intrants sont développées dans les deux dernières parties.

1 Généralités sur les éléments traces et problématique de la contamination des productions agricoles

1.1 Présentation des éléments traces étudiés

Les éléments traces sont les éléments chimiques de la croûte terrestre dont la concentration est inférieure à 0,1% en Sciences de la Terre et à 0,01% en Sciences de la Vie. Certains éléments traces sont des métaux, comme le cadmium, le chrome, le zinc ou encore le plomb, et d'autres sont des non-métaux, tels que l'arsenic. Certains de ces éléments sont indispensables aux processus biologiques, ce sont des oligo-éléments (zinc, cuivre, chrome), alors que d'autres n'ont aucun rôle utile (cadmium, plomb). Ils sont tous potentiellement polluants, selon leur concentration dans le milieu et leur forme chimique. Les informations concernant les éléments présentés ci-dessous ont été recueillies dans l'ouvrage *Pollution atmosphérique par les métaux en France : Dix ans de biosurveillance des retombées* par C. Rausch de Traubenberg, L. Galsomiès, Y. Martinet publié en 2013.

1.1.1 L'aluminium (Al)

L'aluminium correspond au troisième élément le plus abondant de l'écorce terrestre. Il constitue 8% de la composition des roches superficielles. Il constitue donc un élément trace que dans le domaine des Sciences de la Vie. C'est un bon traceur des métaux terrigènes. Il provient d'une contamination naturelle des sols par la roche mère et un apport de poussières en provenance du Sahara. A faible dose, l'aluminium est un oligoélément essentiel pour les êtres vivants, mais à fortes doses, il devient toxique. Il est considéré comme un neuro-toxique pour les animaux et comme un rhizotoxique pour les plantes.

1.1.2 L'arsenic (As)

Cet élément est un constituant de la croûte terrestre répandu mais à des teneurs peu élevées. Il peut cependant présenter de fortes concentrations dans certaines roches présentant des minéralisations hydrothermales. Son utilisation est fortement limitée actuellement en raison de sa forte toxicité. Dès le milieu des années 1990, l'usage des insecticides arsenicaux, en particulier de l'arséniate de plomb en arboriculture qui était le plus utilisé, a été interdit. Depuis 2001, l'utilisation d'insecticides et de pesticides contenant de l'arsenic est totalement prohibée pour toutes les cultures en France. L'augmentation de l'utilisation des dérivés arsenicaux en agriculture avant leur interdiction en 2001 associée à une forte rémanence dans les sols ont entraîné une augmentation des dépôts jusqu'à 2006.

Les dépôts estimés en France sont élevés. Ceci pourrait s'expliquer par certaines activités émettrices d'arsenic telles que la métallurgie, l'industrie chimique, la verrerie, la fabrication

d'alliage du fer, la présence de raffineries, la production de chaleur ou encore la présence d'anciens sites miniers.

1.1.3 *Le cadmium (Cd)*

Le cadmium est toxique quelle que soit sa concentration, et même des doses traces ont un potentiel toxique élevé. Cet élément est peu phytotoxique et peut donc s'accumuler dans les plantes et ainsi être transmis par voie alimentaire jusqu'aux humains.

Les dépôts estimés ont nettement baissés en France. Dans certaines régions du Nord-Est, un dépôt important persiste qui pourrait être attribué à des activités anthropiques émettrices de cadmium (métallurgie, aciérie, construction automobile, verrerie, traitement et recyclage des déchets).

Les sols calcaires, plutôt basiques, peuvent accumuler du cadmium. C'est pourquoi les sols crayeux et les sols argileux issus de la dissolution de ces calcaires montrent souvent des anomalies en cadmium. Cet élément se retrouve également dans les engrais phosphatés. Les flux de cadmium entrants dans les sols agricoles sont en diminution depuis plusieurs décennies en raison de la baisse constante des apports en engrais phosphatés en agriculture.

De plus, il faut contrôler le pH du sol car plus le sol est acide, plus le cadmium est disponible pour les plantes. La teneur en matière organique du sol a aussi un effet : plus le sol est organique, moins les métaux, dont le cadmium, sont disponibles pour les plantes.

Par ailleurs, certaines plantes ont plus tendance à accumuler le cadmium dans leurs graines, telles que le tournesol et le blé dur.

1.1.4 *Le chrome (Cr)*

C'est un élément terrigène présent dans les particules minérales du sol. Il constitue un élément trace essentiel. A forte dose, il devient toxique pour l'Homme.

La forme trivalente du chrome, Cr(III), est bénigne pour les plantes et les animaux alors que la forme hexavalente Cr(VI), est toxique. Ce Cr(VI) serait en effet susceptible d'induire des déficits de croissance et des perturbations métaboliques chez les végétaux. La concentration du chrome sous cette forme ionique Cr(VI) soluble et toxique augmente considérablement lorsque des engrais phosphorés sont apportés aux cultures. En effet, dans le sol, l'anion phosphore qui s'adsorbe très fortement sur les oxydes de fer comme le Cr(VI) entre en compétition avec celui-ci et provoque sa désorption et son passage dans l'eau du sol. Le phénomène est cependant réversible et dès que la concentration en phosphore du sol décroît en profondeur, le Cr(VI) soluble peut être réadsorbé sur les oxydes de fer.

Les roches-mères dont sont issus les sols ont une forte influence sur la répartition des teneurs en chrome total. Les sols développés dans certaines roches magmatiques basiques (basaltes) ou ultrabasiques montrent des teneurs naturellement beaucoup plus élevées en chrome. Il en va de même des sols développés dans les moraines et les flyschs alpins. Les roches liasiques (calcaire argileux, marne et argile du jurassique inférieur) donnent également naissance à des sols riches en chrome.

1.1.5 Le cuivre (Cu)

Le cuivre d'origine anthropique provient principalement de la production d'énergie, des transports automobile et ferroviaire, des engrais, des boues d'épuration, pesticides et antifongiques (en particulier la bouillie bordelaise faite à partir d'hydroxycarbonate de cuivre, utilisée surtout pour le traitement des vignes) et de l'incinération de déchets. A forte dose, il a un impact négatif sur l'activité microbienne car le cuivre est un puissant antibiotique. Il est essentiellement stocké dans les racines des plantes.

Les sols formés à partir de roches mères d'origine magmatique riches en minéraux ferromagnésiens contiennent de grandes quantités de cuivre. Les roches granitiques sont également riches en cuivre, surtout lorsqu'elles ont subi une minéralisation additionnelle.

1.1.6 Le cobalt (Co)

Dans les sols, le cobalt produit sous forme Co^{2+} et Co^{3+} est fortement adsorbé sur les oxydes de fer et de manganèse, ainsi que sur la matière organique et les argiles. Ainsi, le cobalt ne migre pas en phase soluble. Par contre, les chélates organiques sont très mobiles dans le sol et le cobalt lié est facilement biodisponible, en particulier aux pH élevés et dans les sols bien drainés.

Les teneurs en cobalt dans les sols dépendent donc de la roche-mère. Elles sont particulièrement élevées dans les sols des massifs volcaniques et des roches cristallines.

Lorsque le cobalt est disponible dans le sol, les plantes peuvent accumuler de petites particules de cobalt dans les parties de la plantes qui sont consommées par l'Homme telles que les fruits et les graines. Sa toxicité peut être liée à ses propriétés chimiques, à la radiotoxicité de certains de ses isotopes radioactifs dont le cobalt 60, ou encore à des synergies avec d'autres métaux dans la nature tels que l'arsenic ou le cuivre.

1.1.7 Le césium (Cs)

Le césium est un élément très peu répandu. Son rayon ionique anhydride étant équivalent à celui du potassium lui permet de remplacer ce dernier entre les feuillets des phyllosilicates. Il reste à l'état liquide dans les roches magmatiques et cristallise séparément des autres alcalins d'où le caractère limité des endroits où il se trouve à l'état naturel.

Le radioisotope le plus connu est le césium 137, car il est extrêmement dangereux pour tous les êtres vivants (végétaux, animaux, Homme) du fait de ses émissions de rayonnement gamma. De plus, il est similaire au potassium au niveau chimique, ce qui augmente sa toxicité car il a tendance à le remplacer dans les processus d'assimilation par les végétaux et par ingestion dans l'organisme.

Dans l'environnement terrestre, le césium reste concentré dans les couches supérieures du sol où il est fixé par les minéraux. Il est également intercepté par le feuillage de la végétation et se retrouve ainsi dans la litière des forêts. Les champignons, qui se développent en surface et à quelques centimètres sous la surface du sol, piègent le césium.

1.1.8 Le fer (Fe)

Le fer est le quatrième élément le plus abondant de la croûte terrestre dont il constitue 5% de la masse. C'est un élément essentiel pour les êtres vivants. Il est naturellement présent dans le sol, et est biodisponible pour les plantes. Il constitue un élément trace dans le domaine des Sciences de la Vie.

Cet élément est toxique à forte concentration. Il est mobile sous la forme Fe^{2+} et précipite sous la forme Fe^{3+} . Les plantes le prélèvent sous sa forme mobile Fe^{2+} .

Dans le sol, le fer présente une grande affinité pour les complexes organiques mobiles et les chélates. Ces composés interviennent dans la migration du fer dans les horizons du sol. Le fer est assez mobile dans les sols acides et ennoyé régulièrement (sous forme réduite Fe^{2+}).

1.1.9 Le manganèse (Mn)

La plus grande partie du manganèse du sol se trouve sous forme d'oxydes en équilibre avec les ions Mn^{2+} adsorbés sur le complexe argilo-humique ou présents dans la solution du sol. A faible doses, il constitue un oligo-élément, et à forte dose, il devient toxique.

Les plantes peuvent souffrir de la toxicité du manganèse aussi bien que du manque de manganèse. Cet élément s'accumule essentiellement dans les feuilles des plantes. Les légumes feuilles présentent donc des concentrations plus élevées que les autres organes. Les effets toxiques de cet élément apparaissent en cas de carence ou d'excès.

La mobilité du manganèse dépend du pH mais aussi des conditions d'oxydoréduction du milieu. A pH inférieur à 6,5, les formes les moins oxydées dominent. Ce sont elles qui libèrent le plus facilement Mn^{2+} , forme sous laquelle s'effectue préférentiellement le transfert de manganèse. Au-delà de pH 7, la prédominance des oxydes tri et tétravalents, extrêmement peu solubles limite considérablement la mobilité de cet ETM.

1.1.10 Le nickel (Ni)

Cet élément est essentiel à faible dose, et c'est un oligoélément qui devient toxique à fortes doses.

Pour les animaux, lorsque les quantités maximales tolérées sont dépassées, le nickel peut provoquer différents types de cancer, notamment le cancer du poumon. Sur les plantes, le nickel en forte concentration peut provoquer un ralentissement de la croissance et du développement, notamment dans les sols sablonneux.

La répartition des teneurs en nickel montre une forte influence de la roche-mère dans laquelle le sol s'est formé. De grandes quantités de nickel sont observées dans les roches contenant des minéraux ferromagnésiens où il se substitue partiellement au fer ou au magnésium. C'est pourquoi il est abondant dans les roches magmatiques basiques ou ultrabasiques. Les sols qui s'y développent ont des teneurs naturellement plus élevées en nickel.

1.1.11 Le plomb (Pb)

Ce métal est présent naturellement dans l'environnement à des doses traces. Ce n'est pas un élément essentiel, il reste toxique quelle que soit la dose. Il peut également contaminer les sols par l'intermédiaire de produits phytosanitaires.

Autrefois, le plomb a été utilisé comme antidétonnant dans l'essence. De fortes contaminations dans les sols s'expliquent alors par les dépôts atmosphériques qui se sont accumulés sur plusieurs dizaines d'années sur les sols. Des usages industriels sont également à l'origine de contamination. De plus, il a été utilisé comme antifongique avec l'arsenic.

Le plomb est un neurotoxique, pouvant entraîner des déficits ou des malformations du cerveau. Dans les plantes, il s'accumule dans les racines et est peu transmis vers les parties aériennes.

La distribution de cet élément est influencée par la roche-mère. Ces teneurs naturelles élevées des roches sont transmises aux sols. La distribution des fortes teneurs en plomb est donc étroitement liée à la présence de roches cristallines ou à des sols résiduels anciens développés dans des roches fortement minéralisées par des processus géologiques à long terme. De plus, l'argile et surtout la matière organique représentent les phases d'adsorption dominantes du plomb. Par ailleurs, le plomb est l'un des ETM les moins mobiles du sol.

1.1.12 Le thallium (Tl)

L'ion Tl^+ est la forme dominante du thallium dans les sols. Cet ion est d'autant plus mobile que l'humidité est importante. La mobilité est réduite en présence de phases fixatrices telles que les argiles et les oxyhydroxydes de fer et de manganèse.

Cet élément constitue un oligo-élément essentiel, pour lequel il peut y avoir des carences.

Chez les animaux, cet élément est rapidement bioassimilable. Il est également bioaccumulable chez les plantes et peut avoir des effets sur celles-ci tels que des modifications de couleur des feuilles et des déclin de croissance.

Les teneurs les plus élevées en thallium se retrouvent sur les sols issus de roches cristallines.

1.1.13 Le zinc (Zn)

Il constitue un oligoélément essentiel, en particulier pour certains végétaux qui peuvent facilement développer des carences. A fortes doses, il devient toxique et représente un risque accru pour les animaux aquatiques. Il se retrouve dans les sols cultivés lors de l'épandage de lisier de porc et l'utilisation d'engrais phosphatés. Il est fortement phytotoxique pour des concentrations relativement faibles.

Le zinc est présent dans les roches et plus particulièrement dans celles d'origine magmatique ou volcanique, ainsi que dans les secteurs présentant des minéralisations hydrothermales.

Le zinc est considéré comme facilement soluble par rapport aux autres ETM dans les sols, il est très mobile et disponible dans les sols légers et acides.

1.1.14 L'uranium (U)

L'uranium présent dans l'environnement peut avoir une origine anthropique. En agriculture, de grandes quantités de phosphates naturels pouvant contenir de fortes concentrations en uranium sont utilisées pour la fertilisation des cultures et pour l'élaboration des compléments alimentaires pour le bétail. Les activités minières et industrielles peuvent également être à l'origine de rejets de déchets dans l'environnement.

Cet élément peut causer des problèmes sanitaire et écologique. Sur l'Homme et l'animal, l'uranium a un effet toxique bien connu. Du fait de sa faible radioactivité, l'uranium naturel est considéré davantage comme un toxique chimique qu'un toxique radiologique. Cependant, sa demi-vie dans les os est proche de 10 ans. De ce fait, l'irradiation, même faible, qu'il engendre dans les os n'est pas négligeable en cas de forte contamination.

1.2 Problématique de la contamination des productions agricoles

Les sols agricoles présentent des flux d'ETM qui peuvent avoir différentes origines. Les principales sources d'apport sont les traitements phytosanitaires, les engrais minéraux, les déjections animales, les amendements calciques et magnésiens, les boues et composts, et les retombées atmosphériques. D'autres sources potentielles existent, telles que l'irrigation, les sédiments de crues ou encore les résidus de culture.

Les ETM s'accumulent dans le sol notamment à cause de la présence de ligands forts tels que les matières organiques. Or, l'incorporation de produits organiques comme les effluents d'élevage ou les composts utilisés en agriculture biologique va conduire à augmenter la teneur en matière organique des sols. Les végétaux accumulent différemment les éléments traces. Le tournesol et le blé dur sont les espèces de grande culture qui accumulent le plus de cadmium dans leurs graines. Les éléments traces peuvent ainsi entrer dans la chaîne alimentaire *via* les productions agricoles.

L'étude EAT2 de l'Anses a montré que, pour des individus non-fumeurs, la majorité de la contamination en cadmium, plomb, cuivre, zinc, provenait de l'alimentation d'origine végétale. Il est donc crucial de bien comprendre l'origine et les flux de ces contaminants afin de limiter la contamination de notre alimentation.

L'approche par les flux sur les parcelles permet d'aborder les risques à moyen terme sur de petites étendues.

2 Présentation du réseau QUASAPROVE

2.1 Description

Le Réseau Mixte de Technologie (RMT QUASAPROVE) a pour but de dresser un état des lieux de la qualité sanitaire et de la sécurité alimentaire des productions végétales de grande culture en France sur les ETM et les mycotoxines. Il s'appuie sur un réseau de parcelles expérimentales de l'INRA, des lycées agricoles, des chambres d'agriculture et des instituts techniques. L'intérêt est de créer une base de données sur les différents sites partenaires. Un suivi des flux de contaminants peut alors être établi. Pour des raisons de gradients climatiques les sites ont été choisis volontairement avec une répartition nord-sud et est-ouest (Fig.1).

