

Devenir des polluants métalliques dans les sols : révélateur d'impacts de l'activité humaine sur la pédogenèse?

F. van Oort₍₁₎, J. Labanowski_(1, 2), T. Jongmans₍₃₎ et M. Thiry₍₄₎

- (1) INRA, UR 251 - PESSAC, Physico-chimie et Ecotoxicologie des Sols d'Agrosystèmes Contaminés, RD 10, 78026 Versailles Cedex
- (2) UMR CNRS 6008, Université de Poitiers-ESIP, Laboratoire de Chimie et Microbiologie de l'Eau (ex LCEE), 40, avenue du recteur Pineau, 86022 Poitiers Cedex, France
- (3) WUR, Wageningen University, Landscape Centre, Land dynamics, PO Box 47, 6700 AA, Wageningen, the Netherlands
- (4) UMR 7619 Sisyphé, Mines Paris, Centre de Géosciences, 35, Rue St Honoré, 77305 Fontainebleau

RÉSUMÉ

Les activités anthropiques polluantes peuvent entraîner des changements dans les caractéristiques physico-chimiques des sols, et parfois même affecter l'évolution morphologique du solum. Cependant, des études visant l'observation d'impacts liés à l'introduction de polluants métalliques sur le fonctionnement des sols, sur sa structure et ses traits pédologiques sont peu nombreuses. Dans ce travail, nous avons examiné des organisations macro- et microscopiques et des distributions de métaux dans des sols, sélectionnés en fonction d'un gradient de pollution en combinant des observations de terrain, les microscopies et des analyses chimiques et spectroscopiques. Les sols étudiés sont localisés dans un site pollué s.l. comprenant un ancien complexe métallurgique et son périmètre de sols agricoles. La prise en compte de la continuité d'étude entre le site s.s. et les sols environnants avait été fortement encouragé en 1995 par Michel Robert, travaillant alors au Service de Recherche et Affaires Economiques de Ministère de l'Environnement. Les résultats de ce travail montrent que les impacts de l'activité métallurgique sur les sols sont visibles à toutes les échelles d'étude, avec selon le gradient de pollution, apparition de nouveaux horizons organiques ou minéraux à la surface des sols, stratifications horizontales des horizons de surface témoignant d'un dysfonctionnement faunique, colorations particulières en surface et en profondeur, et formations de nouveaux constituants. Les études du fonctionnement de ces sols, « perturbés » par une activité polluante durant seulement un demi-siècle, montrent la complexité des interactions entre biologie, géochimie et physique dans les sols qui sont trop souvent encore regardés comme des « objets » stables.

Mots clés

Observation, pollutions métalliques, microscopie, microfluorescence-X, pédogenèse

SUMMARY**FATE OF METAL POLLUTANTS IN SOILS : AN INDICATION FOR IMPACTS OF HUMAN ACTIVITIES ON PEDOGENESIS?**

Human contaminating activities may lead to marked changes in physico-chemical soil characteristics, and in some cases to a modified soil development. Yet, visual assessment of impacts resulting from the introduction of metal pollutants on soil behaviour, soil structure or soil features is poorly documented. In the present work, we examined soil macro- and micromorphology and characteristic related micro-scale distribution patterns on soil profiles selected according to a large gradient of metal pollution. For this we combined field survey, optical and electron microscopy and chemical and spectroscopic analyses. This aspect of continuity of metal pollution between the industrial site and the surrounding agricultural land was strongly supported by Michel Robert, at that time scientific adviser at the French Ministry of Environment.

Our results showed that impacts of metallurgical activities in soils are visible at different scales of observation with, depending on the degree of metal pollution, i) formation of new organic or mineral horizons at the soil's surface, ii) strong superficial layering in the topsoil pointing to a dysfunction of faunal activity, iii) specific mottling both at the soil's surface and in deeper soil horizons, or iv) formation of new metalliferous soil constituents. Such studies on soil behaviour « disturbance », due to contaminant human activity lasting for hardly 50 years, revealed the complex interaction of geochemistry, physics, and biology in soils that today still too often are looked at as stable « objects ».

Key-words

Observation, metal pollutions, microscopy, X-ray microfluorescence, soil development

RESUMEN**EVOLUCIÓN DE LOS CONTAMINANTES METÁLICOS EN LOS SUELOS : REVELADOR DE IMPACTOS DE LA ACTIVIDAD HUMANA SOBRE LA PEDOGÉNESIS**

Las actividades antrópicas contaminantes pueden implicar cambios en las características físico-químicas de los suelos, y a veces misma la evolución morfológica del solum. Sin embargo, son poco numerosos estudios que son dedicados a la observación de los impactos ligados a la introducción de contaminantes metálicos sobre el funcionamiento de los suelos, sobre su estructura y sus características pedológicas. En este trabajo, observamos organizaciones macro- y microscópicas y la distribución de los metales en los suelos, seleccionados en función de un gradiente de contaminación combinando observaciones de campo, microscopias y análisis químicos y espectroscópicos. Los suelos de estudio están localizados en un sitio contaminado s.l. que contiene un viejo complejo metalúrgico y su perímetro de suelos agrícolas. La toma en cuenta de la continuidad de estudio entre el sitio s.s. y los suelos circundantes fue fuertemente fomentada en 1995 por Michel Robert que trabajaba al Servicio de Investigación y de Asuntos Económicos del Ministerio del Medio Ambiente. Los resultados de este trabajo muestran que los impactos de la actividad metalúrgica sobre los suelos están visibles a toda las escalas de estudio, con, según el gradiente de contaminación, aparición de nuevos horizontes orgánicos o minerales en superficie de los suelos, estratificaciones horizontales de los horizontes de superficie que muestran un disfuncionamiento fáunico, coloraciones particulares en superficie y en profundidad, y formación de nuevos constituyentes. Los estudios del funcionamiento de los suelos, "perturbados" por una actividad contaminante durante solamente un medio siglo, muestran la complejidad de las interacciones entre biología, geoquímica y física en los suelos que están demasiado a menudo considerado como "objetos" estables.

Palabras clave

Observación, contaminaciones metálicas, microscopia, microfluorescencia X, pedogénesis.

CONTEXTE HISTORIQUE

En mai 1995, Michel Robert réunit à Versailles un groupe de réflexion pour élaborer un projet de recherches sur la pollution des sols par les activités industrielles, en réponse à l'appel à proposition « Friches Industrielles » du Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement (MATE). Cet appel d'offre visait l'étude de l'état, du devenir et des impacts de polluants métalliques liés à des friches et sites industriels. L'objectif était double : constituer des équipes de recherche ayant l'expertise dans ce domaine et mettre au point des méthodes d'évaluation des risques et des outils d'aide à la décision quant à l'utilisation future des sites. A l'initiative de Michel, le projet proposait d'étendre les investigations aux sols du périmètre agricole, au-delà du site industriel *stricto sensu*. Cette continuité dans la prise en compte de la « pollution localisée » et de la « pollution de proximité » (Robert, 1996) était une originalité, comparée aux nombreuses études de sites pollués.

De cette réunion a émergé le programme « Geotox-FrichIndus », animé par M. Thiry et F. van Oort de 1995 à 2000 (Thiry et van Oort, 1996 ; Cambier, 2001). Ce programme proposait de prendre en compte les différentes voies de dissémination des polluants, par les airs, par l'eau, par l'utilisation comme remblais, etc. Il mettait aussi en exergue la nature des sols, leur usage agricole et/ou le type de couverture végétale. Dès lors une hiérarchisation de l'espace était esquissée, allant de l'échelle régionale avec les aspects cartographiques de la distribution spatiale des pollutions, en passant par les échelles du parcellaire, des profils de sols et des horizons pédologiques, jusqu'à la distribution des polluants à l'échelle microscopique et dans les structures minérales. Une autre caractéristique de ce programme était son déroulement en phases d'études successives qui s'enchaînaient par rapport à la hiérarchisation spatiale. L'emboîtement des échelles permettait de replacer chaque échantillon dans son contexte et le nombre de sites et d'échantillons analysés d'en assurer la représentativité ... avant de descendre d'un facteur d'échelle dans l'analyse.

L'important investissement (en temps et en moyens) mis dans l'étape initiale de reconnaissance du terrain et de l'échantillonnage du site et des sols environnants a favorisé un travail concerté, le plus souvent sur des échantillons communs. Les stratégies d'échantillonnage et d'implantation d'ouvrages (sondages, piézomètres, fosses...) ont été raisonnées pour la mise en œuvre de méthodologies complémentaires (Thiry et van Oort, 1999a, b). C'est autour de cette reconnaissance approfondie du secteur et de l'échantillonnage serré que se sont tissés de nombreuses collaborations qui ont permis l'intégration des études minéralogiques, géochimiques et biologiques, comme les impacts des pollutions métalliques sur la faune des sols (Nahmani *et al.*, 2002, 2003a, b, 2008), le diagnostic de la contamination des végétaux récoltés *in situ* (Mench *et al.*, 2008), les interactions entre les matières organiques des sols (MOS) et les métaux (Balabane *et al.*, 1999 ; Balabane et van Oort, 2002 ; Boucher *et al.*, 2005a,b), le rôle des colloïdes dans le transfert des métaux dans les sols (Citeau *et*

al., 2001, 2003, 2008) et le développement de méthodes géophysiques non destructives pour la détection des zones polluées (Guérin *et al.*, 2002, 2004). Enfin, cette connaissance du terrain a récemment conduit au choix d'un échantillon de sol contaminé de Mortagne-du-Nord, comme sol de référence commun à plusieurs équipes CNRS, CEA et INRA (Programme National « ToxNuc-E », 2003-2006).

DÉMARCHE ET OBJECTIFS

En hommage au rôle fédérateur qu'a joué Michel Robert dans la formalisation de ce programme, nous développerons ici des travaux concernant les impacts de pollutions métalliques sur la pédogenèse, en termes de changements dans la nature et la morphologie des sols, et dans l'organisation ou la nature des constituants. En effet, on montre souvent comment les polluants sont altérés, dissous, migrent et/ou se fixent dans les sols ; le sol est considéré comme le support de toutes les transformations, c'est lui qui est l'élément actif et moteur, ... il ne subit pas. Les problèmes environnementaux sont rarement abordés par « l'autre bout de la lorgnette » : envisager comment les éléments polluants agissent sur le sol et la pédogenèse, comment leur introduction dans le sol modifie son fonctionnement et change même profondément sa structure et ses traits pédologiques. Dans cette note, c'est donc l'observation du sol qui prime, complétée par des analyses chimiques et spectroscopiques. La bibliographie réunit un grand nombre de références issues du programme 'Geotox-FrichIndus'.

Michel Robert avait à cœur l'approche du naturaliste et abordait les problématiques environnementales par « l'observation du paysage ». Cette approche a également orienté l'ensemble des études menées entre 1996 et 2007, en marge du programme initial. Deux ans après le décès de Michel Robert disparaissait un autre homme de terrain : Jean Pierre Deffontaines. Pour ce dernier le mot paysage était « ignoré, même maltraité depuis toujours » à l'INRA (Deffontaines, 2006). Mais, curieusement lors du 60^e anniversaire de l'INRA, la Présidente Directrice Générale Marion Guillou adressa à l'ensemble du personnel un fascicule intitulé « Petit guide de l'observation du Paysage » (Deffontaines *et al.*, 2006) et exprima ses encouragements à emprunter une démarche « voir, regarder et vouloir comprendre ». Cette diachronie, est-elle le fruit du hasard ou une prise de conscience du manque de regard naturaliste à l'époque où les orientations de recherche et les incitations financières encouragent les formalismes mathématiques ?

Cette approche naturaliste trouve toute sa légitimité dans le contexte de sols et de sites pollués, puisque 'observer' attentivement les paysages est fondamental pour 'lire' les changements opérés dans l'utilisation des terrains, et imprimés dans les sols au cours du temps. 'Vouloir comprendre' commence par le découpage du terrain et la mise en œuvre de stratégies d'échantillonnage adaptées au type de pollution, de manière à poser des bases pour des démarches conceptuelles, mécanistiques et modélisatrices

Figure 1 - Vue aérienne oblique du site métallurgique de Mortagne-du-Nord (59), à la fin des années 1950. On y note 15 cheminées, mais seules les 3 cheminées au premier plan sont en activité. La cheminée la plus haute (flèche) est celle d'une unité de métallurgie du plomb qui a fonctionné pendant quelques années sur le site. Les bâtiments au fond sont ceux de l'usine d'acide sulfurique. A noter aussi l'importance du terril, situé de l'autre côté de la Scarpe.

Figure 1 - Aerial view of the activity of the metallurgical complex of Mortagne-du-Nord during the late 1950's. On this photograph, taken in a South-East direction, 15 chimneys are visible, but only the 3 in the foreground are working. The highest one (white arrow) is the chimney of the lead smelter, only in activity for about 10 years. In the background the small buildings of the sulphuric acid plant can be distinguished. On the opposite bank of the Scarpe Canal, left at the photograph, the size and height of the industrial waste dump are noteworthy.



pertinentes. En clin d'œil à Michel, nous passerons de l'observation du sol sur le terrain à des études à l'échelle des constituants du sol, une approche descendante qui lui était particulièrement chère.