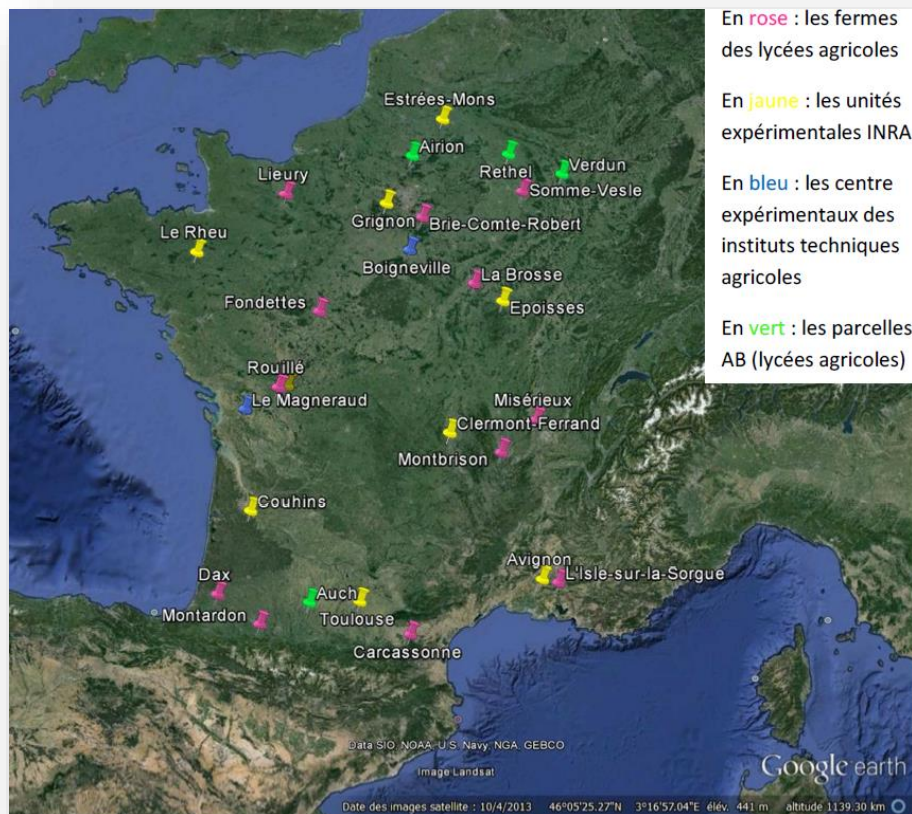


Figure 1 : Distribution du réseau de parcelles

La constitution de ce réseau a été initiée par le projet CASDAR (2011-2013) : « Etude de la multicontamination des productions végétales de grande culture en conditions de plein champ ».

Dans le cadre du RMT QUASAPROVE, des méthodes de prélèvements, de préparation et d'analyse multicontaminants ont été développées et testées pour le suivi des cultures de blé et de tournesol.

2.2 Objectifs

Les activités du RMT QUASAPROVE sont orientées dans le but d'atteindre les quatre objectifs suivants :

- 1 – Une meilleure connaissance du mode et de la dynamique de contamination, de l'origine des contaminants des produits agricoles bruts jusqu'à l'aliment ;
- 2 – Le développement des méthodologies et des outils d'évaluation et de prévention des risques de contamination de l'ensemble des filières des produits d'origine végétale de grande culture ;
- 3 – La mise au point et la valorisation de nouvelles méthodes de mesure, de modélisation, de caractérisation et de suivi du devenir des contaminants, pour favoriser le développement d'innovations et les solutions alternatives aux pratiques à risque ;
- 4 – L'amélioration des outils méthodologiques de surveillance des risques (de l'origine de la contamination jusqu'à l'aliment) et des systèmes d'aide à la décision (incluant la diffusion d'informations et les formations destinées à élever le niveau des connaissances techniques des opérateurs concernés).

Les objectifs du suivi des parcelles du réseau QUASAPROVE sont alors :

- de recenser les niveaux de contamination des végétaux en éléments traces et mycotoxines ;
- de relier les teneurs en éléments traces dans les végétaux à des paramètres sols ou des paramètres climatiques potentiellement explicatifs ;
- d'analyser les flux d'éléments traces à la parcelle.

Il s'agit de prédire la concentration en éléments traces dans les productions agricoles. Il est nécessaire d'obtenir des références en conditions plein champ. Le réseau QUASAPROVE est le meilleur outil pour obtenir des valeurs de référence sur les teneurs en ETM dans les sols et les végétaux, et pour tester les hypothèses proposées.

3 Objectifs du stage

Les objectifs du stage s'inscrivent dans les objectifs du réseau QUASAPROVE.

Le stage consiste à réaliser la synthèse de quatre ans de recueil de données collectées afin de :

- Caractériser les niveaux de contamination rencontrés dans les sols agricoles,
- Recenser les niveaux de contamination des intrants utilisés,
- Calculer les flux entrants et sortants des parcelles,
- Faire un bilan entrées/sorties pour les éléments analysés.

La démarche à adopter consiste à reprendre et réorganiser la base de données du fichier Excel, recenser les données manquantes et les compléter, estimer les stocks de métaux, faire des bilans quantitatifs sur le réseau, s'informer sur les intrants utilisés, calculer les flux à la parcelle.

4 Présentation de la démarche

4.1 Protocole de prélèvement

Le protocole de prélèvement de sols est un protocole dit « RMQS », c'est-à-dire choisi par le Réseau de Mesure de la Qualité des Sols. Il doit être représentatif des végétaux et des sols correspondant aux plantes prélevées sur une placette.

Il faut tout d'abord choisir la parcelle. Quelle que soit la culture implantée, celle-ci ne doit pas être sur une zone remblayée, en contre bas de la culture, dans une zone hétérogène, ou dans les zones de bordure. Des échantillons, de 100g minimum, de tous les intrants à la parcelle (engrais, amendements, produits organiques) et des semences sont conservés pour analyse. Les sols sont prélevés une fois par an, pendant un à quatre ans suivant les sites, sur l'horizon 0-30 cm de la couche labourée en début de culture. Le prélèvement se fait à l'aide d'une tarière de type « Edelman » (SDEC). La taille de la parcelle est de $20m \times 20m$. Elle est ensuite divisée en sous placettes de $2m \times 2m$. Il y a 25 prélèvements par parcelle (Fig.2).

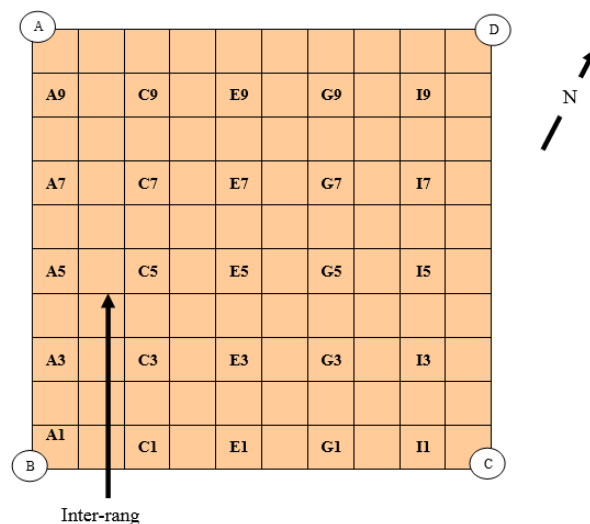


Figure 2 : Schéma des placettes de prélèvement

4.2 Analyse des échantillons

Les prélèvements concernent les sols et les plantes.

Les carottes de sol recueillies sont homogénéisées puis séchées à l'air libre. Une fois sec, l'échantillon de sol est sous-échantillonné pour avoir 2kg de sol. Les prélèvements de sols sont ensuite envoyés au laboratoire d'analyse des sols d'Arras, le laboratoire central de l'INRA.

Concernant les végétaux, plusieurs prélèvements sont effectués : au niveau des grains, au stade jeune de la plante et dans la partie aérienne à la récolte. L'échantillonnage végétal se fait de la même façon que l'échantillonnage du sol : 25 individus sont prélevés sur la parcelle. Les échantillons sont ensuite envoyés au laboratoire central d'analyse des végétaux de l'INRA (USRAVE, Bordeaux).

Pour le blé, le stade jeune correspond au stade en fin de taillage, et pour le tournesol, il correspond au stade à quatre paires de feuilles.

4.3 Analyses des données

Tous les ans et pour chaque parcelle, l'itinéraire de culture (ITK) est renseigné dans une enquête afin de connaître les dates de labour, les intrants apportés, les densités de semis ainsi que les rendements. Ces informations permettent d'effectuer des calculs qui vont servir au bilan des flux et des stocks de métaux.

4.3.1 Données au niveau des sols

Il est important d'établir un état des lieux de la contamination des sols agricoles en France. Le but est de quantifier et d'évaluer les entrées d'ETM sur les sols agricoles et leurs flux sur les surfaces concernées. Il s'agit d'étudier les flux d'ETM à la parcelle.

Différents paramètres sont mesurés au niveau des sols étudiés : le pH, les pourcentages d'argiles, de limons fins et grossiers, de sables fins et grossiers, l'humidité résiduelle, les concentrations des éléments traces et majeurs étudiés (aluminium, arsenic, calcium, cadmium, chrome, cuivre, cobalt, césium, fer, potassium, magnésium, manganèse, molybdène, sodium, nickel, phosphates, plomb, thallium, zinc et uranium) et les densités apparentes. Ces différentes informations vont permettre d'effectuer plusieurs types de calculs.

Les concentrations en éléments obtenues au laboratoire ($[C]_i$) sont recalculées en tenant compte de l'humidité résiduelle ($[C]_e$) qui peut influencer les résultats :

$$[C]_f = \frac{[C]_i}{\left(1 - \left(\frac{\text{Humidité résiduelle}}{1000}\right)\right)}$$

Il faut également calculer les stocks de métaux. Pour cela, il faut utiliser la formule suivante :

$$[Me]_{stock} = \text{Densité apparente} \times [Me] \times \text{Volume du sol}$$

avec :

$[Me]_{stock}$: Stock de métaux (en $g \cdot m^{-2}$)

Densité apparente (en $g \cdot cm^{-3}$)

$[Me]$: Concentration en métal (en $mg \cdot kg^{-1}$)

Volume du sol (en m^3)

Le volume du sol est pris à 0,3 m car les prélèvements ont été faits sur les 30 premiers centimètres du sol.

4.3.2 Données au niveau des plantes

Les paramètres mesurés au niveau des plantes concernent les poids frais et sec, et les concentrations des éléments traces et majeurs étudiés (aluminium, arsenic, cadmium, calcium, chrome, cobalt, césium, cuivre, fer, potassium, magnésium, manganèse, molybdène, nickel, phosphore, plomb, zinc et uranium). Les analyses sont faites au niveau de la plantule, des graines et dans la partie aérienne à la récolte.

Les résultats obtenus sont utilisés pour calculer les quantités exportées, et réincorporées.

- La quantité exportée concerne les graines de la plante. Elle correspond au produit du rendement par la concentration de métal dans les graines.
- Pour calculer la quantité réincorporée, il faut utiliser les concentrations mesurées dans la partie aérienne de la plante. Il faut alors effectuer le calcul suivant :

$$Q = M \times C$$

avec Q : quantité réincorporée (en g/ha)

M : masse de résidus réincorporés (en kg/ha)

C : concentration mesurée dans la partie aérienne à la récolte en mg/kg

Les résidus réincorporés correspondent à la paille ou les parties aériennes qui sont broyées et laissées sur le sol pour être réincorporées lors du labour suivant. Pour calculer la masse M , il faut utiliser la masse mesurée pour 25 pieds (notée m) et le nombre de pieds par hectare (noté N). La formule devient donc :

$$Q = N \times \frac{m}{25} \times C$$

Le nombre de pieds par hectare N n'a malheureusement pas été mesuré lors de l'étude. Il faut donc l'estimer. Pour cela, différentes méthodes sont utilisées. Le nombre de pieds par hectare peut se trouver en multipliant la densité de semis par le taux de germination (estimé égal à 80 %) et en divisant le tout par la masse d'un grain, ou en utilisant la densité de levée. Cette dernière correspond à la quantité de résidus à la récolte. Elle donne le nombre de pieds au m^2 . Le nombre de pieds par hectare peut également être estimé en utilisant le quotient du rendement et du poids sec des grains pour un pied.

4.3.3 Données au niveau des intrants

En étudiant les intrants introduits sur les parcelles, il est possible de calculer la quantité d'ETM apportée par les intrants agricoles. Pour cela, il faut prendre la quantité d'intrant utilisé et la multiplier par la concentration moyenne en métaux pour chaque type d'intrant. Les différents types d'intrants recensés sont les suivants :

- Les engrais azotés tels que l'ammonitrate 33,5% N, les autres N, les super potassiques, les autres PK ;
- Les amendements organiques tels que le fumier bovin, les composts de déjections animales, les bouchons de farine de viande et de plumes ;

- Les amendements calcaires ;
- Les oligo-éléments.

Les concentrations moyennes en métaux pour chaque type d'intrant sont obtenues dans le rapport établi par la SOGREAH (Tab. 1).

Tableau 1 : Teneurs moyennes en ETM des intrants (valeurs de la bibliographie, MS : Matière Sèche)

Catégories d'engrais et d'amendements	Teneurs moyennes en ETM des engrais et des amendements en mg/kg MS						Appellations chez les agriculteurs enquêtés
	As	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn	
Ammonitrate 33,5% N	0,1	0,7	6,5	5,8	0,6	1,7	
Autres N	0,4	0,2	7,2	4,3	1	7,2	Sulfate d'ammoniaque
Super potassique	6,1	6,89	85,81	22,61	1,98	181,88	0-25-25
Autres PK	6,1	6,89	85,81	22,61	1,98	181,88	00-17-11-21S
Fumier Bovin	1,8	0,3	8	42,8	4,8	219,5	
Composts de déjections animales	5,49	1	53,52	249,5	45,17	626	Fumier composté
Chaux vive calcaire (amendement calcaire)	1,73	0,35	6,18	6,3	2,5	8,85	CALYS

Ces teneurs moyennes en ETM dans les différents intrants vont permettre de connaître les quantités d'éléments apportées dans les parcelles du réseau selon le type d'intrant.

4.3.4 Bilan des stocks et des flux

Les résultats obtenus pour le sol, les plantes et les intrants doivent être combinés pour établir un bilan des flux. De plus, les retombées atmosphériques sont à prendre en compte. En effet, la pollution atmosphérique, *via* les retombées, peut constituer dans certaines régions et pour certains éléments une source majeure de contamination des cultures.

Ainsi, le bilan des flux à la parcelle peut être schématisé de la manière suivante (Fig. 3) :

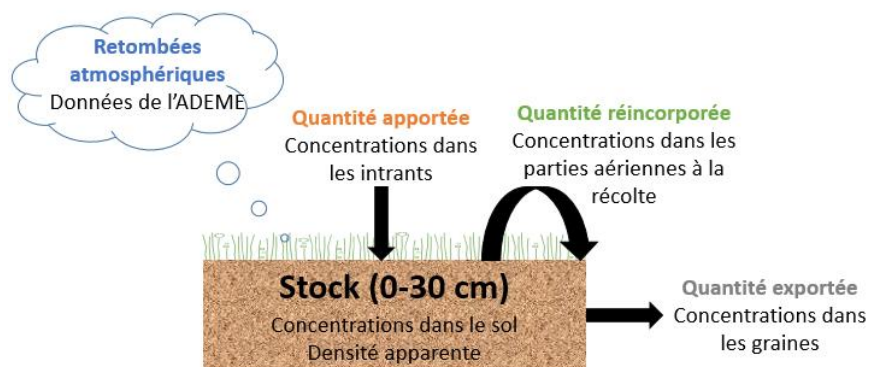


Figure 3 : Bilan des calculs de stocks et de flux

Le but est alors d'établir un bilan complet pour chaque parcelle du réseau QUASAPROVE.

5 Etude des résultats

5.1 La contamination des sols

5.1.1 Etat des lieux de la contamination

5.1.1.1 Comparaison avec les données du RMQS au niveau national

Le Réseau de Mesures de la Qualité des Sols (RMQS) permet de décrire l'état du sol à partir de plusieurs indicateurs. Il recense les résultats pour la totalité de la France, à partir de plus de 1700 points de prélèvement. La teneur en éléments traces permet de traduire l'état des sols en matière de contamination. Le tableau ci-dessous donne les valeurs des quartiles et la valeur maximale pour chaque indicateur, mesurées sur l'ensemble du territoire français (Tab. 2).

Tableau 2 : Données du RMQS à l'échelle nationale. Source : <http://indiquasol.gissol.fr/geoindiquasol/descriptions/surv.php>

<i>en mg/kg</i>	Cd	Co	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
1^{er} quartile	0.14	6.08	34.68	8.78	11.3	21.51	42.4
Médiane	0.23	9.06	45.85	12.88	18.91	27.75	58.6
3^{ème} quartile	0.35	11.64	58.2	19.08	26.2	37.79	76.97
Maximum	5.53	44	167	365	73.1	283	1231

En comparant ces données du RMQS avec les données obtenues par le réseau QUASAPROVE, qui a un nombre beaucoup plus réduit de points de prélèvements, mais tous se trouvant dans le contexte des sols agricoles de grande culture, les résultats se montrent similaires (Tab. 3) :

Tableau 3 : Données du réseau QUASAPROVE à l'échelle nationale

<i>en mg/kg</i>	Cd	Co	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Minimum	0.12	3.25	19.18	7.55	6.99	15.96	28.12
1^{er} quartile	0.19	7.17	46.15	13.58	18.45	20.84	56.08
Médiane	0.29	9.54	61.81	19.47	23.19	24.99	68.44
3^{ème} quartile	0.39	12	68.7	22.23	29.91	32.44	85.35
Maximum	0.64	25.84	131.91	120.46	43.93	140.75	131.24
Moyenne	0.31	10.03	61.17	22.1	23.81	33.75	72.31

La médiane de certains éléments est plus élevée pour le réseau QUASAPROVE mais le maximum évalué par le RMQS n'est jamais atteint. De manière graphique, certains éléments montrent des teneurs relativement élevées en moyenne, comme le chrome et le zinc (Fig. 4).

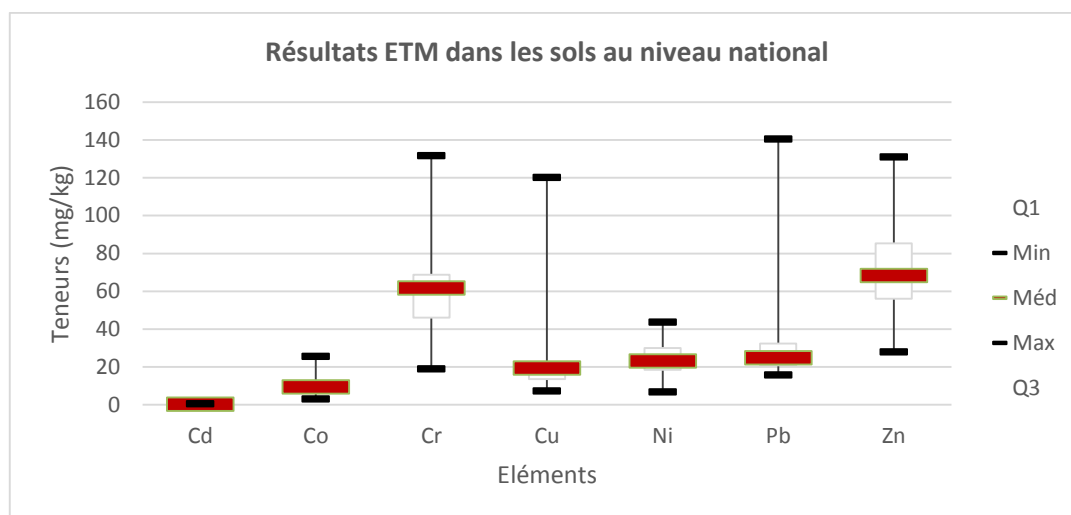


Figure 4 : Graphique des teneurs en ETM dans le sol issues du réseau QUASAPROVE

Ainsi, en comparant les données du réseau QUASAPROVE et celle du RMQS, les teneurs en éléments métalliques se montrent globalement similaires au niveau national. Il reste maintenant à étudier les parcelles plus dans le détail pour rechercher d'éventuelles anomalies.

5.1.1.2 Présentation des anomalies par rapport au RMQS

Il est important de regarder les minima et maxima des concentrations en métaux pour repérer des valeurs anormales ou surprenantes. L'interprétation de ces valeurs consiste à étudier si elles sont dues à des anomalies naturelles ou anthropiques, tels que d'anciens usages par exemple.

La base de données Indiquasol permet de montrer les seuils de détection d'anomalies (RMQS) dans les horizons de 0-30 cm par région. Il est alors possible de repérer les teneurs en éléments dans les sols supérieures aux seuils. Ces teneurs anormalement élevées représenteraient alors d'éventuelles anomalies dans les sols étudiés.

D'après le tableau 3 de la partie précédente, la teneur maximale en plomb est de 140,75 mg/kg et s'observe à Estrées Mons. Cette concentration dépasse le seuil, qui est compris entre 70 et 100 mg/kg d'après le RMQS, et constitue donc une anomalie. Concernant le zinc, la teneur maximale obtenue est de 131,24 mg/kg et a été mesurée à Montbrison. Cette concentration anormalement élevée dépasse le seuil qui est fixé entre 100 et 130. Elle constitue également une anomalie par rapport au RMQS.

Ainsi, peu d'anomalies sont observées par rapport au RMQS. Les valeurs régionales sont plus élevées que les valeurs nationales. Plusieurs explications peuvent être à l'origine de ces anomalies locales.

5.1.2 Les différentes sources de contamination des éléments traces présents dans les sols

5.1.2.1 Le substrat géologique

Selon le type de substrat géologique, la teneur en éléments traces métalliques n'est pas la même. Par exemple, dans certaines roches, la teneur en un élément est plus élevée que dans d'autres roches. Les teneurs moyennes en ETM dans les roches sont recensées dans le tableau suivant (Tab. 4).

Tableau 4 : Teneurs en ETM dans les roches (d'après Kabata-Pendias, 2000), en rouge : les teneurs élevées, en bleu : les teneurs faibles.

en mg/kg	As	Cd	Cr	Cu	Co	Cs	Ni	Pb	Zn	U
Ultra basique	0.5-1	0.03-0.05	1600-3400	10-40	100-200		1400-2000	0.1-1	40-60	0.003-0.01
Basaltes	0.6-2	0.13-0.22	170-200	60-120	35-50	0.5-1.5	130-160	3-8	80-120	0.3-1
Granites	1-2.6	0.09-0.20	4-25	10-30	1-7	2-5	5-15	15-24	40-60	2.5-6
Argiles	13	0.3	80-120	40-60	14-20	5-10	40-90	20-40	80-120	3-4
Schistes	5-13	0.22-0.3	60-100	40	11-20	6-8	50-70	18-25	80-120	3-4.1
Calcaires	1-2.4	0.035	5-16	2-10	0.1-3	0.5-2	7-20	3-10	10-25	2.2-2.5
Grès	1-1.2	0.05	20-40	5-30	0.3-10	0.5-2	5-20	5-10	15-30	0.5-0.6

Cela permet de savoir dans quelle roche un élément sera plus abondant. Ainsi, dans les roches ultrabasiques, de fortes teneurs en Cr, Co et Ni sont attendues. Dans les basaltes, de grandes quantités de Cu et de Zn se retrouvent. Dans les argiles, de fortes concentrations en As, Cs, Pb, Zn et U s'observent et enfin dans les schistes, les teneurs en As, Cd, Cs, Zn et U doivent être anormalement élevées.

La carte ci-dessous place les différents lieux de prélèvement (Fig. 5). Elle indique la géologie de la France.

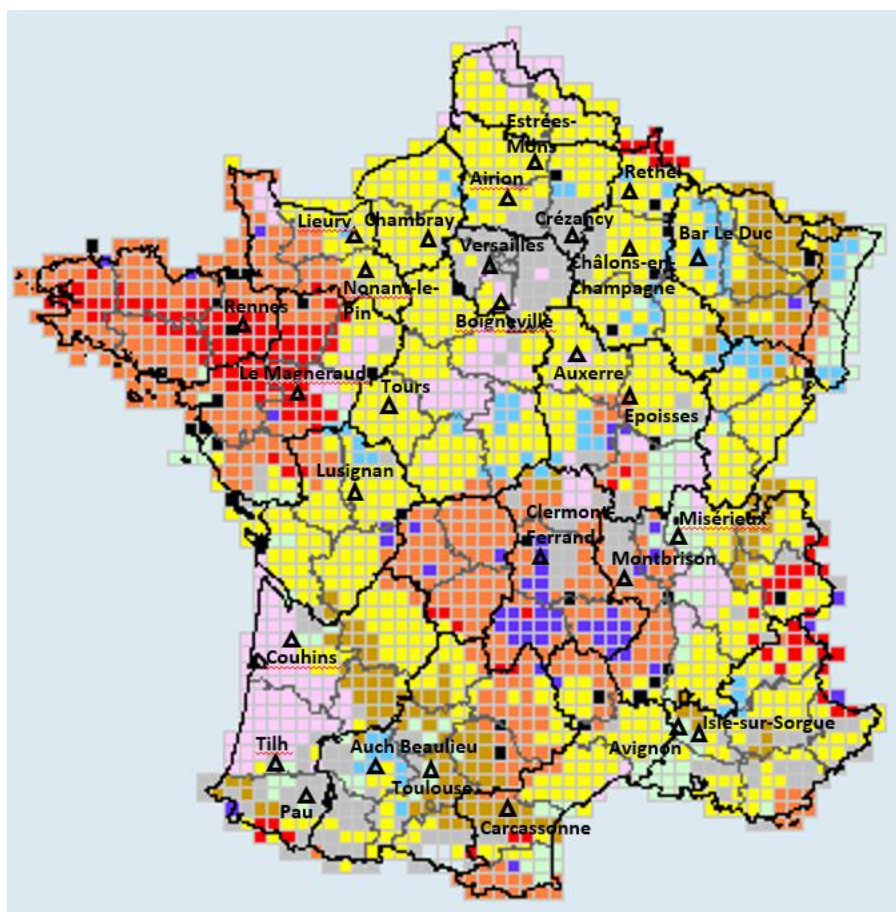


Figure 5 : Carte indiquant la géologie de la France.

Source : indiquasol.gissol.fr/geoindiquasol/main.php

- Pas de données pour cette zone
- Alluvions
- Sables
- Grès
- Calcaires
- Marnes et argiles
- Roches volcaniques (basiques, ultrabasiques)
- Roches de type acide (granites, gneiss, schistes)
- Gneiss et roches volcaniques (+roches cristallines)
- Roches diverses
- Non renseigné

Ainsi, les différents lieux de prélèvements peuvent être classés selon leur substrat géologique (Tab. 5).

Tableau 5 : Classement des lieux de prélèvement selon leur substrat géologique

Calcaires	Alluvions	Marnes et argiles	Sables et grès	Gneiss, roches cristallines et acides
Airion	Avignon (Alluvions calcaires)	Auch Beaulieu	Tilh	Rennes
Auxerre	Isle-sur-Sorgue (Alluvions calcaires)	Bar Le Duc		
Boigneville	Misériex	Montbrison		
Châlons-en-Champagne	Clermont-Ferrand			
Chambray	Toulouse			
Crézancy	Couhins			
Estrées Mons	Pau			
Le Magneraud				
Lieury				
Lusignan				
Nonant-le-Pin				
Rethel				
Tours				
Versailles				
Epoisses				
Carcassonne				

Les teneurs en ETM obtenues par le réseau QUASAPROVE peuvent alors être comparées en différenciant les substrats géologiques (Tab. 6).

Tableau 6 : Teneurs en ETM dans les différents substrats géologiques rencontrés (46 parcelles étudiées)

		en mg/kg									
		As	Cd	Cr	Cu	Co	Cs	Ni	Pb	Zn	U
Alluvions (13 parcelles)	Minimum	8,69	0,12	24,87	7,55	3,37	3,99	9,75	18,35	28,45	1,67
	Maximum	51,48	0,43	68,16	72,47	14,28	23,13	36,11	79,90	119	2,72
	Moyenne	21,24	0,27	50,09	25,55	9,22	8,80	24,44	35,35	76,60	2,04
	Médiane	13,44	0,29	46,68	22,52	9,56	6,16	22,08	25,96	80,93	1,81
Sables et grès (1 parcelle)	Min/max/moyenne/médiane	7,60	0,16	38,99	12,93	3,25	2,66	9,32	15,96	33,23	2,19
Calcaires (26 parcelles)	Minimum	9,37	0,18	40,90	10,05	4,26	2,27	12,40	17,48	40,52	1,39
	Maximum	39,49	0,64	132	120,5	25,84	13,56	43,93	140,8	121	3,57
	Moyenne	18,05	0,37	70,44	21,93	11,21	5,92	25,47	36,59	73,48	2,39
	Médiane	13,58	0,35	65,39	16,96	9,99	4,81	23,87	24,12	68,69	2,40
Gneiss, roches cristallines et roches acides (2 parcelles)	Minimum	9,20	0,12	57,07	17,56	7,20	2,35	16,63	19,30	56,94	2,29
	Maximum	21,88	0,45	99,20	21,93	16,33	13,56	43,76	35,66	109,6	2,91
	Moyenne	15,54	0,29	79,14	19,59	11,55	7,95	29,80	27,14	83,07	2,60
	Médiane	15,54	0,30	80,15	19,44	11,34	7,95	29,40	26,81	82,85	2,60
Marnes et argiles (4 parcelles)	Minimum	18,41	0,27	19,18	10,44	3,89	3,71	6,99	16,81	41,17	1,33
	Maximum	18,41	0,27	83,22	27,57	15,97	12,82	31,95	32,66	131,2	7,56
	Moyenne	18,41	0,27	57,17	17,73	10,00	6,39	21,07	24,91	74,75	4,07
	Médiane	18,41	0,27	63,13	16,44	10,06	4,52	22,67	25,09	63,29	3,70

Quelques valeurs sont anormalement élevées dans les alluvions pour l'arsenic, le césium et le plomb. Ces fortes valeurs peuvent s'expliquer par certaines anomalies locales. En effet, à Clermont-Ferrand, un fort taux d'arsenic s'observe. Il atteint les 51 *mg/kg*. Ceci pourrait s'expliquer par le substrat de cette zone correspondant à des roches volcaniques qui peuvent contenir de fortes teneurs en As.

A Auxerre, le taux de cadmium atteint les 0,64 *mg/kg* et est associé à un taux élevé en CaCO_3 (187 *mg/kg*). Ceci s'explique par les roches calcaires datant du Jurassique constituant le substrat géologique de cette zone. Ces roches calcaires ont des teneurs anormalement élevées en cadmium. Ce même phénomène s'observe à Le Magneraud, où le fort taux de Cd (0,58 *mg/kg*) et associé à un fort taux de carbonates de calcium (338 *mg/kg*) du fait du substrat calcaire.

A Lusignan, de fortes concentrations en chrome ont été mesurées sur une parcelle (132 *mg/kg* en 2010 et 110 *mg/kg* en 2011). Le substrat de cette parcelle est calcaire. De plus, cette concentration élevée se retrouve sur deux années consécutives sur cette même parcelle. Il ne s'agit donc pas ici d'une hétérogénéité qui serait à l'origine de la présence de chrome mais celle-ci serait due au substrat. Le même phénomène se retrouve à Epoisses.

A Montbrison, des teneurs élevées en zinc (131 *mg/kg*), en uranium (8 *mg/kg*) et en thallium (2 *mg/kg*) sont constatées en 2012. Il est possible de supposer que ces fortes concentrations proviennent d'épandage de boues ou du substrat géologique.

A l'inverse, certaines valeurs sont anormalement faibles. C'est le cas du cuivre et du nickel dans les marnes et les argiles par exemple. Cependant, ces valeurs ne peuvent s'expliquer par la nature du substrat géologique. Elles pourraient être dues à des pratiques agricoles particulières.

Ainsi, le substrat géologique peut être l'une des causes de valeurs régionales élevées.