LE SITE INDUSTRIEL ET LES POLLUTIONS

Le site retenu par le MATE pour cette étude est une friche industrielle de la métallurgie du zinc, situé à Mortagne-du-Nord (région Nord - Pas-de-Calais). Entre 1901 et 1963, ce complexe industriel a connu une activité très fluctuante, commandée par le cours mondial fluctuant du zinc, en cette période de tensions internationales (Hardy, 1970). Les minerais de zinc traités étaient en grande partie à base de sulfures (ZnS, blende et/ou sphalérite). Une usine de production d'acide sulfurique a été couplée avec la zinguerie à partir de 1926. Au cours des 60 ans d'activité, ce complexe industriel majeur a fourni une part importante de la production de zinc en France, atteignant 31 % de la production française en 1925.

D'importantes quantités de déchets ont été produites au cours de l'activité du site, notamment des scories, des minerais « stériles », des fragments de creusets de fonderie, des déchets charbonneux et des briques réfractaires. Les premiers déchets ont servi à remblayer le site, installé sur des alluvions inondables de la

plaine Scarpe-Escaut. L'usine s'est donc progressivement étendue sur ces remblais (Thiry *et al.*, 2002). Par la suite, ces déchets ont été entreposés sur un terril imposant, visible sur les photographies aériennes des années 1950 (*figure 1*). La zone périphérique du terril a donné naissance au site calaminaire (d'après le nom calamine : silicate de zinc $[Zn_4(Si_2O_7)(OH)_2]$) et est caractérisée par une végétation spécifique de plantes métalphytes¹. Enfin, d'importantes quantités de Zn, Pb, Cd, et dans une moindre mesure Cu et As, ont été disséminées par voie atmosphérique. Ces retombées de poussières ont affecté les zones urbanisées et rurales sur des distances de plusieurs kilomètres (van Oort *et al.*, 2001, 2002b, 2008 ; Fernandez-Cornudet, 2006). Par ailleurs, les matériaux du terril (granulat disponible, et qui plus est gratuit!, dans une région pauvre en roches dures) ont été longtemps utilisés pour des besoins domestiques variés : entretien des voiries vicinales, remblais de routes, accès aux parcelles agricoles, assainissement des cours des fermes, etc. Cet emploi de déchets industriels a généré l'apparition de nombreuses petites surfaces, bien délimitées, présentant de fortes pollutions ponctuelles.

1 : Métallophytes : espèces accumulatrices d'éléments métalliques

MÉTHODES

Les méthodes d'analyse utilisées ont été décrites plus en détail dans les diverses publications. On souligne ici la spécificité de la méthodologie générale qui a été appliquée. Les sols étudiés ont été sélectionnés en fonction d'une reconnaissance pédo-géochimique préliminaire. Les horizons et traits pédologiques ont été décrits et échantillonnés à partir de fosses pédologiques. La distribution des métaux dans les horizons des sols a été analysée par spectroscopie d'adsorption atomique après mise en solution par HF-HClO₄-HNO₃ (AFNOR, 1996). Au sein des horizons, la distribution des métaux a été précisée en utilisant des fractionnements granulodensimétriques dans l'eau (Balesdent *et al.*, 1991 ; Ducaroir et Lamy, 1995 ; Lamy *et al.*, 2002). Pour le sol agricole contaminé par les retombées atmosphériques de poussières industrielles, les proportions de métaux extractibles par l'EDTA ont été déterminées (Labanowski *et al.*, 2007).

De nombreuses lames minces ont été réalisées à partir d'échantillons de sol non remanié. Les constituants des sols et leurs organisations ont été précisés par microscopie optique, microscopie électronique à balayage et microsonde électronique. Des distributions microscopiques de métaux ont été cartographiées par la micro-fluorescence-X sous rayonnement synchrotron (μ -SXRF) sur des surfaces submillimétriques, sélectionnées sur des lames minces (Leguédois *et al.*, 2004 ; van Oort *et al.*, 2006, 2007). L'étude des matériaux (remblais du site et sols du périmètre agricole) a été couplée quasi systématiquement à l'étude des eaux de percolation (fosses lysimétriques) et des eaux de la nappe (piézomètres) (Schmitt *et al.*, 2002 ; Thiry *et al.*, 2002 ; Citeau *et al.*, 2003, 2008).

RÉSULTATS

Les pollutions localisées

La friche industrielle

Pollutions

Les remblais du site représentent aujourd'hui un ensemble très hétérogène d'éléments minéraux (*figure 2*), grossiers ou fins, plus ou moins riches en métaux : 2 à près de 10 % de Zn, 0,4 à 3,5 % de Pb (Thiry *et al.*, 2002). La distribution des métaux est étroitement liée à la nature et à l'histoire des remblais dans lesquels se succèdent des matériaux « actifs » riches en sulfures à fortes teneurs en métaux et des matériaux plus « inertes » issus du démantèlement d'anciennes installations. L'altération des sulfures est gouvernée par l'hydrologie du site et a été fortement « ré-activée » à plusieurs reprises au cours des dernières décennies par des réaménagements successifs du Canal de la Scarpe (Schmitt *et al.*, 2002). L'altération des sulfures est à

l'origine de flux importants de métaux vers les drains fluviaux bordiers, qui se chiffrent, d'après Thiry *et al.* (2002), en dizaines de tonnes.an⁻¹ !

Morphologie des sols

Les sols de la friche industrielle correspondent donc à des ANTHROPOSOLS ARTIFICIELS selon le Référentiel Pédologique (AFES, 1995). Les anciens sols développés dans les alluvions sont enterrés, avec préservation des rhizomes et tiges de roseaux sous une épaisseur de 0,5 à 3,5m de remblais industriels. Outre la reconnaissance et la compréhension générale du fonctionnement géochimique et hydrodynamique du site, l'intérêt de l'étude de ces remblais hétérogènes réside dans la reconnaissance et la caractérisation des matériaux pollués qui ont été produits sur le site et qui constituent la source des pollutions disséminées sur « des kilomètres à la ronde ».

Etude microscopique

La distribution hétérogène des métaux dans les remblais s'accompagne d'une grande variété de phases minérales porteuses. Plus de 30 minéraux porteurs de Zn, Pb, Cu, ou Cd ont été inventoriés : sulfures, sulfates, carbonates, oxydes et silicates (*figure 3*). Leur distribution est également très hétérogène au sein des remblais, mais présente néanmoins des gradients entre sulfures, oxydes et carbonates. Ces gradients sont directement tributaires de l'histoire du site, selon que les remblais ont été : soit dénoyés dès leur mise en place, soit au contraire baignés par la nappe, puis dénoyés par les réaménagements récents, ou bien que leur mise en place s'est accompagnée, ou non, de chaulage.