5.1.2.2 L'historique agricole

Les précédents culturaux sont importants et peuvent constituer une source de contamination. Pour les sols enrichis en engrais phosphatés, de fortes concentrations en cadmium, en chrome ou encore en zinc sont attendues. Concernant les sols à antécédent viticole, des teneurs élevées en cuivre devraient être mises en évidence.

C'est le cas à Carcassonne, où une forte concentration en cuivre se distingue, atteignant les 120 *mg/kg*. Cette teneur élevée est due à un antécédent viticole au niveau de cette parcelle. En effet, la bouillie bordelaise utilisée pour les vignes correspond à du sulfate de cuivre. Le même phénomène s'observe à Avignon et à Isle-sur-Sorgue qui ont des antécédents arboricoles. Les concentrations en cuivre atteignent respectivement 40 *mg/kg* et 72 *mg/kg*. Les régions concernées par ces villes ont donc des sols plus riches en cuivre.

L'historique agricole peut ainsi expliquer certaines anomalies régionales.

5.1.2.3 Les hétérogénéités

Certaines valeurs ne s'expliquent ni par le substrat géologique ni par l'historique agricole. Il peut parfois s'agir d'une hétérogénéité ponctuelle à un endroit donné.

En 2010, la plus forte concentration en plomb mesurée a été atteinte à Estrées-Mons, sur la parcelle ESTP24, avec une valeur de 141 *mg/kg*. L'année suivante, en 2011, la concentration en Pb au niveau de cette même parcelle a diminué jusqu'à atteindre 23 *mg/kg*. Ceci pourrait s'expliquer par la proximité de la parcelle à un aéroport. Cette zone pourrait avoir également des résidus de munitions datant de la guerre. Il y aurait alors eu dissémination de contaminants.

A Clermont-Ferrand, une forte concentration en arsenic est observée. Elle atteint les 47 *mg/kg* en 2011. Il y aurait donc une anomalie arsenic car cette teneur est trop élevée. La parcelle étudiée se trouve dans la plaine de la Limagne qui correspond à une plaine d'effondrement. Ce sont d'abord les retombées volcaniques qui ont été suspectées d'être à l'origine de cette anomalie. Or, les prélèvements effectués sur la Chaîne des Puys ont montré des concentrations en As faibles. L'hypothèse des retombées volcaniques a donc été écartée. L'origine n'est toujours pas connue, la biodisponibilité de l'arsenic serait importante sur ce site.

Certaines hétérogénéités peuvent donc expliquer que les valeurs régionales sont parfois plus élevées que les valeurs nationales.

5.1.3 Relations entre les éléments dans les sols

Beaucoup d'éléments sont reliés entre eux et peuvent être corrélés.

Le fer et le manganèse sont souvent présents ensemble à l'état naturel du fait de l'altération météoritique des roches et des minéraux. Leur relation est visible sur nos parcelles (Fig.6).

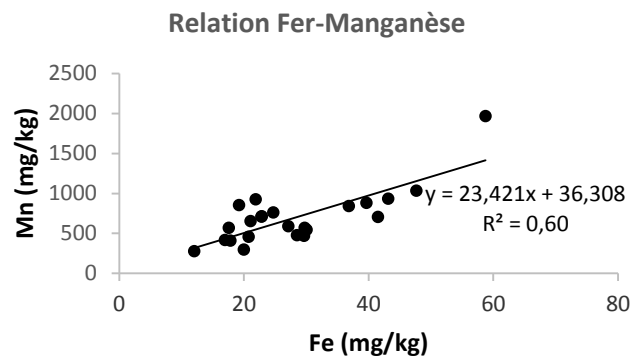


Figure 6 : Graphique montrant la relation entre le fer et le manganèse

La co-occurrence du nickel et du chrome est aussi connue (Fig. 7). Ces deux éléments peuvent être localisés dans des nodules dans les sols.

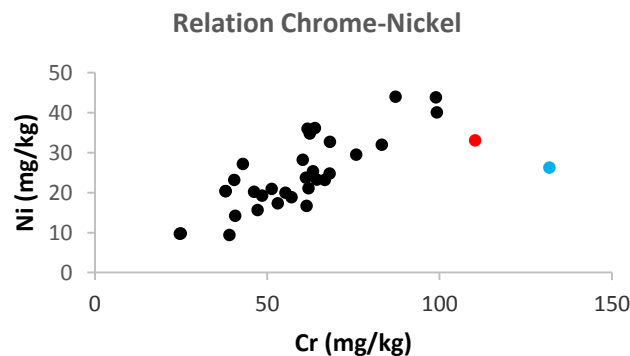


Figure 7 : Graphique montrant la relation entre le chrome et le nickel

Cependant, deux points se distinguent : il s'agit des parcelles de Lusignan. Le point rouge correspond à la parcelle LUSR6 en 2011. Cette parcelle a ajouté plus d'engrais azoté de type ammonitrate. Le point bleu indique la parcelle LUSC5 en 2010. Lors de cette année, 25 t/ha de fumier bovin et caprin composté ont été ajoutés à cette parcelle, ce qui serait la cause cette teneur anormalement élevée.

Le chrome se corrèle également bien avec le fer (Fig. 8) mais pas avec l'aluminium.

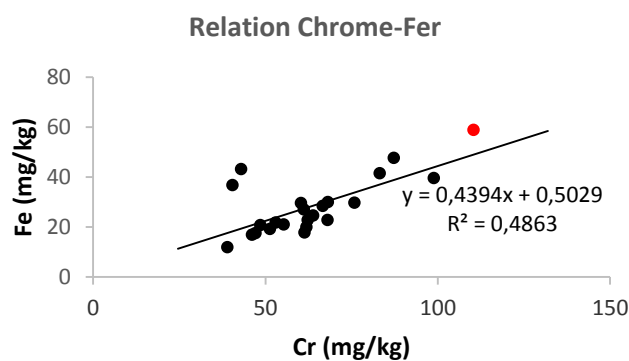


Figure 8 : Graphique montrant la relation entre le chrome et le fer

Ainsi, le chrome se trouverait plutôt dans les oxydes de fer et non dans les oxydes d'aluminium. Le point rouge correspond à la parcelle LUSR6 en 2011.

La relation entre le cuivre et le fer montre que deux groupes différents de sols peuvent être différenciés en regardant la tendance des points (Fig. 9). De même, la relation entre le cuivre et l'aluminium montre également ces deux groupes.

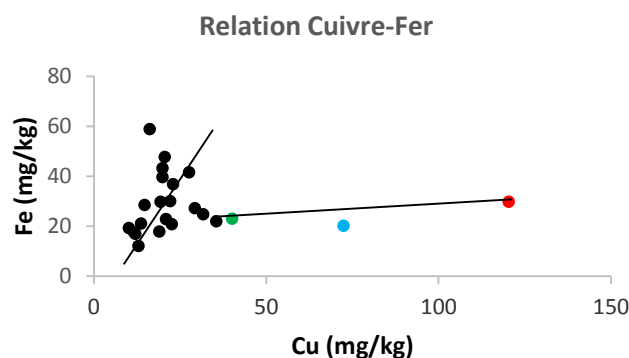


Figure 9 : Graphique montrant la relation entre le cuivre et le fer

Quelques points se distinguent alors par leur concentration élevée en cuivre. Il s'agit de parcelles à antécédent viticole, ce qui implique des apports importants et réguliers de bouillie bordelaise sur la vigne pour lutter contre le mildiou et ce qui expliquerait les fortes teneurs en cuivre. Le point rouge correspond à la parcelle CARCC1 à Carcassonne, le point bleu à la parcelle ISLI19 à Isle-sur-Sorgues et le point vert à la parcelle AVIDEF7 à Avignon.

5.2 Les retombées atmosphériques

La pollution atmosphérique, agissant directement sur la santé des populations humaines et des écosystèmes, demeure particulièrement importante. Pour notre étude, ce sont les dépôts atmosphériques qui sont intéressants.

Parmi les pays européens, la France occupe une place variable selon les niveaux de dépôts d'éléments. Ces derniers sont moyens pour l'aluminium, le chrome, le fer, le nickel, le cuivre et le plomb. Pour les éléments pouvant être d'origine terrigène (Al, Cr, Fe, Ni), les apports seraient

essentiellement naturels, en provenance de particules du sol remises en suspension localement ou transportées par les vents sahariens. Pour le cuivre, les transports automobile et ferroviaire peuvent être une source probable. Concernant le plomb, les contaminations seraient liées à des sources industrielles locales, et à la forte rémanence du plomb dans les sols, depuis que le plomb n'est plus utilisé comme antidétonant dans les essences depuis l'année 2000. Les niveaux de dépôt sont faibles pour le cadmium et le zinc, et seraient dus à une baisse des émissions anthropiques ces dernières décennies. Enfin, les niveaux de dépôt sont élevés pour l'arsenic et le mercure.

Plusieurs sources d'émissions locales sont possibles. Il y a les sources industrielles où se regroupent les anciennes mines, les incinérateurs de déchets par exemple, et celles agricoles. Cependant, ces différentes sources ne peuvent expliquer que partiellement les fortes contaminations.

Les données de retombées atmosphériques ont été obtenues grâce aux rapports de l'EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme) sur la France et de la SOGREAH (Tab. 7).

Tableau 7 : Dépôts atmosphériques moyens en France

	As	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Dépôts atmosphériques moyens en France (g/ha)	0,6	0,36	3,5	10	4	21,1	60

5.3 Les intrants agricoles

5.3.1 Bilan des pratiques actuelles

Les pratiques actuelles pendant les quatre ans de suivi des parcelles ont été recensées et analysées. Plusieurs types d'intrants sont utilisés selon les cultures (Fig.10). Certaines parcelles ne reçoivent que des amendements organiques, d'autres que de l'engrais azoté. L'utilisation d'engrais azoté peut également être associé à des engrais phosphatés ou potassiques, des engrais organiques, des amendements calcaires, ou encore des oligo-éléments.

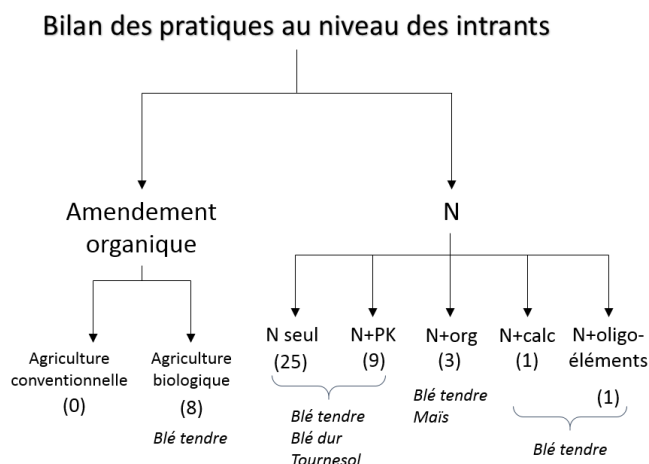


Figure 10 : Schéma du bilan des pratiques au niveau des intrants (entre parenthèses : nombre de parcelles concernées)

L'engrais le plus utilisé est un engrais azoté de type ammonitrate. De plus, certaines parcelles n'utilisent que des amendements organiques : il s'agit des parcelles en agriculture biologique.

5.3.2 Niveaux de contamination des intrants

Les apports d'engrais et d'amendements ont pour objectif de fournir aux cultures trois catégories d'éléments :

- des éléments de base c'est-à-dire l'azote, le phosphore et le potassium. Il existe alors les engrais simples (N, P, K), les engrais binaires (NP, NK, PK) ou encore les engrais ternaires (NPK);
- des éléments secondaires comme le calcium, le soufre et le magnésium ;
- des oligoéléments tels que fer, manganèse, molybdène, cuivre, bore, zinc, chlore, sodium, cobalt, vanadium et silicium.

Les engrais chimiques et les amendements organiques sont deux types d'intrants qu'il faut distinguer.

Les engrais chimiques sont utilisés pour l'agriculture intensive afin d'augmenter la croissance et le rendement des cultures. Trois familles d'engrais chimiques existent :

- les engrais azotés : l'apport azoté est exprimé en azote N et est apporté sous forme de nitrate NO_3^- , d'ammonium NH_4^+ ou d'urée $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$. L'azote a un rôle très important dans la croissance des végétaux.
- les engrais potassiques : le potassium est exprimé sous la forme K_2O , mais est apporté par du chlorure, du nitrate et du sulfate de potassium.
- les engrais phosphatés : le phosphore est exprimé sous la forme P_2O_5 , mais est apporté sous forme de phosphate de calcium ou d'ammonium.

Les amendements organiques sont obtenus par récupération des déjections animales telles que les lisiers et fumiers, ou par compostage des déchets organiques tels que les déchets alimentaires, les déchets verts ou encore les boues issues de l'épuration des eaux. Ils ont pour principale fonction d'améliorer la fertilité du sol. Ils servent également à améliorer les propriétés physiques et biologiques du sol. Ces amendements contribuent néanmoins à la pollution de l'air, du sol et de l'eau (Fig. 11).

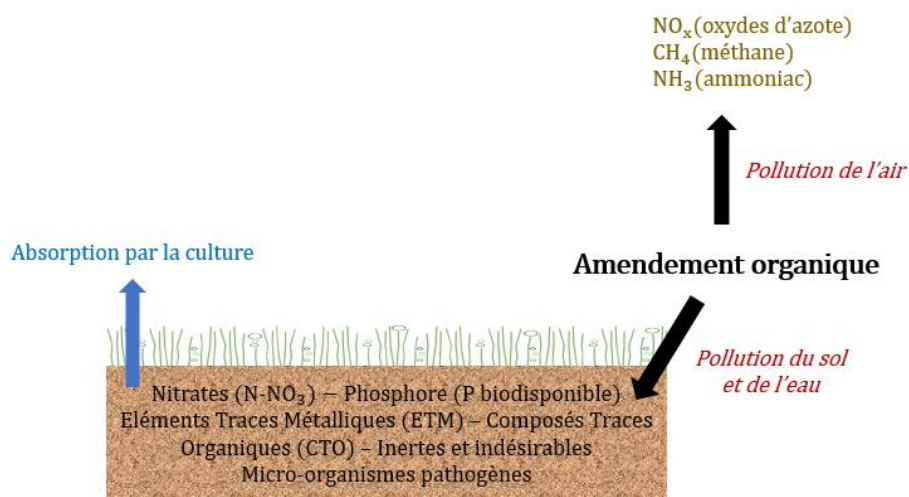


Figure 11 : Schéma des flux potentiels de pollution de l'air, du sol et de l'eau par les amendements organiques. Source : http://www.languedocroussillon.chambagri.fr/fileadmin/Pub/CRALR/Internet_CRALR/Documents_internet_CRALR/GUIDE_MO/Tome1_chapt_6.pdf

Des normes à respecter relatives aux flux annuels d'éléments métalliques apportés par les amendements organiques concernant les boues de station d'épuration ont été mises en place (Tab. 8). C'est pour cette réglementation que les flux les plus élevés sont acceptés.

Tableau 8 : Flux annuels de métaux dus à l'apport d'amendement organique à respecter d'après la réglementation en vigueur (Extrait des normes et de l'Arrêté du 08/01/98)

en g/ha/an	As	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Flux annuels de métaux par épandage d'amendement organique à respecter	270	45	1800	3000	900	2700	6000

Ainsi, des risques sanitaires et environnementaux peuvent apparaître en cas de surdosage, de répartition irrégulière sur la parcelle, de teneur élevée dans les produits épandus ou de mauvaises périodes d'épandage par rapport aux conditions climatiques ou culturales. Il est alors important de surveiller les quantités apportées.

5.3.3 Les amendements organiques en agriculture biologique

En agriculture biologique, il est interdit d'utiliser des produits issus de la chimie de synthèse. Ce type d'agriculture se veut plus respectueux de l'environnement. En effet, la préservation de l'environnement est une problématique actuelle. Un des objectifs du Grenelle de l'environnement est de faire passer l'agriculture biologique à 20% des surfaces agricoles en 2018. L'agriculture biologique devrait alors se développer de plus en plus dans les années à venir.

Cependant, les produits de substitution aux engrais chimiques ne permettent pas d'assurer une bonne couverture des besoins alimentaires des cultures. De plus, la faible teneur en éléments fertilisants de ces produits et leur forme posent des problèmes de stockage et de transport. Par exemple, pour obtenir l'équivalent d'une tonne d'engrais minéraux azotés, il faudrait transporter 40 tonnes de compost. La gestion de l'azote provenant de la fertilisation organique se révèle alors

plus difficile qu'avec des engrais minéraux car sa nitrification s'étale sur plusieurs années, au fur et à mesure de l'action des micro-organismes du sol.