Les terrains jouxtant l'ancien terril : la pelouse métallicole

Pollutions

A proximité de l'ancien terril de déchets industriels, les terrains sont fortement pollués, suite au ruissellement des eaux de pluie et aux poussières entraînées par le vent. Un écosystème original s'est individualisé au sein du site calaminaire depuis cinquante ans : la pelouse métallicole qui s'étend sur environ 5 ha. Au moment du démarrage de l'activité industrielle et jusqu'au milieu des années 1950, une peupleraie couvrait le terrain, comme en témoignent les photographies aériennes successives. La régénération d'une nouvelle peupleraie dans la partie proche du terril a échoué, et dès lors, l'espace fut colonisé par des espèces métallophytes. Ce terrain constitue aujourd'hui une zone d'expérimentation privilégiée pour étudier l'impact de fortes pollutions métalliques sur l'évolution du solum (van Oort *et al.*, 2002a), mais aussi l'installation et le développement d'espèces métallophytes (*Armeria maritima* ssp *halleri*, *Arabidopsis halleri* (Van Haluwyn *et al.*, 1987 ; Dahmani-Muller, 2000) dans une optique de phytoremédiation (Dahmani-Muller *et al.*, 2000, 2001, 2002 ; Schwartz *et al.*, 2001).

Morphologie des sols

Marcher sur le sol de la pelouse métallicole procure une étrange sensation, du fait de la présence d'une épaisse couche de litière (figure 4c). Cette présence interpelle, car les sols ne manifestent pas de signes évidents d'hydromorphie dans les premiers 80 cm. Sous la litière (composée de feuilles et de tiges d'espèces métallophytes) apparaît une couche très sombre (couleur 10YR 1,7/1) majoritairement constituée de fins fragments noirs de végétaux, peu mélangés aux constituants minéraux. Il s'agit d'un horizon pédologique de type Ah de juxtaposition, très riche en métaux (figure 4c). L'horizon sous-jacent, l'ancien horizon de labour, est gris clair (10YR 7/1), avec une structure continue, peu poreux, ayant une masse volumique élevée pour un horizon de surface (1,5 à 1,6 Mg m⁻³). On y observe de nombreuses taches rouge-rouille, qui contrastent avec la couleur grise de la matrice (figure 4c). L'ensemble des horizons O, A et L se distingue par des transitions abruptes qui confèrent un aspect de stratification horizontale très marquée des horizons dans les premiers 40 cm du sol. Plus en profondeur, dans les horizons (II)A/S et S, la structure du sol retrouve un aspect fréquent dans les sols agricoles : une porosité biologique délimitant des agrégats, témoignant de l'activité faunique ancienne.

Etude microscopique

L'horizon hologanique Oi est composé de débris végétaux dont les structures cellulaires sont le plus souvent encore bien reconnaissables (figure 5a). On y note une présence fréquente d'hyphes de champignons. L'aspect anguleux des débris et l'absence de boulettes fécales indiquent une faible activité de la faune. En s'approchant de l'horizon Ah, la taille moyenne des débris organiques diminue, leur couleur devient noire (figure 5b), mais ils restent anguleux et des boulettes fécales sont toujours absentes. Dans l'horizon Ah, les petits fragments organiques très noirs sont faiblement incorporés à la fraction minérale (figure 5c). L'ancien horizon de labour (II)A/L montre une microstructure où le plasma est essentiellement présent sur la surface des grains de squelette, avec peu de débris organiques. A faible grossissement, on y observe des segments d'arcs sombres, qui marquent la périphérie d'anciens agrégats individualisés, aujourd'hui soudés (figure 5d). Par ailleurs, l'horizon (II)A/L contient de nombreux éléments grossiers, charbons ou fragments de scories industrielles. Une cartographie par μ -SXRF du contact entre une telle particule de scorie et la matrice du sol (figures 5e, f) montre une accumulation conjointe de Fe, Zn, et Pb (figure 5g) à la périphérie de la scorie et une distribution diffuse dans la matrice du sol, surtout pour Zn. Ceci illustre très clairement l'altération de la scorie et le flux d'entrée de métaux dans le sol. Au cœur de la scorie, la présence de Ca témoigne du chaulage pratiqué lors de l'activité de l'usine.

Impacts de la pollution sur la pédogenèse

En l'absence de pollution et sous végétation herbacée pendant un siècle, la morphologie du sol aurait dû s'apparenter à celle que

Figure 2 - Remblais sur le site l'ancienne usine d'acide sulfurique. (a)-La prospection du site s'est faite par creusement de fosses et tranchées à la pelle mécanique. (b)-Remblais de scories concassées et de débris de creuses de fonderie. L'horizon clair supérieur est une couche de limon rapportée sur le site au moment de la réhabilitation paysagère en 1989. (c)-Scories en voie d'altération par oxydation. La partie supérieure sombre est déjà oxydée et appauvrie en éléments métalliques, la partie inférieure contient encore des sulfures, des oxydes de fer précipitent dans la zone intermédiaire qui correspond au niveau de battement de la nappe.

Figure 2 - Industrial waste backfills at the ground of the former sulphuric acid plant. (a)-Preliminary geochemical survey was performed in drill-holes, deep pits and trenches using a mechanical excavator. (b)-Backfills composed of crushed slags and fragments of zinc smelter crucible. The bright upper horizon is composed of clay-silt material, added at the surface in 1989 for remediation purposes. (c)-Oxidation weathering of slags : the dull-coloured upper part is already altered and contains only little concentrations of metals. The lower part still includes metal-rich sulphide phases, and iron-oxides precipitate at the intermediate zone of fluctuations of the water table.

l'on peut observer aujourd'hui dans un sol sous prairie permanente dans la région (figure 4a, d'après Fernandez *et al.*, 2007) : l'activité lombricienne caractéristique des systèmes de prairie favorise l'incorporation en profondeur des MOS et entraîne une transition progressive entre horizons A et C et la création de microstructures marquées par la vie biologique (agrégats stables, individualisés et arrondis). Cependant, l'aspect du solum sous pelouse métallicole est très différent (figures 4b, c). Une reconstitution synthétique de l'évolution du solum de la pelouse métallicole a été proposée qui intègre des résultats de travaux de biogéochimie, biologie et micromorphologie (van Oort *et al.*, 2002a). Elle suppose une gestion agronomique du sol courante dans la région au début du 20^e siècle : le pâturage alterné avec la culture céréalière. La présence d'une limite abrupte visible aujourd'hui à environ 20 cm de profondeur et interprétée comme une ancienne limite de labour, vient étayer cette hypothèse.

L'accumulation de débris végétaux à la surface du sol est due en partie à un ralentissement de leur décomposition par les micro-organismes (Balabane *et al.*, 1999). Mais, l'absence de boulettes fécales indique également des changements profonds dans la communauté des décomposeurs des MOS, en particulier la dispa-

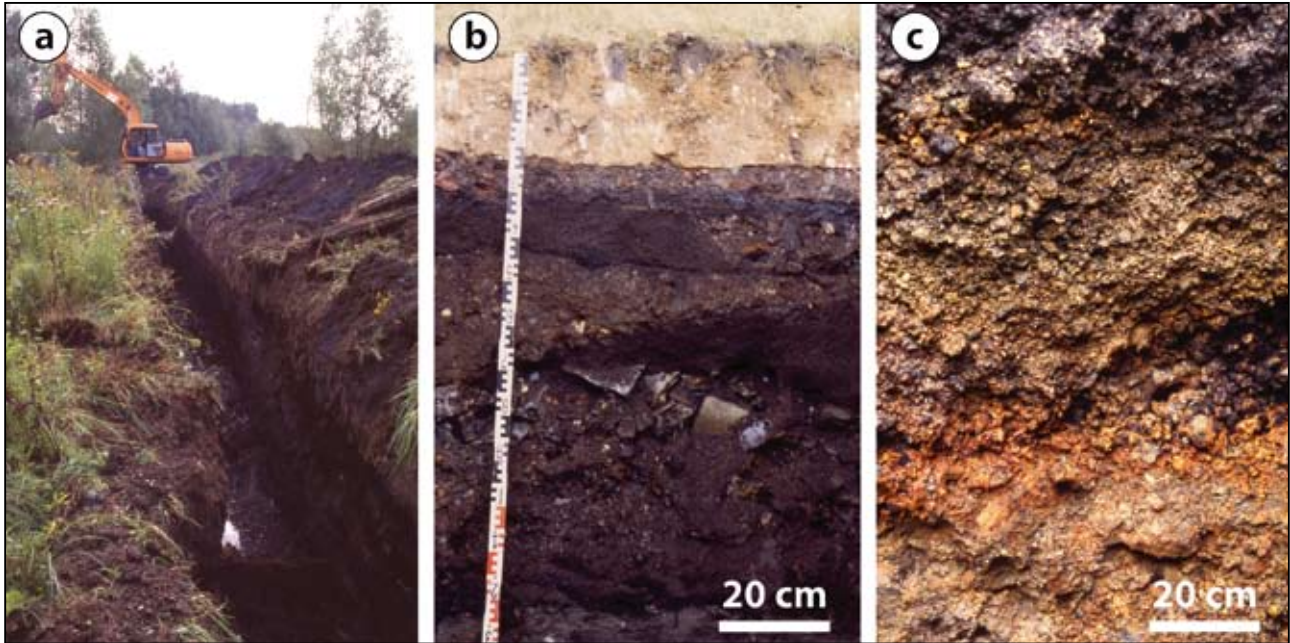


Figure 3 - Aspect des minéraux secondaires qui précipitent lors de l'altération des sulfures. (a)-Les verres des scories (éléments sombres) sont entourés d'un liseré gris (verdâtre) constitué de willémitte (silicate de zinc). lame mince observée au microscope polarisant. (b)-Serpieriite (sulfate mixte de Cu et Ca) en grandes baguettes en gerbe, associée à de la zincite (oxyde de zinc) (en bas à droite) et sur fond de verre siliceux (en haut). Microscope électronique à balayage. (c)-De nombreuses scories sont recouvertes par des précipitations et concrétions aux compositions chimiques diverses. Microscope Électronique à Balayage, analyse EDS.

Figure 3 - Microscopical aspects of secondary metalliferous mineral precipitations resulting from the weathering of sulphide phases. (a)-The dark coloured glass compounds occurring in slag frequently display grey-greenish edges composed of Willemite (zinc-silicates) ; optical microscopy on thin sections ; Crossed Polarised Light. (b)-Electron microscopy image of Serpieriite (mixed Ca and Cu sulphate) forming a shower of lat-shaped minerals, in association with Zincite (zinc-oxide, down-right), occurring on silica-rich amorphous glass (upper part of the photo). (c)-Numerous slag fragments are covered by precipitates and concretions with widely varying chemical compositions ; Scanning Electron Microscopy, with Energy Dispersive Spectroscopic Analysis.

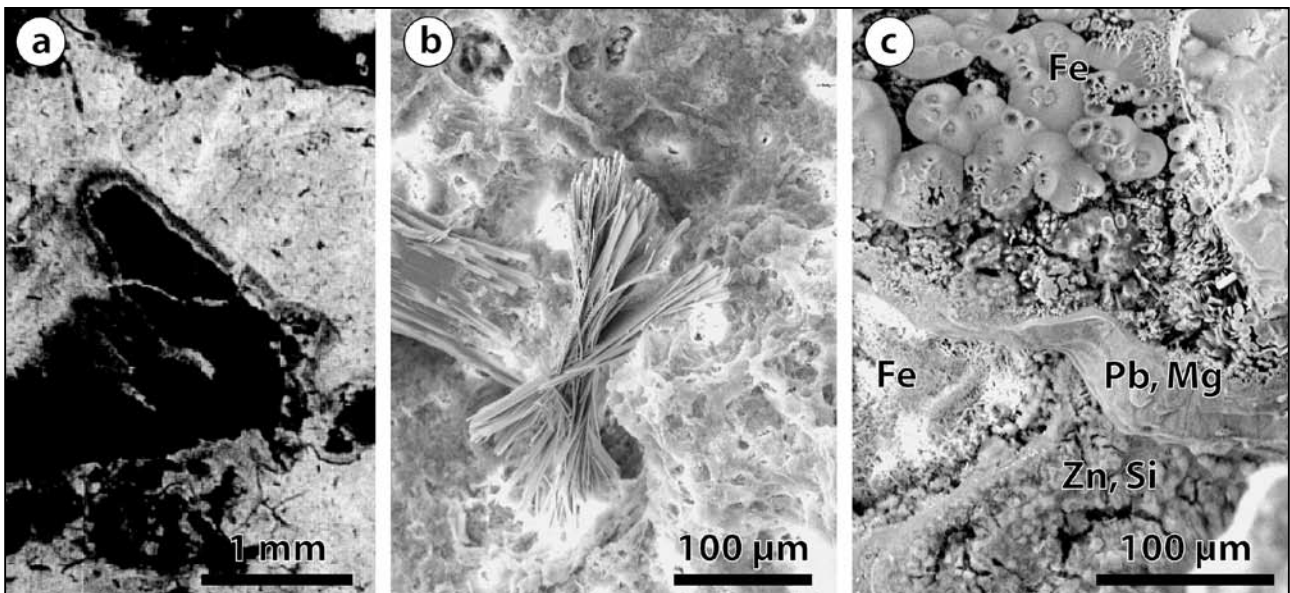


Figure 4 - Pédogenèse sous pelouse métallicole. (a)- Présentation schématique d'un solum sous prairie permanente (d'après Fernandez *et al.*, 2007, modifié). (b)- Horizons caractéristiques du sol sous pelouse métallicole. (c)- Morphologie des horizons de surface et teneurs totales en Zn (mg kg^{-1}).