En analysant quatre parcelles cultivant en agriculture biologique dans le réseau QUASAPROVE, un bilan des teneurs en métaux apportés par les amendements organiques est établi (Tab. 9).

Tableau 9 : Bilan des ETM apportés par les amendements organiques sur quatre parcelles en agriculture biologique

Lieu de prélèvement	Parcelle	Année	Teneurs en ETM apportés par les amendements organiques (fumier composté) en g/ha					
			As	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn
Bar Le Duc	BAREDF	2013	82,4	15	802,8	3742,5	677,6	9390
Bar Le Duc	BARLAC	2014	120,8	22	1177,4	5489	993,7	13772
Rethel	RETARB	2013	164,7	30	1605,6	7485	1355,1	18780
Rethel	RETCOT	2014	164,7	30	1605,6	7485	1355,1	18780

Ainsi, les teneurs en cuivre et en zinc apportées par les amendements organiques se distinguent car elles sont très élevées. Ces valeurs s'expliquent par le fait que l'alimentation des élevages bovins, porcins et de volailles est couramment complémentée en ces éléments, dépassant les besoins réels, ce qui résulte en un rejet important dans les déjections.

Certes, l'agriculture biologique n'apporte pas de produits chimiques aux parcelles, mais les quantités d'amendements organiques apportées entraînent des flux de métaux importants dont il faut être conscient.

5.3.4 Calcul de flux d'ETM à la parcelle apportés par les intrants agricoles pour chaque type de culture

Le type d'intrant utilisé n'est pas le même selon la culture et selon les pratiques culturales exercées. Il est alors intéressant de connaître les teneurs en éléments métalliques selon le type de culture et le type d'intrant apporté (Fig. 12, 13, 14, 15).

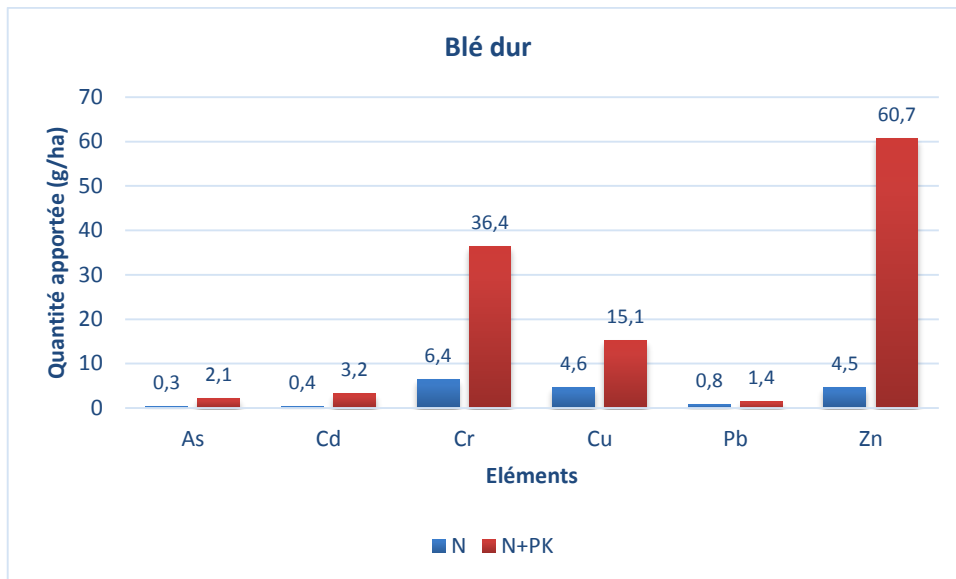


Figure 12 : Graphique de la quantité apportée en ETM en fonction du type d'intrant pour la culture du blé dur

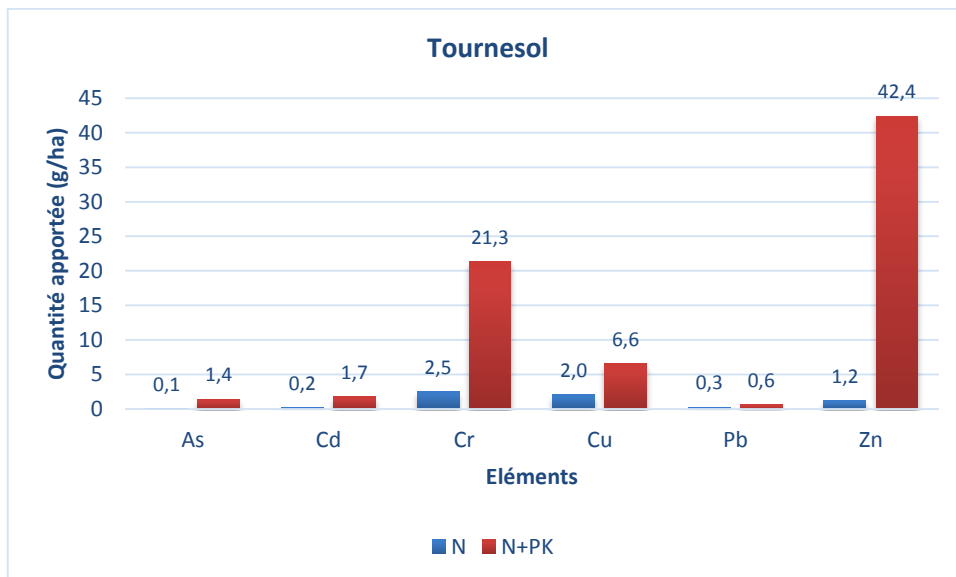


Figure 13 : Graphique de la quantité apportée en ETM en fonction du type d'intrant pour la culture du tournesol

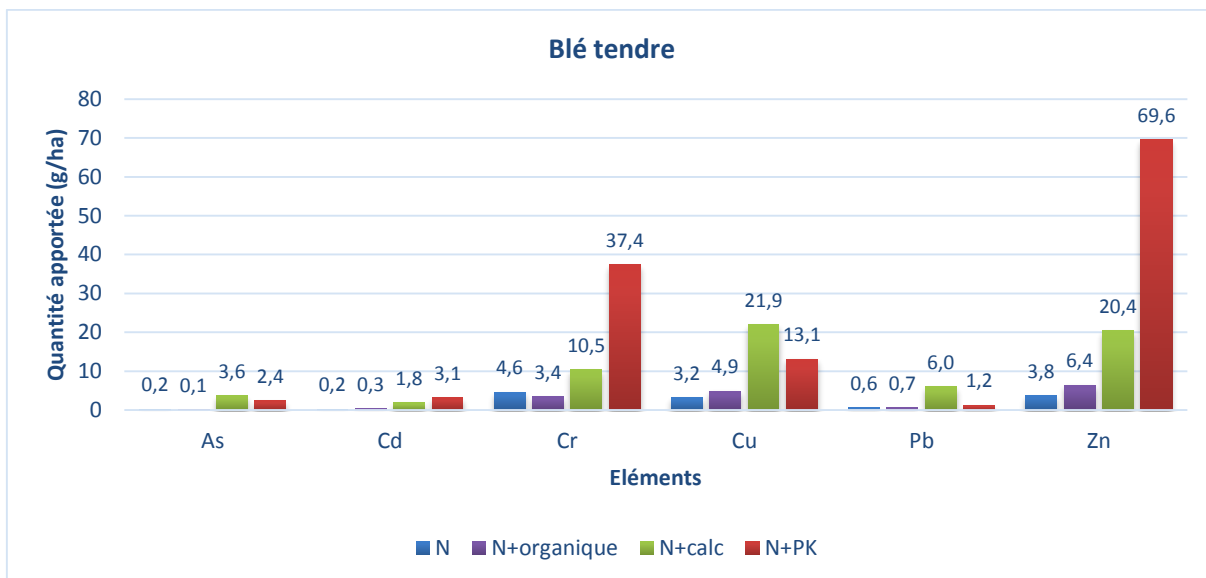


Figure 14 : Graphique de la quantité apportée en ETM en fonction du type d'intrant pour la culture du blé tendre

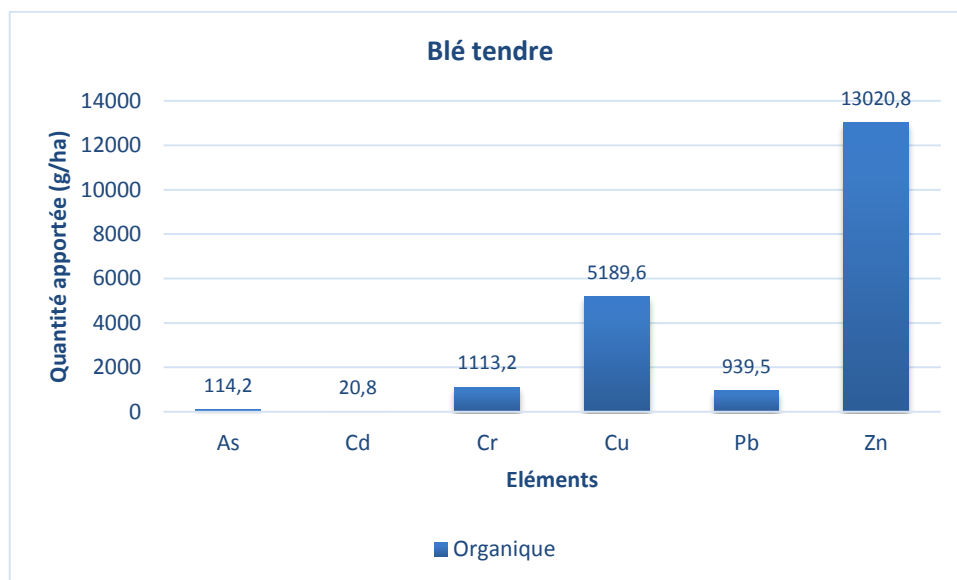


Figure 15 : Graphique de la quantité apportée en ETM par les amendements organiques pour la culture du blé tendre

Pour les parcelles en agriculture biologique, cultivant du blé tendre, les quantités apportées en amendement organique sont très élevées comme vu dans la partie précédente (Cf. partie 5.3.3).

De plus, les teneurs en éléments varient beaucoup selon le type d'intrant utilisé. Ce sont les engrais azotés additionnés aux engrais mixtes qui apportent les plus grandes quantités d'éléments métalliques. Les teneurs en chrome, cuivre et zinc se distinguent particulièrement des autres. Elles sont en général plus élevées. En effet, ces trois éléments sont abondants dans les engrais phosphatés et le lisier de porc notamment.

5.4 La contamination des végétaux

5.4.1 Etat des lieux de la contamination

Au niveau des végétaux étudiés, trois parties sont étudiées : les grains, les plantules et les parties aériennes à la récolte. La contamination peut alors se faire à ces trois niveaux, et il est intéressant d'étudier s'il y a une différence de teneurs en ETM dans ces différents organes (Fig. 16, 17, 18).

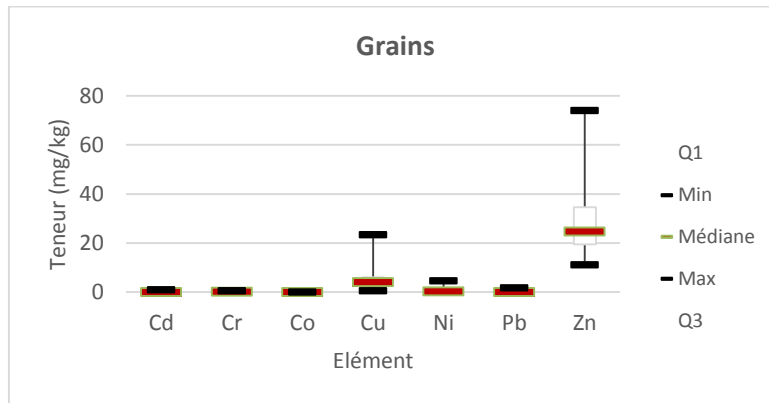


Figure 16 : Teneurs en ETM dans les grains

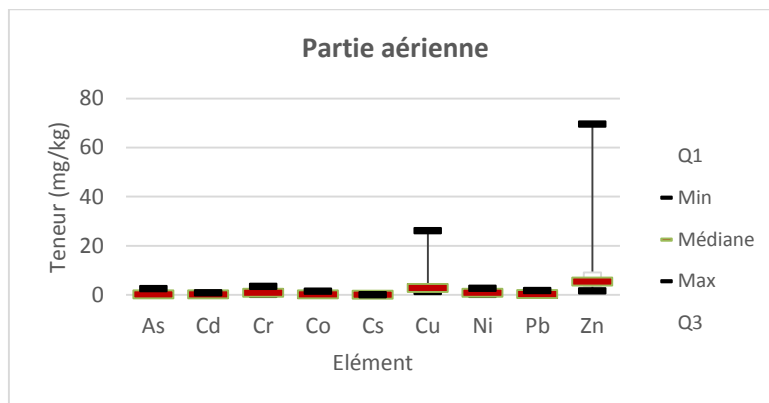


Figure 17 : Teneurs en ETM dans la partie aérienne à la récolte

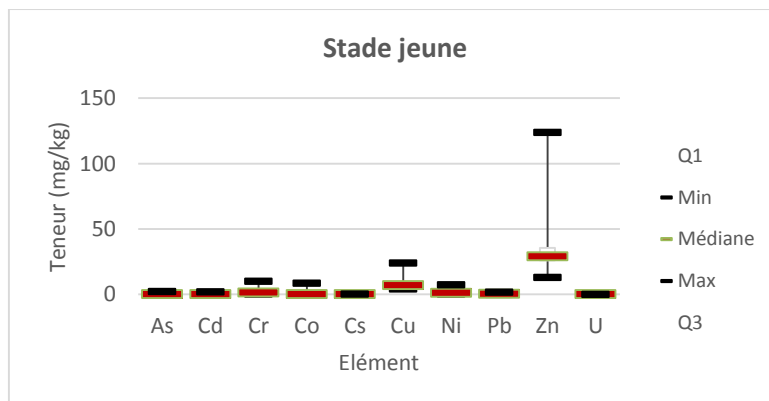


Figure 18 : Teneurs en ETM dans la plantule au stade jeune

Globalement, les teneurs les plus élevées dans les trois parties concernent le cuivre et le zinc. Ces deux éléments étant des oligo-éléments indispensables, ils sont plus fortement prélevés par les plantes. En étudiant les concentrations plus dans le détail, des différences entre les parties se remarquent (Tab. 10).

Tableau 10 : Teneurs totales en ETM dans les trois parties de la plante

en mg/kg		As	Cd	Cr	Co	Cs	Cu	Ni	Fe	Pb	Zn	U
Grains	Minimum	0	0	0	0	0	0,68	0	16	0	11,18	
	Maximum	0,37	1,11	0,70	0,15	0,01	23,5	4,77	54	1,81	74,1	
	Moyenne	0,01	0,10	0,11	0,03	0,001	5,79	0,53	31,59	0,09	28,73	
Partie aérienne	Minimum	0	0,02	0,22	0,01	0	1,46	0,22	18,1	0	1,64	0
	Maximum	2,55	0,86	3,55	1,52	0,06	26,2	2,76	1440	1,82	69,6	0,01
	Moyenne	0,15	0,15	0,97	0,14	0,02	3,93	0,80	141,42	0,34	9,97	0
Plantule	Minimum	0,06	0,04	0,30	0	0,02	4,39	0,39	52,57	0	13,2	0
	Maximum	2,28	2,16	10,12	8,79	0,4	24,2	7,40	1280	1,71	124	0,21
	Moyenne	0,32	0,28	1,57	0,28	0,10	8,30	1,24	260,07	0,38	33,00	0,04

Les teneurs en éléments sont de plus en plus élevées respectivement des grains, à la partie aérienne, et à la plantule, sauf pour deux éléments : le cuivre et le zinc. Pour ces deux éléments, les teneurs sont particulièrement élevées dans les grains et la plantule, et plus faibles au niveau de la partie aérienne. Le cuivre et le zinc se stockent alors davantage dans les grains et dans la plantule. Ils ne vont pas jusqu'à la partie aérienne de la plante.

De plus, la réglementation pour le cadmium est de 0,2 mg/kg MF (Matière Fraîche) dans les grains et de 1,14 mg/kg MS (Matière Sèche) dans la paille, c'est-à-dire la partie aérienne pour le blé. Sur tous les sites, les valeurs sont bien inférieures à la réglementation.

5.4.2 Relations entre les éléments dans les plantes

Plusieurs relations existent entre les éléments dans les plantes. Il faut distinguer les trois parties de la plante étudiées.

Le fer peut être corrélé avec plusieurs éléments tels que le césium et l'uranium (Fig. 19).

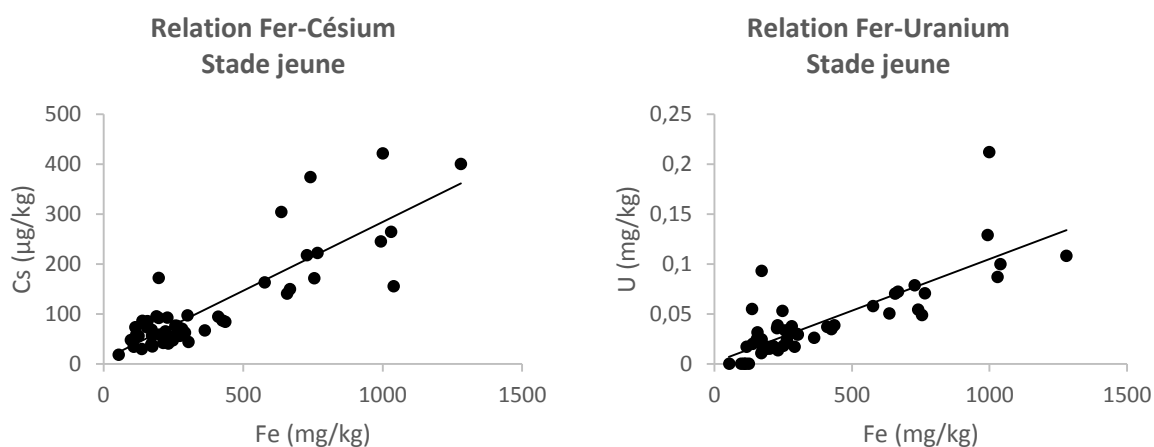


Figure 19 : Graphiques montrant les relations entre le fer, le césium et l'uranium dans les plantules

Le fer a également une relation avec le plomb (Fig. 20).

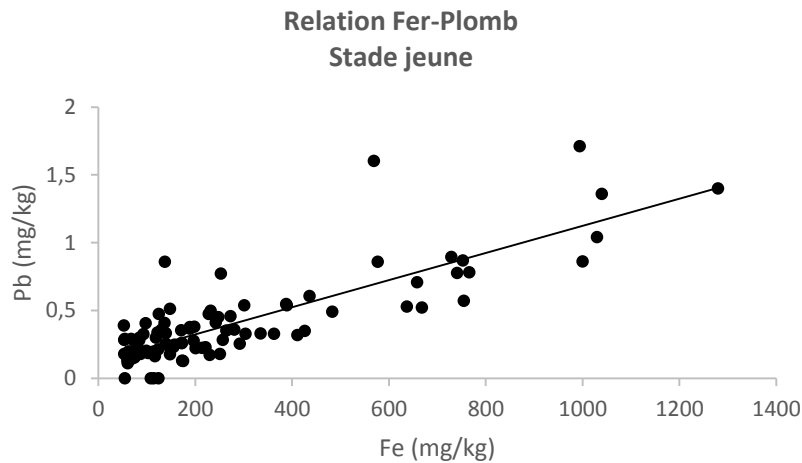


Figure 20 : Graphique montrant la relation entre le fer et le plomb dans les plantules

Ainsi, ces éléments se comportent de la même manière dans les plantes. L'uranium, le césium et le plomb sont stockés de la même manière que le fer dans les plantes.

5.4.3 Facteurs explicatifs des niveaux de contamination

Il existe plusieurs facteurs pouvant expliquer les différents niveaux de contamination au niveau des végétaux.

Tout d'abord, en regroupant les données concernant le sol et les plantes, il est possible de savoir s'il existe une relation entre les teneurs totales dans les plantes et celles dans le sol. Avec les exemples du cadmium et du plomb, les nuages de points suivants sont obtenus (Fig. 21).

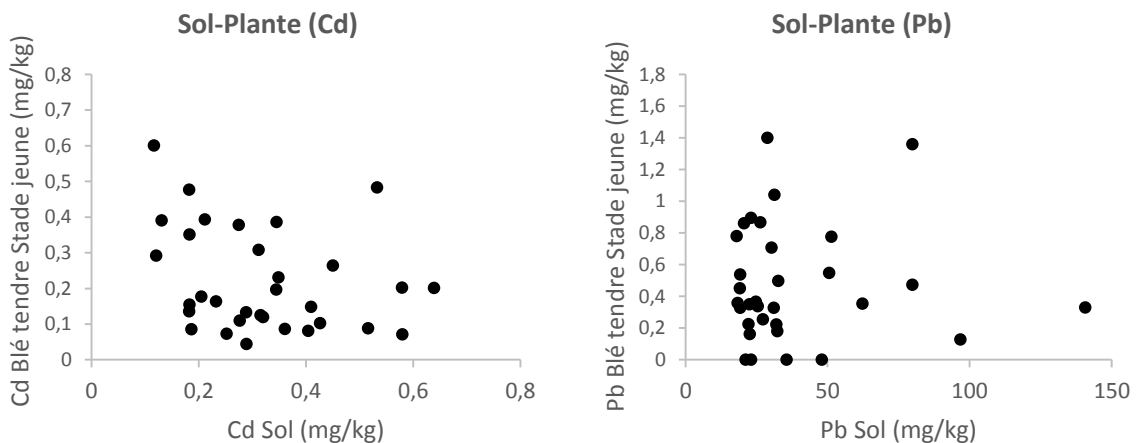


Figure 21 : Graphiques des teneurs totales en cadmium et en plomb du sol en fonction de celles du blé tendre au stade jeune

Les points ne semblent pas montrer une tendance particulière : il n'y a donc pas de relation entre la teneur totale dans la plante et celle dans le sol. En effet, les métaux sont plus ou moins disponibles suivant la composition du sol et ses conditions physico-chimiques. La plante

prélève seulement dans la solution du sol, or, certains ETM peuvent être fixés aux phases solides du sol. Ainsi, si la teneur totale en ETM dans le sol est augmentée, cela ne veut pas dire que la disponibilité pour la plante va augmenter et donc que la contamination des plantes va s'accroître également.

De plus, il est possible de déterminer si les teneurs totales dans la plante dépendent des précédents agricoles. En prenant l'exemple des sept parcelles dont le précédent agricole était du blé tendre en 2012, les résultats suivants sont obtenus (Tab. 11) :

Tableau 11 : Teneurs moyennes dans la plante pour les parcelles en précédent blé tendre en 2012

Teneurs en mg/kg	As	Cd	Cr	Co	Cs	Cu	Fe	Mn	Ni	P	Pb	Zn	U
Grains	0,03	0,08	0,19	0,05		4,94	34,7	37,5	0,37	3,86	0,02	25,6	
Partie aérienne	0,18	0,14	0,84	0,17		2,49	94,5	65,6	0,68	1,02	0,15	5,99	
Plantule	0,25	0,38	1,58	0,28	0,1	8,65	409	85,2	1,03	4,66	0,50	29,3	0,06

Par comparaison avec le tableau 11, qui donne les teneurs moyennes totales dans les trois parties de la plante, les résultats se montrent similaires.

Pour les trois parcelles en précédent maïs grain en 2013, voici les résultats obtenus (Tab. 12) :

Tableau 12 : Teneurs dans la plante pour les parcelles en précédent maïs grain en 2013

Teneurs en mg/kg	As	Cd	Cr	Co	Cs	Cu	Fe	Mn	Ni	P	Pb	Zn	U
Grains	0	0,03	0,10	0	0	3,92	27,97	32,40	0,34	3,23	0	23,30	0
Partie aérienne	0,07	0,05	0,51	0,02	0,01	2,10	38,43	23,37	0,41	0,71	0,83	3,51	0
Plantule	0,29	0,12	1,58	0,19	0,1	5,99	472	75,43	0,81		0,61	36,13	0,05

Toujours en comparant avec le tableau 11, les teneurs en éléments apparaissent globalement plus faibles pour les parcelles en précédent maïs, malgré la présence de quelques valeurs anormales pour le fer et le plomb. En effet, le maïs stocke peu de métaux mais produit de grandes quantités de biomasse.

Pour les trois parcelles en précédent tournesol en 2012, les résultats sont les suivants (Tab. 13) :

Tableau 13 : Teneurs dans la plante pour les parcelles en précédent tournesol en 2012

Teneurs en mg/kg	As	Cd	Cr	Co	Cs	Cu	Fe	Mn	Ni	P	Pb	Zn	U
Grains	0	0,24	0,05	0,01		5,43	29,2	34,93	0,22	3,69	0,10	29,37	
Partie aérienne	0,27	0,34	1,57	0,79		3,75	610	56,50	1,36	0,51	0,80	8,44	
Stade jeune	0,19	0,59	1,02	0,13	0,08	7,2	214	82,17	0,91	4,04	0,34	31,9	0,03

Pour ces parcelles en précédent tournesol, les teneurs sont plus élevées dans la partie aérienne que dans la plantule au stade jeune, pour la plupart des éléments. De plus, le tournesol apporte plus de cadmium que le blé tendre, d'où les fortes concentrations en cet élément.

Ainsi, les niveaux de contaminations élevés concernent davantage les parcelles en précédent tournesol que celle en précédent blé tendre. De plus, les parcelles en précédent maïs sont celles qui présentent des concentrations en métaux les plus faibles. Il faut noter que les résultats obtenus concernent un faible nombre de parcelles. Les conclusions émises devraient donc être vérifiées avec un nombre de parcelles plus conséquent afin de les valider.

5.5 Les flux à la parcelle

5.5.1 Flux d'exportation par les récoltes

Les flux d'exportation par les récoltes peuvent être mis en évidence en prenant en compte les quantités exportées dans les grains calculées selon les types de culture (Tab. 14).

Tableau 14 : Bilan des flux d'exportation

<i>Quantités exportées en g/ha</i>	As	Cd	Co	Cr	Cs	Cu	Fe	Pb	Zn	U
Blé dur	0,30	0,86	0,36	0,49	0,47	29,93	100,84	0,74	128,98	0,47
Blé tendre	0,26	0,40	0,59	1,10	0,60	24,14	160,83	0,65	136,08	0,60
Tournesol	0,37	0,71	0,30	0,28	0,13	23,07	39,26	0,24	85,36	0,07
Maïs	0,03	0,14	0,80	1,27		6,60	73,86	0,70	68,22	

Les quantités exportées les plus élevées concernent le fer et le zinc pour les cultures de blé dur et blé tendre. Pour le blé, les grains peuvent être exportés et la paille réincorporée ou alors toute la plante peut être exportée. Pour le tournesol, les parties aériennes sont broyées et remis à la parcelle systématiquement. Concernant le maïs, il y a le maïs ensilage qui est totalement exporté pour nourrir les bovins et le maïs grain dont la partie aérienne est réincorporée.

5.5.2 Bilan des flux globaux

Un bilan des flux globaux peut être établi, en tenant compte des retombées atmosphériques, des quantités d'intrants apportés, des quantités exportées et des quantités réincorporées à la parcelle (Tab. 15).

Tableau 15 : Bilan des flux globaux donné sous forme d'intervalles

<i>Teneurs en g/ha</i>	As	Cd	Cr	Cu	Pb	Zn
Retombées atmosphériques	0,2-0,8	0,1-0,5	1-5	6-12	4-31	20-100
Quantité apportée	0,02-165	0,01-30	0,4-1606	0,2-7485	0,1-1355	0,4-18780
Quantité exportée	0,01-0,4	0,03-3	0,03-4	8-55	0,1-11	69-256
Quantité réincorporée	0,1-9	0,1-3	0,1-16	1-37	0,1-18	10-538

Ainsi, les retombées atmosphériques les plus importantes concernent les éléments zinc et plomb. Les quantités apportées varient considérablement, du fait des amendements organiques qui apportent de grandes quantités d'éléments métalliques dans le sol. Les quantités exportées et réincorporées sont globalement élevées pour le cuivre et le zinc.

5.5.3 Evolution annuelle des flux et des stocks

L'évolution annuelle des flux et des stocks peut être étudiée au niveau des parcelles et pour chaque élément trace.

Au niveau des parcelles, un bilan des quantités apportées, exportées, de biomasse, des retombées atmosphériques et des stocks peut être établi. En prenant l'exemple d'une parcelle à Carcassonne, voici les résultats obtenus (Fig. 22) :

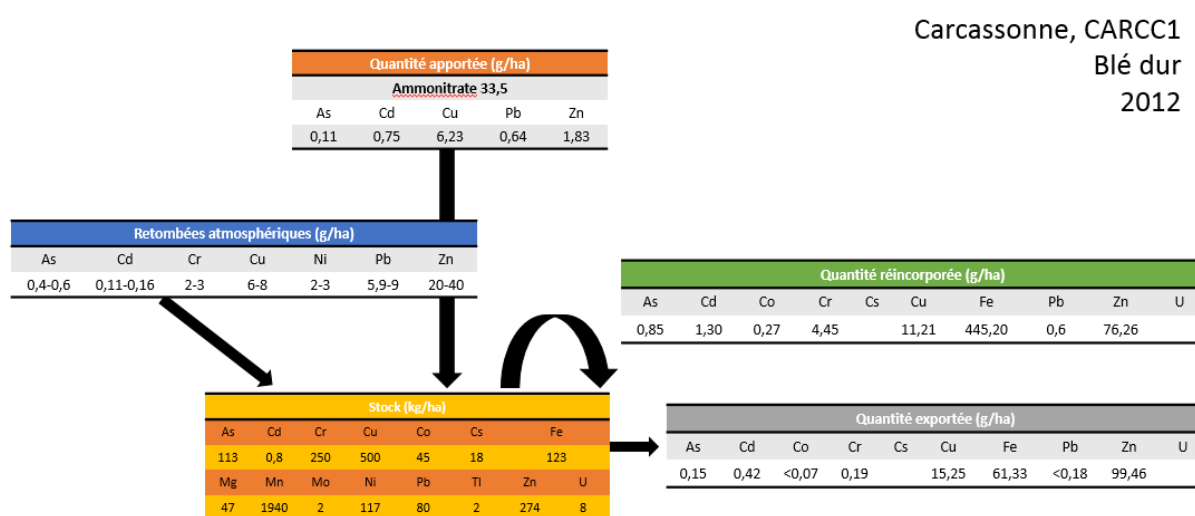


Figure 22 : Bilan annuel des flux et des stocks pour la parcelle CARCC1 à Carcassonne en 2012

Les stocks de métaux sont donnés en *kg/ha*, car les valeurs sont très hautes. Le stock de cuivre dans le sol est particulièrement élevé car cette parcelle a un antécédent viticole. De plus, les quantités de fer et de zinc sont globalement fortes, ce qui pourrait être dû au substrat géologique de nature sableuse.

Un autre exemple peut être établi à Montbrison (Fig. 23) :

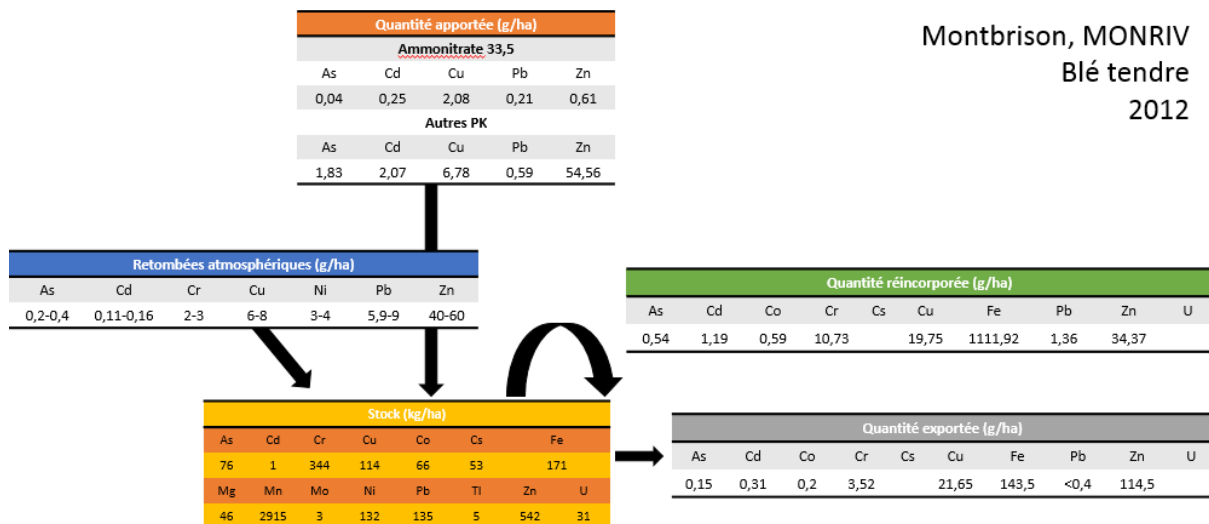


Figure 23 : Bilan des flux et des stocks pour la parcelle MONRIV à Montbrison en 2012

Sur cette parcelle, les teneurs en zinc et en fer sont également élevées. Ceci pourrait s'expliquer par le substrat géologique et par l'apport d'engrais phosphatés.