Figure 4 - Soil development at the metalliferous grassland site. (a)- Schematic presentation of a soil under one century of permanent grassland. (b)- Characteristic horizons of the metal polluted soil under metallophyte vegetation. (c)- Photo of surface soil morphology and total Zn contents (mg kg^{-1}).

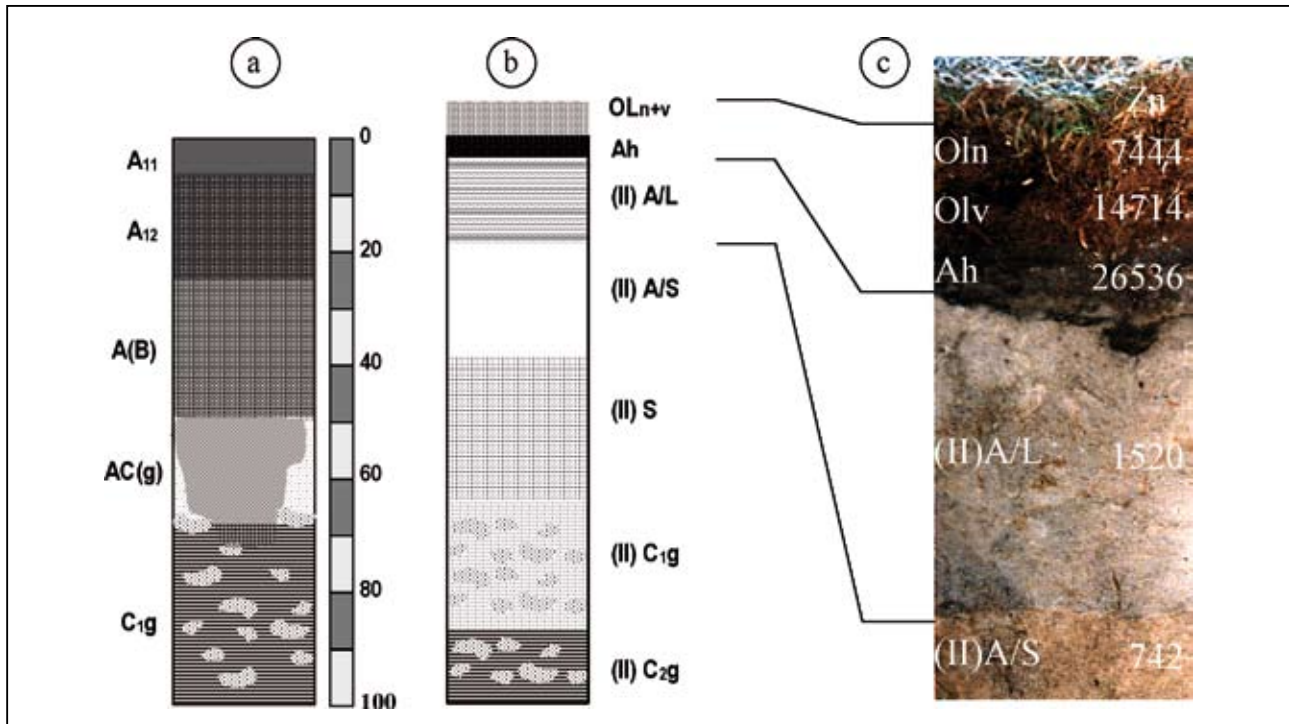


Figure 5 - Micromorphologie des horizons de surface du sol de la pelouse métallicole et μ -SXRf cartographie de distributions de Zn et Pb dans un fragment de déchet dans l'horizon IIA/L. (a)- Débris végétaux grossiers dans l'horizon Oln, les structures cellulaires sont encore reconnaissables et l'activité fongique (flèche) est visible (DLP). (b)- Réduction générale de la taille des fragments de MOP et leur noircissement dans l'horizon Olv (DLP). (c)- Peu de mélange de fragments organiques noirs et des particules minérales dans l'horizon Ah (DLP). (d)- Morphologie en segments d'arc dans l'horizon IIA/L, marquant la périphérie d'anciens agrégats, aujourd'hui soudés pour former une structure dense et continue (PPL). (e, f)- Vue en détail du contact d'une particule de scorie industrielle avec la matrice du sol (e : LN, f : LP). (g)- Cartographie de Fe, Ca, Zn, et Pb (Surface analysée (S) : $300 \times 875 \mu\text{m}^2$, temps d'acquisition (t) = 450 s / pas de $25 \mu\text{m}^2$).

Figure 5 - Micromorphology in surface horizons of the soil under metallophyte grassland and μ -SXRf elemental mapping of Zn and Pb in a metallurgical waste fragment occurring in the IIA/L horizon. (a)- Coarse sized organic fragments in the Oln horizons, showing recognisable cell structures and fungi activity (arrow) (PPL). (b)- General decreased sizes of POM fragments becoming black and opaque in the Olv horizon (PPL). (c)- Limited incorporation of small black organic fragments and mineral particles in the Ah horizon (PPL). (d)- Morphology of bow-like streaks in the IIA/L horizon, illustrating the darker periphery of former aggregates, today merged together forming a dense and continuous structure (PPL). (e, f)- Detail view of the contact between a industrial slag particle and the groundmass (e : PPL, f : XPL). (g)-Elemental mapping of Fe, Ca, Zn, et Pb of the rectangle in figures 5e, f ; (Analysed surface (S) : $300 \times 875 \mu\text{m}^2$ dwell-time (t) = 450 s/25 μm^2 step).