L'évolution annuelle des flux et des stocks peut aussi être étudiée pour chaque élément trace. En prenant l'exemple des flux et des stocks de cadmium en 2012, voici le schéma obtenu (Fig. 24) :

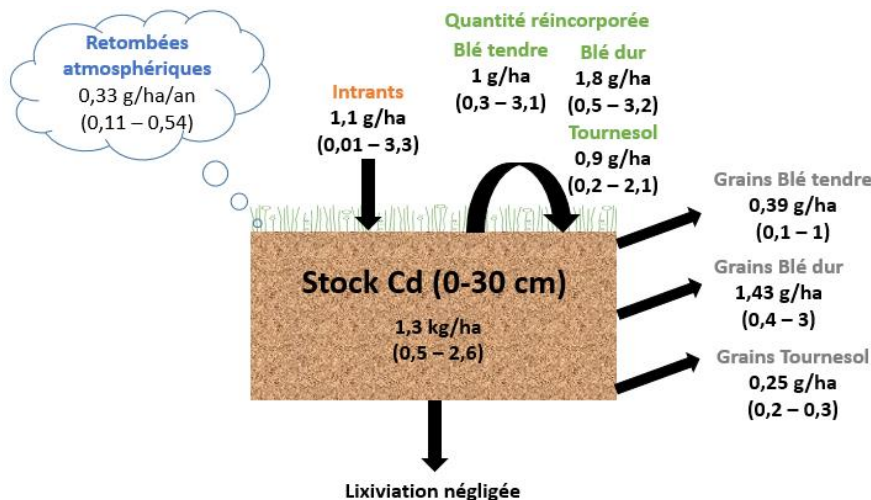


Figure 24 : Evolution des flux et stocks de cadmium en 2012

Les flux les plus importants de cadmium se font au niveau des cultures de blé dur. Le cadmium s'exporte alors plus dans les grains de blé, surtout pour le blé dur, et a tendance à s'accumuler dans le tournesol.

En s'intéressant au plomb, les résultats obtenus sont différents (Fig. 25).

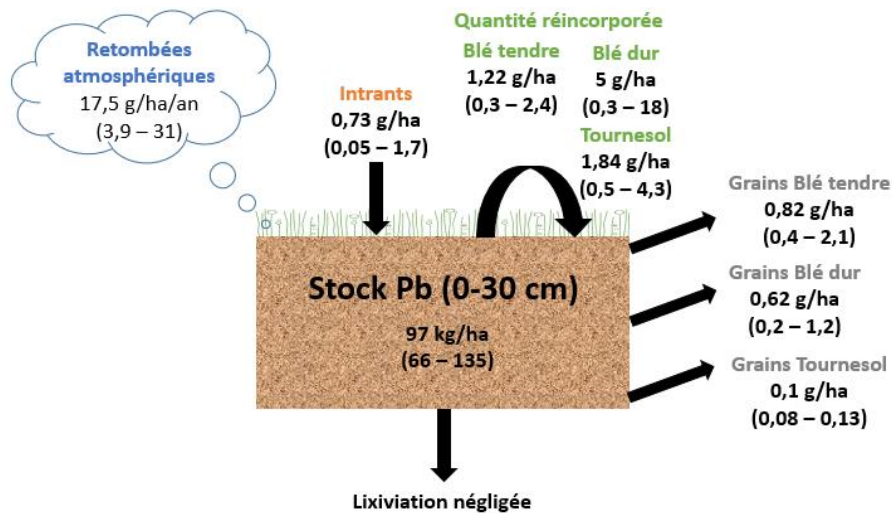


Figure 25 : Evolution des flux et stocks de plomb en 2012

Dans le cas du plomb, les flux les plus importants concernent le blé tendre. Le plomb est davantage exporté dans les grains de blé tendre que dans les grains de blé dur. Cependant, la quantité réincorporée pour le blé dur est très élevée. De plus, le stock et les retombées atmosphériques de plomb sont beaucoup plus élevés que pour le cadmium.

Le calcul du stock peut se faire annuellement en prenant en compte l'année précédente. En effet, pour calculer le stock à l'année n (noté S_n), il faut avoir le stock à l'année $n-1$ (noté S_{n-1}) auquel sont ajoutées les retombées atmosphériques (notées R_{atm}) et la quantité d'intrant apportée (notée Q_{int}), et sont soustraits la quantité exportée (notée Q_{exp}) et la quantité lixiviée (notée Q_{lix}), soit :

$$S_n = S_{n-1} + R_{atm} + Q_{int} - Q_{exp} - Q_{lix}$$

A partir de cette formule, la variation de stock peut se calculer en se basant sur deux situations possibles :

- Si seuls les grains sont exportés et la paille est récupérée, la variation de stock est :

$$\Delta S = R_{atm} + Q_{int} - Q_{exp}$$

- Si toute la plante est exportée, il faut soustraire également la quantité réincorporée et la variation de stock devient :

$$\Delta S = R_{atm} + Q_{int} - Q_{exp} - Q_{réincorporée}$$

Ainsi, la variation de stock peut être estimée chaque année pour chaque parcelle. Elle permet de connaître l'enrichissement ou non de la parcelle en ETM.

Les variations de stock des éléments ont été calculées chaque année et pour chaque parcelle. Les données recueillies de retombées atmosphériques pour le cadmium et le plomb datent de 2011 et celles des autres métaux de 2006. Le cadmium et le plomb ont donc été privilégiés pour les graphiques et l'interprétation des résultats. De plus, les retombées atmosphériques sont données sous forme d'intervalles. Les valeurs minimale et maximale ont alors été distinguées.

Voici les résultats obtenus pour les parcelles AVIC3 et AVIDEF7 à Avignon dans le cas où la paille est récupérée (Fig. 26) :

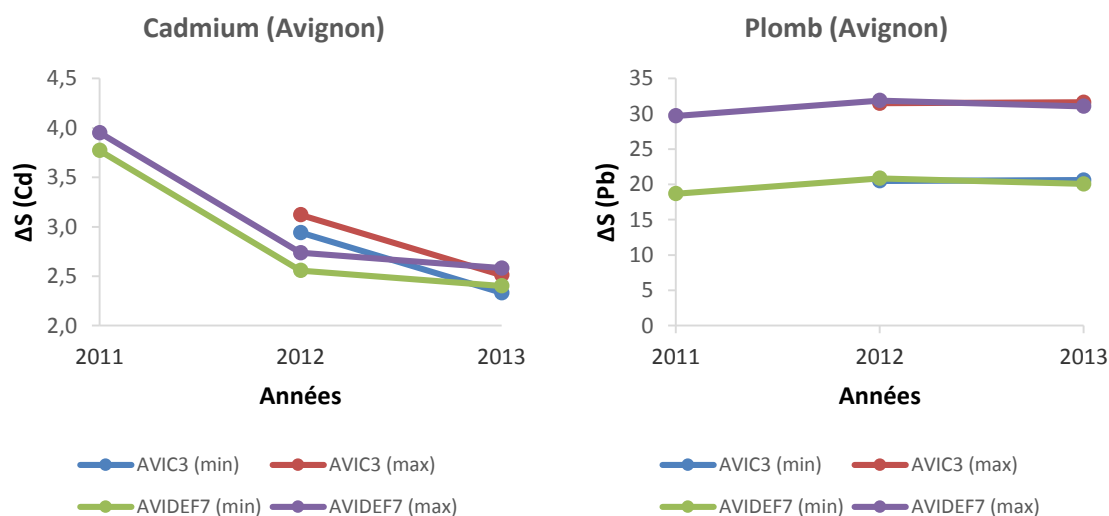


Figure 26 : Graphiques du ΔS pour le cadmium et le plomb à Avignon

Les parcelles AVIC3 et AVIDEF7 ont alterné chaque année entre la culture de tournesol et celle de blé dur. En 2011, la parcelle AVIC3 cultivait du tournesol alors que la parcelle AVIDEF7 cultivait du blé dur.

Le graphique de la variation de stock du cadmium montre que les courbes minimale et maximale sont proches pour les deux parcelles.

Sur le graphique de la variation de stock du plomb, les minimum et maximum des deux parcelles sont éloignés l'un de l'autre, et les points sont proches malgré des pratiques culturales différentes. Ainsi, ceci démontre que ce sont les retombées atmosphériques qui jouent le plus sur les variations de stock au niveau du plomb. Ceci est étonnant car depuis l'année 2000, l'essence contenant du plomb a été interdite. La pollution atmosphérique en plomb avait alors baissé. Or, les résultats obtenus montrent que les retombées atmosphériques en plomb restent malgré tout très importantes aujourd'hui. Il faut noter que les données de retombées atmosphériques recueillies datent de 2011.

Le cas de Lusignan est également intéressant (Fig. 27) :

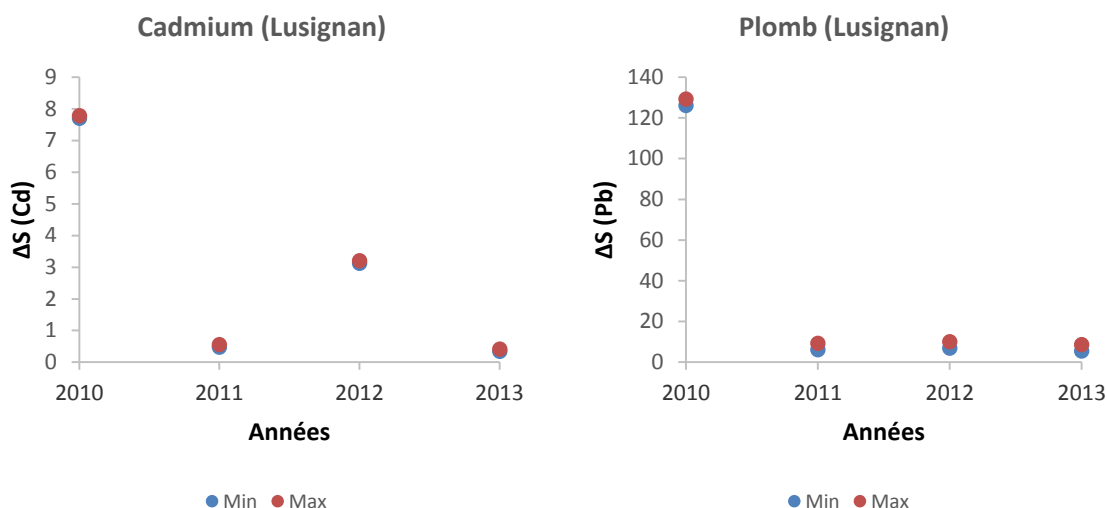


Figure 27 : Graphiques du ΔS pour le cadmium et le plomb à Lusignan

L'étude à Lusignan s'est faite chaque année sur une parcelle différente. Les points correspondent donc chacun à une parcelle différente.

Les graphiques du ΔS pour le cadmium et le plomb montrent que les points maximum et minimum sont proches entre eux pour chaque parcelle. Il y a un point particulièrement élevé en 2010 : en effet, ceci est le résultat d'un apport de fumier bovin sur la parcelle LUSC5. Concernant le cadmium, un autre point est élevé en 2012 et est dû à un apport d'engrais mixte sur la parcelle LUSR5. Cet apport de phosphates a entraîné l'apport de cadmium. Ici, ce sont donc les intrants qui jouent le rôle le plus important.

Ainsi, en étudiant l'évolution annuelle des flux et des stocks, pour tous les ETM, les entrées d'éléments sont plus élevées que les sorties. L'utilisation des sols agricoles implique alors une accumulation des éléments traces et, si la lixiviation est négligeable, les concentrations dans le sol ont tendance à augmenter. De plus, les calculs des variations de stock ont montré que les retombées atmosphériques ne sont pas négligeables, surtout concernant le plomb.

5.5.4 Bilan des flux par itinéraire

En se basant sur les moyennes des variations de stock pour les parcelles et en différenciant ces dernières selon qu'elles cultivent du blé dur, du blé tendre, du tournesol ou du maïs et selon le type d'intrants qu'elles utilisent, des histogrammes peuvent être tracés. Il faut noter que la lixiviation est négligée.

Deux situations apparaissent alors, concernant la récupération de la paille ou non.

- **Première situation : Récupération de la paille**

Les types de culture sont différenciés : le blé dur, le blé tendre et le tournesol sont les trois cas étudiés.

Pour le blé dur, des variations de stock négatives sont mises en évidence (Fig.28).

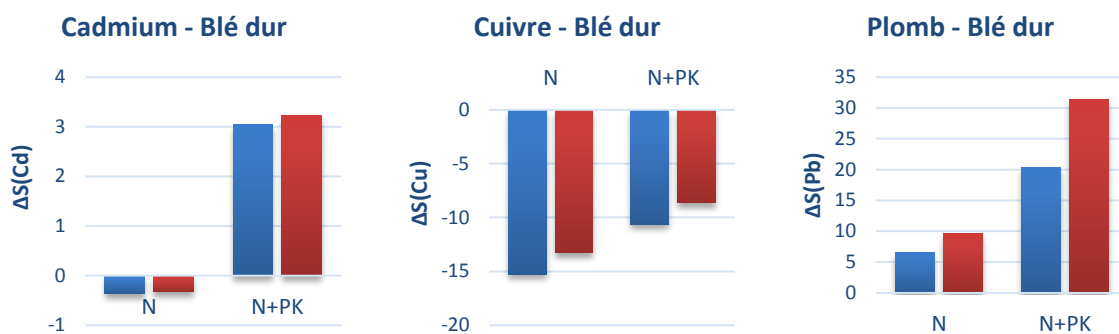


Figure 28 : Histogrammes des variations de stock du cadmium, du cuivre et du plomb pour le blé dur en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille est récupérée)

Ces variations de stock négatives concernent le cuivre, et le cadmium pour l'engrais azoté. Pour ces résultats négatifs, il est certain que le stock va rester négatif en enlevant les quantités de lixiviat. Pour les résultats positifs, le stock ne restera peut-être pas positif, mais il est alors possible de connaître la quantité de lixiviation nécessaire pour passer à une valeur négative. De plus, les variations de stock les plus élevées se retrouvent pour les engrais azotés associés à des engrais phosphatés.

Dans le cas du blé tendre, la part des amendements organiques est très importante par rapport aux autres intrants (Fig. 29).

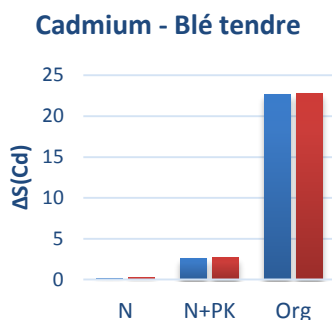


Figure 29 : Histogramme des variations de stock du cadmium pour le blé tendre en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille est récupérée)

Pour le tournesol, des variations de stock négatives s'observent encore : c'est le cas du cadmium (Fig. 30).

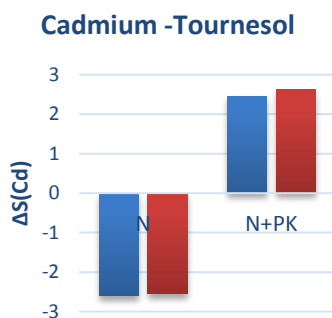


Figure 30 : Histogramme des variations de stock du cadmium pour le tournesol en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille est récupérée)

De plus, les variations de stock sont globalement plus faibles que pour le blé tendre et le blé dur. En effet, le tournesol stocke moins de métaux.