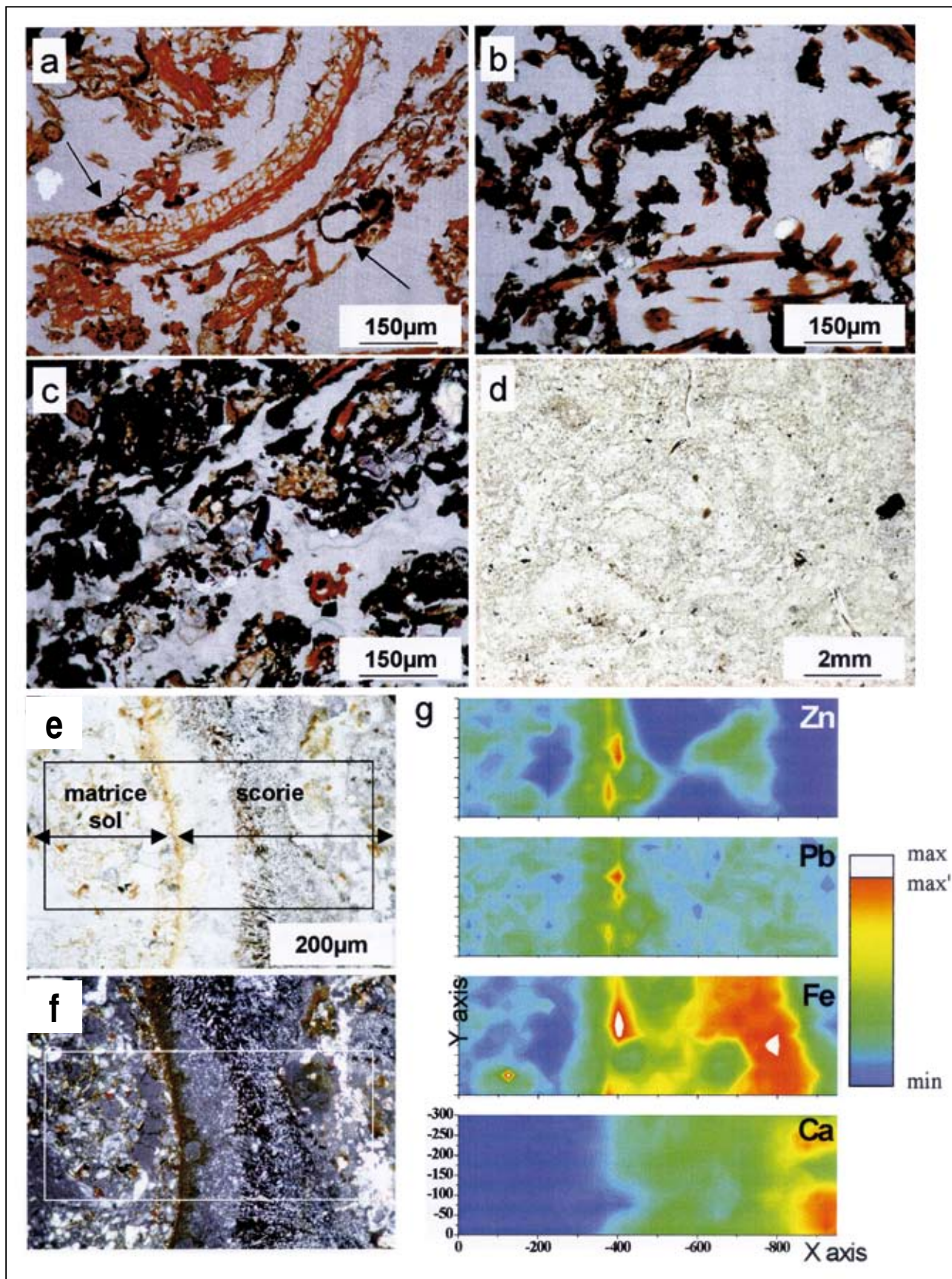


Figure 6 - Sols agricoles sous pollution ponctuelle. (a)- Présentation schématique d'un solum sous culture faiblement contaminé (d'après Fernandez et al., 2007, modifié). (b)- Horizons caractéristiques du sol à pollution ponctuelle (d'après Leguédois et al., 2004, modifié). (c)- Morphologie des horizons de surface et teneurs totales en Zn (mg kg⁻¹).

Figure 6 - Agricultural soils affected by point source pollution. (a)- Schematic presentation of a low-contaminated soil under arable land. (b)- Characteristic horizons of the point-source polluted agricultural solum. (c)- Photo of surface soil morphology and total Zn contents (mg kg⁻¹).