- **Deuxième situation : Exportation de la paille**

Si toute la plante est exportée et que la paille n'est pas récupérée, les résultats sont différents (Fig. 31).

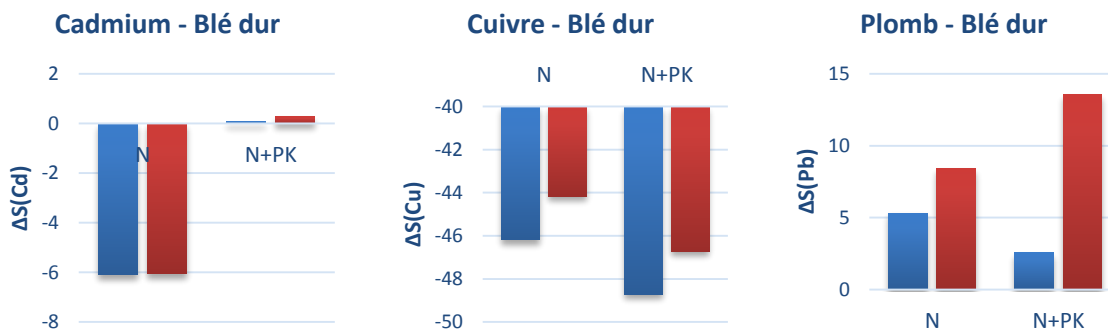


Figure 31 : Histogrammes des variations de stock du cadmium, du cuivre et du plomb pour le blé dur en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille n'est pas récupérée)

Pour le cadmium, la variation de stock concernant l'engrais azoté seul est très négatif, et celle pour l'engrais azoté associé à des engrais phosphatés est faible. En soustrayant la quantité de lixiviation, ces deux résultats devraient être négatifs. Pour le cuivre, les résultats se montrent négatifs à nouveau, mais à une échelle plus grande. La variation de stock du plomb semble globalement plus faible pour ce cas-là.

Concernant le blé tendre, la part des amendements organiques se montre encore très élevée. Cependant, la variation de stock pour l'engrais azoté seul est ici négative (Fig. 32).

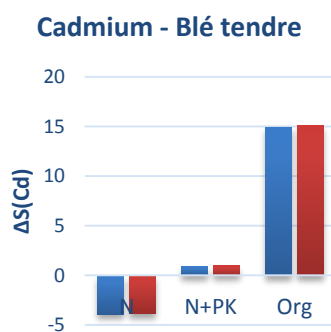


Figure 32 : Histogramme des variations de stock du cadmium pour le blé tendre en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille n'est pas récupérée)

Les valeurs semblent globalement moins élevées que pour la première situation. Ainsi, si toute la plante est exportée, la variation de stock est plus faible. Si la paille est réincorporée à la parcelle, les ETM présents dans la paille sont remis au sol et le stock d'ETM varie davantage.

Les situations les plus à risques concernent donc les productions agricoles dont la variation de stock est très élevée. En effet, il y aura accumulation de métaux dans ces sols et donc contamination des végétaux selon la biodisponibilité des éléments.

Pour aller plus loin en termes de bilan des flux, il est possible de calculer le nombre d'années N qu'il faudrait pour augmenter le stock S de 1%, sous l'hypothèse de 0 lixiviation :

$$N \times \Delta S = 1\% \times S$$

Par exemple pour Versailles, en tenant compte des valeurs maximale et minimale, le nombre d'années pour augmenter le stock de 1% est compris entre 83 et 107 pour le plomb. Pour Rennes, le nombre d'années est compris entre 152 et 303 pour le plomb également. Ainsi, à moyen terme, le stock de métaux dans le sol est stable et ne varie que très peu au cours des années.

CONCLUSION

En confrontant l'historique et le contexte des parcelles avec le bilan des exportations et des importations de métaux, les niveaux de stocks accumulés dans les sols ont pu être analysés. Des facteurs explicatifs des niveaux de contamination élevés ont été dégagés, tels que le substrat géologique, l'historique agricole, les pratiques culturales particulières ou encore les hétérogénéités locales. Ceci a permis d'identifier les situations les plus « à risque ». En effet, il existe des risques sanitaires et environnementaux du fait de la présence de ces éléments dans les sols. Il faut donc être particulièrement vigilant sur les teneurs de ces éléments, d'autant plus que les entrées d'ETM sur les sols agricoles sont apparues supérieures aux sorties, en négligeant la lixiviation.

Les contaminations atmosphériques sont souvent négligées mais pour le plomb, cette pollution diffuse est considérable. Il faut en tenir compte car elle participe en grande partie aux concentrations élevées en plomb dans les plantes.

De plus, l'agriculture biologique est souvent mise en avant comme synonyme de produits sains et de qualité. Or, du fait d'un usage plus important de fertilisants d'origine organique, qui a un effet positif sur la teneur en matières organiques des sols (Fließbach et al. 2007), les flux et les stocks de métaux apportés par les amendements organiques utilisés ne sont pas négligeables.

Cependant, malgré le fait que les bilans d'entrée d'éléments dans le sol soient supérieurs aux bilans de sortie, à moyen terme, le stock de métaux dans le sol est stable.

Il faut noter que le nombre de parcelles analysées dans notre étude reste insuffisant pour confirmer certaines de nos hypothèses. Il faudrait que l'étude se prolonge avec un nombre de parcelles beaucoup plus grand pour être plus représentatif. De plus, seulement huit parcelles en agriculture biologique ont été examinées contre cinquante en agriculture conventionnelle. L'étude devrait être plus poussée concernant les parcelles en agriculture biologique.

Enfin, il est important de souligner les efforts réalisés depuis une vingtaine d'années sur la réduction des flux à la source, sur l'amélioration de la qualité de certains produits et sur la réduction des quantités émises. Les réglementations sur les contaminations sont de plus en plus drastiques. Il y a du progrès concernant la baisse des contaminations des productions agricoles, tel que l'ajustement de la fertilisation phosphatée, la diminution des apports de cuivre dans l'alimentation porcine, l'amélioration nette de la qualité des boues résiduaires urbaines, le bannissement du plomb dans les carburants et l'amélioration de la qualité des émissions atmosphériques de sources fixes.

BIBLIOGRAPHIE

- Anses. *Etude de l'alimentation totale française 2 (EAT 2)*. Tome 1. Rapport d'expertise. 2011.
- Fliessbach A. et al. Soil organic matter and biological soil quality indicators after 21 years of organic and conventional farming, p.273-284. *Agriculture, Ecosystems and Environment*. 118, 2007
- Gis Sol. *L'état des sols de France. Groupement d'intérêt scientifique sur les sols*, éd. Chromatique, 2011.
- McLaughlin M.J., Singh B.R., *Developments in Plant and soil Sciences: Cadmium in Soils and Plants*. éd. Kluwer Academic Publishers. 85, 1999
- Rausch de Traubenberg C., Galsomiès L., Martinet Y., *Pollution atmosphérique par les métaux en France : Dix ans de biosurveillance des retombées*, éd. EDP Science, ADEME, 2013.
- Six L., Smolders E., Future trends in soil cadmium concentration under current cadmium fluxes to European agricultural soils, p.319-328. *Science of the total environment*. Volume 485-486, 2014.
- Smolders E., Cadmium uptake by plants. Pages 177-183. *International Journal of Occupational Medicine and Environmental Health*. Vol. 14 (No. 2), 2001
- SOGREAH. *Bilan des flux de contaminants entrant sur les sols agricoles de France métropolitaine. Bilan qualitatif de la contamination par les éléments traces métalliques et les composés traces organiques et application quantitative pour les éléments traces métalliques*. Rapport d'études. ADEME, 2007.

Sites internet :

- BECQUER T. *Nouvelle-Calédonie : le chrome du sol est-il toxique pour les plantes cultivées ?*
<<http://www.ird.fr/la-mediathèque/fiches-d-actualite-scientifique/173-nouvelle-caledonie-le-chrome-du-sol-est-il-toxique-pour-les-plantes-cultivees>> [consultée le 29.08.2014]
- EMEP. MSC-E. *Modélisation des dépôts métalliques en France*.
<<http://www.msceast.org/index.php/france>> [consultée le 18.06.2014].
- INDIQUASOL. *Base de Données Indicateurs de la Qualité des Sols*.
<<http://indiquasol.gissol.fr/geoindiquasol/main.php>> [consultée le 04.07.2014].
- Groupe de la Chambre d'Agriculture du Languedoc-Roussillon. *Risques sanitaires et environnementaux liés à l'épandage des produits organiques*. Chap.6, Tome I. Languedoc-Roussillon [consulté le 06.08.2014]. Disponible sur internet :
<http://www.languedocroussillon.chambagri.fr/fileadmin/Pub/CRALR/Internet_CRALR/Documents_internet_CRALR/GUIDE_MO/Tome1_chapt_6.pdf>

TABLE DES ILLUSTRATIONS

Figures :

Figure 1 : Distribution du réseau de parcelles.....	12
Figure 2 : Schéma des placettes de prélèvement	14
Figure 3 : Bilan des calculs de stocks et de flux.....	17
Figure 4 : Graphique des teneurs en ETM dans le sol issues du réseau QUASAPROVE	19
Figure 5 : Carte indiquant la géologie de la France.....	21
Figure 6 : Graphique montrant la relation entre le fer et le manganèse	24
Figure 7 : Graphique montrant la relation entre le chrome et le nickel.....	24
Figure 8 : Graphique montrant la relation entre le chrome et le fer	25
Figure 9 : Graphique montrant la relation entre le cuivre et le fer.....	25
Figure 10 : Schéma du bilan des pratiques au niveau des intrants (entre parenthèses : nombre de parcelles concernées).....	26
Figure 11 : Schéma des flux potentiels de pollution de l'air, du sol et de l'eau par les amendements organiques.....	28
Figure 12 : Graphique de la quantité apportée en ETM en fonction du type d'intrant pour la culture du blé dur.....	30
Figure 13 : Graphique de la quantité apportée en ETM en fonction du type d'intrant pour la culture du tournesol	30
Figure 14 : Graphique de la quantité apportée en ETM en fonction du type d'intrant pour la culture du blé tendre.....	31
Figure 15 : Graphique de la quantité apportée en ETM par les amendements organiques pour la culture du blé tendre	31
Figure 16 : Teneurs en ETM dans les grains.....	32
Figure 17 : Teneurs en ETM dans la partie aérienne à la récolte.....	32
Figure 18 : Teneurs en ETM dans la plantule au stade jeune.....	32
Figure 19 : Graphiques montrant les relations entre le fer, le césium et l'uranium dans les plantules	33
Figure 20 : Graphique montrant la relation entre le fer et le plomb dans les plantules.....	34
Figure 21 : Graphiques des teneurs totales en cadmium et en plomb du sol en fonction de celles du blé tendre au stade jeune.....	34
Figure 22 : Bilan annuel des flux et des stocks pour la parcelle CARCC1 à Carcassonne en 2012	37
Figure 23 : Bilan des flux et des stocks pour la parcelle MONRIV à Montbrison en 2012.....	38
Figure 24 : Evolution des flux et stocks de cadmium en 2012	38
Figure 25 : Evolution des flux et stocks de plomb en 2012	39
Figure 26 : Graphiques du ΔS pour le cadmium et le plomb à Avignon	40
Figure 27 : Graphiques du ΔS pour le cadmium et le plomb à Lusignan	41
Figure 28 : Histogrammes des variations de stock du cadmium, du cuivre et du plomb pour le blé dur en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille est récupérée).....	42
Figure 29 : Histogramme des variations de stock du cadmium pour le blé tendre en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille est récupérée).....	42
Figure 30 : Histogramme des variations de stock du cadmium pour le tournesol en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille est récupérée).....	42

Figure 31 : Histogrammes des variations de stock du cadmium, du cuivre et du plomb pour le blé dur en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille n'est pas récupérée)	43
Figure 32 : Histogramme des variations de stock du cadmium pour le blé tendre en fonction des intrants utilisés (dans le cas où la paille n'est pas récupérée)	43

Tableaux :

Tableau 1 : Teneurs moyennes en ETM des intrants (valeurs de la bibliographie, MS : Matière Sèche).....	17
Tableau 2 : Données du RMQS à l'échelle nationale.....	18
Tableau 3 : Données du réseau QUASAPROVE à l'échelle nationale.....	18
Tableau 4 : Teneurs en ETM dans les roches (d'après Kabata-Pendias, 2000), en rouge : les teneurs élevées, en bleu : les teneurs faibles.....	20
Tableau 5 : Classement des lieux de prélèvement selon leur substrat géologique	21
Tableau 6 : Teneurs en ETM dans les différents substrats géologiques rencontrés (46 parcelles étudiées).....	22
Tableau 7 : Dépôts atmosphériques moyens en France.....	26
Tableau 8 : Flux annuels de métaux dus à l'apport d'amendement organique à respecter d'après la réglementation en vigueur (Extrait des normes et de l'Arrêté du 08/01/98).....	28
Tableau 9 : Bilan des ETM apportés par les amendements organiques sur quatre parcelles en agriculture biologique	29
Tableau 10 : Teneurs totales en ETM dans les trois parties de la plante.....	33
Tableau 11 : Teneurs moyennes dans la plante pour les parcelles en précédent blé tendre en 2012.....	35
Tableau 12 : Teneurs dans la plante pour les parcelles en précédent maïs grain en 2013	35
Tableau 13 : Teneurs dans la plante pour les parcelles en précédent tournesol en 2012.....	35
Tableau 14 : Bilan des flux d'exportation	36
Tableau 15 : Bilan des flux globaux donné sous forme d'intervalles	36

RESUME

Les « éléments traces minéraux » (ETM) sont des éléments présents à faible dose et qui peuvent être toxiques. Ils présentent des flux plus ou moins importants et peuvent être stockés au sein des sols agricoles. La problématique de la contamination des sols peut entraîner une contamination de l'alimentation. Pour certains éléments (plomb, cadmium, arsenic inorganique), des études ont montré que les seuils toxicologiques ont été atteints. Le suivi du réseau de parcelles, appelé QUASAPROVE, a permis de mesurer la contamination diffuse des sols agricoles et des productions végétales de grande culture. Pour les sols, certaines contaminations sont dues au substrat géologique, c'est le cas des roches calcaires qui ont tendance à accumuler le cadmium. D'autres sont dues à l'histoire agricole : en effet, les parcelles à antécédent viticole montrent des teneurs élevées en cuivre du fait de l'utilisation de bouillie bordelaise. Enfin, d'autres contaminations sont la conséquence de certaines hétérogénéités locales. De plus, la pollution diffuse liée aux retombées atmosphériques et aux intrants agricoles peut expliquer la présence d'ETM dans les sols. Les dépôts de plomb sont toujours particulièrement élevés malgré l'interdiction en 2000 du plomb dans l'essence. Concernant les intrants, les amendements organiques apportent de grandes quantités d'ETM sur les sols agricoles. Finalement, même si les bilans d'entrées d'ETM sont plus élevés que les bilans de sorties, à moyen terme, le stock d'éléments dans le sol est stable.

Mots-clés: éléments traces, flux, stocks, retombées atmosphériques, intrants agricoles, plomb, cadmium, amendements organiques

Potentially toxic trace metals can be found at low dose in the environment. Their fluxes can quantitatively fluctuate, and the elements can be stocked in agricultural soils. The soil contamination may also affect food safety. Some studies showed that inorganic contaminants (lead, cadmium, inorganic arsenic) are exceeding toxicological thresholds. The creation of an agricultural plots network, called QUASAPROVE, allowed quantifying the diffuse contamination of soils and crops and the trace elements fluxes on the plots. Some contaminations are due to the geological substrate, it is the case for the limestone which tends to accumulate cadmium. Others are due to the agricultural history : indeed, the past use of soils as vineyards implies an increase of the concentration of copper in the soil because of Bordeaux mixture spreading. Finally, others are the results of some local heterogeneities. Moreover, the diffuse pollution of atmospheric deposits and agricultural inputs can be the cause of trace metals presence in soil. The lead deposits are particularly high despite the removal of lead in fuel in 2000. Regarding the inputs, the organic amendments bring a large quantity of trace elements in the agricultural soils. As a conclusion, despite the fact that for all trace elements, inputs are higher than outputs, the trace metals stock in the soil stays stable with time.

Keywords: trace metals, fluxes, stocks, atmospheric deposits, agricultural inputs, lead, cadmium, organic amendments