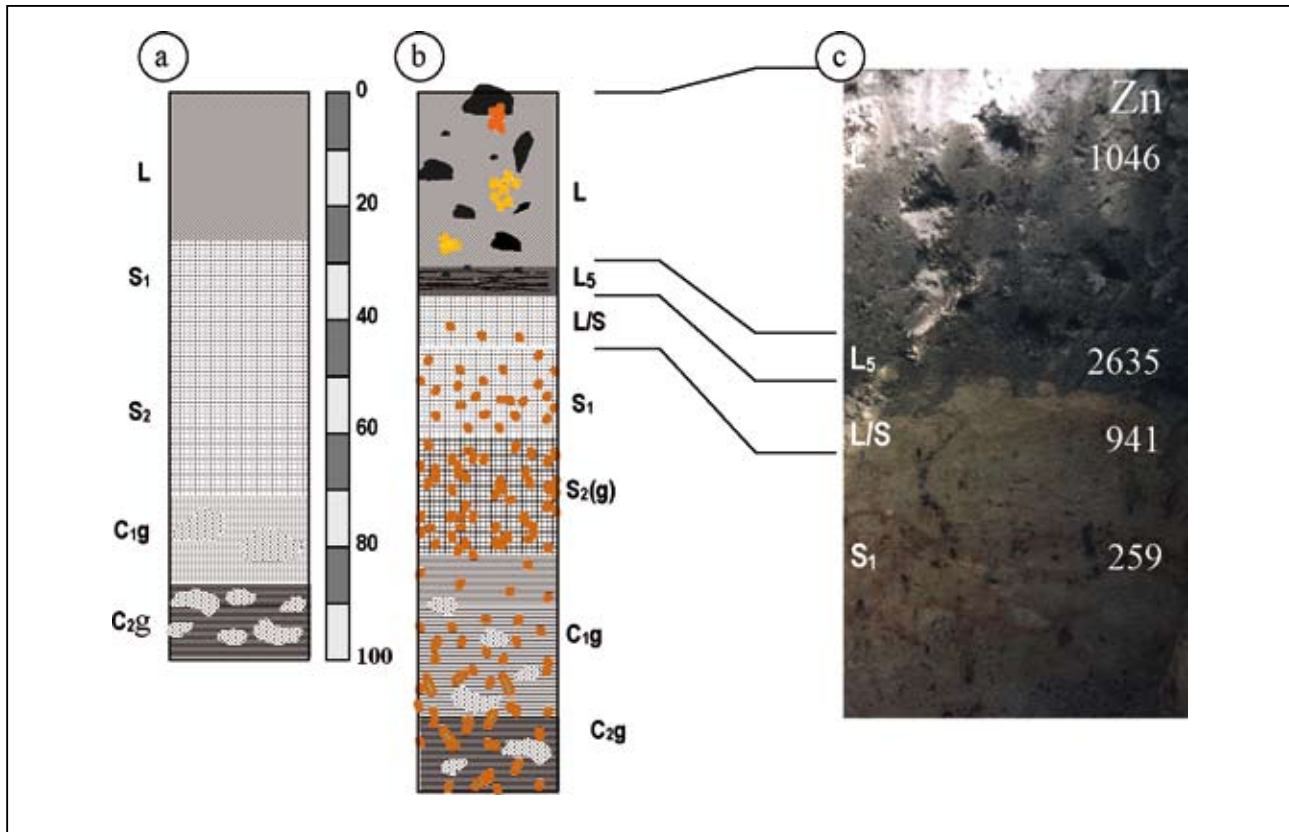


Figure 7 - Micromorphologie et cartographies en μ -SXRF sur lames minces de distributions privilégiées de Zn et Pb dans des traits pédologiques observés à différentes profondeurs d'un sol agricole sous pollution ponctuelle. (a)-Présence de grappes de sphérolites jaunes dans la porosité granulaire des grains de quartz de l'horizon IIA/L (Lumière Polarisée) ; le cadre indique la zone examinée en μ -SXRF. (b)-Cartographie élémentaire de Fe, Zn, et Pb (S : 200 X 250 μ m², t = 600 s/ pas de 25 μ m²). (c)-Sphérolites rouges dans les vides intergranulaires dans l'horizon S (lumière polarisée). (d)-Cartographies de Fe, Zn, et Pb (S : 300 X 250 μ m², t = 600 s). (e)-Juxtaposition d'un neoferran (nf) sur un revêtement d'argile (arg) dans l'horizon C (lumière demi-polarisée). (f)- Cartographie de Fe, Zn, et Pb (S : 250 X 250 μ m², t = 450 s) ; Q : quartz, F : feldspath (d'après Leguédois et al., 2004 ; van Oort et al., 2006, modifié).

Figure 7 - Micromorphology and elemental mapping by μ -SXRF in thin sections of characteristic distributions of Zn and Pb in pedological features in different soil horizons in a strongly metal polluted agricultural soil. (a)-Occurrence in the groundmass of clusters of small yellow-orange spherulites (IIA/L horizon) ; optical microscopy, Plain Polarized Light. (b)-elemental distribution of Fe, Zn, and Pb of clusters of yellow spherulites (S 200 X 250 μ m², t = 600 s / 25 μ m²-step). (c)-Red spherulites in intergranular voids in the B horizon (PPL). (d)-Elemental maps of Zn, Pb, and Fe (S : 300 X 250 μ m², t = 600 s). (e)-Juxtaposition of a neoferran (nf) and a clay-coating (arg) in the C horizon (0.5-XPL). (f)-Elemental maps of Zn, Pb, and Fe (S : 250 X 250 μ m², t = 450 s). Q : quartz, F : feldspar (modified after Leguédois et al., 2004 ; van Oort et al., 2006).

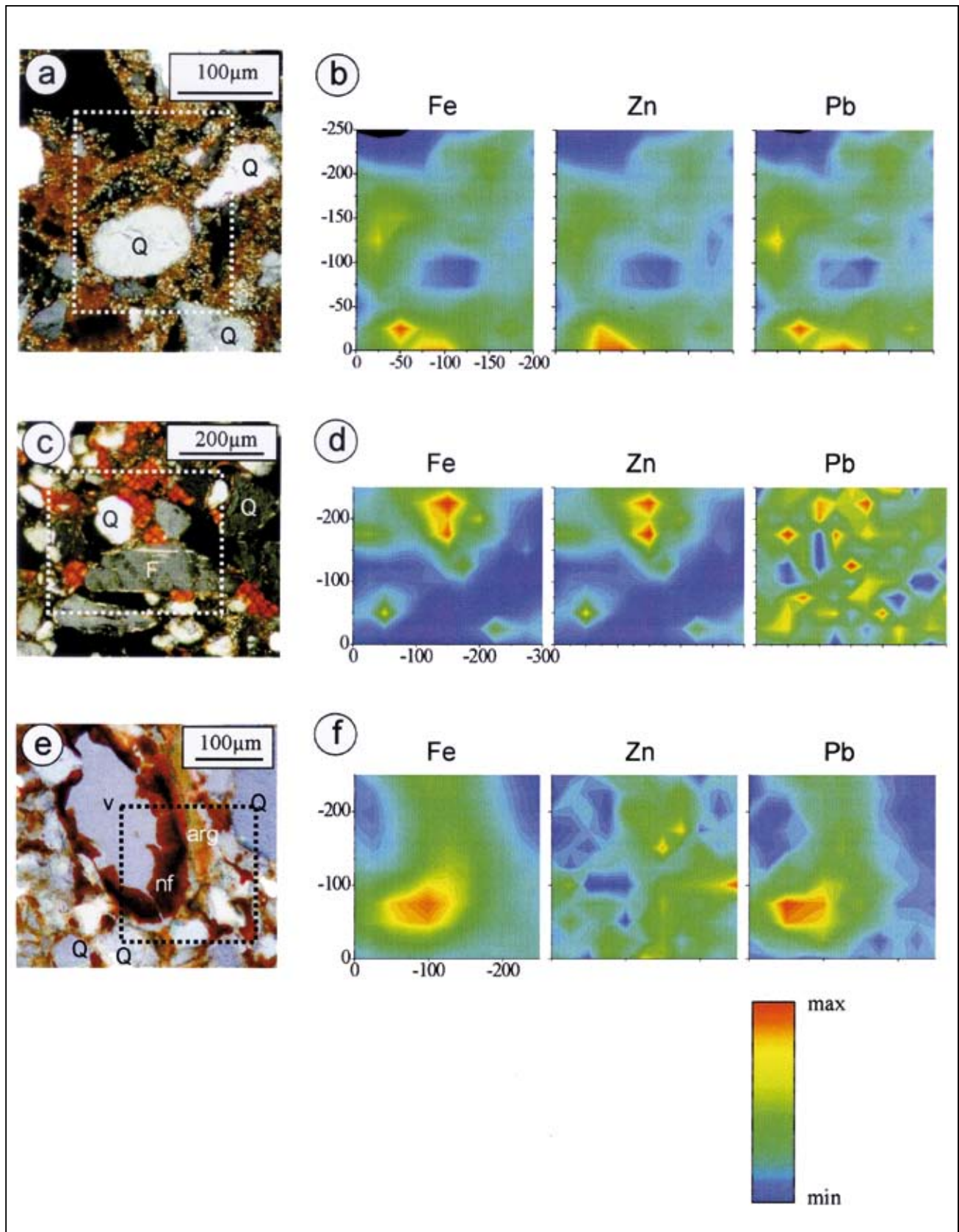
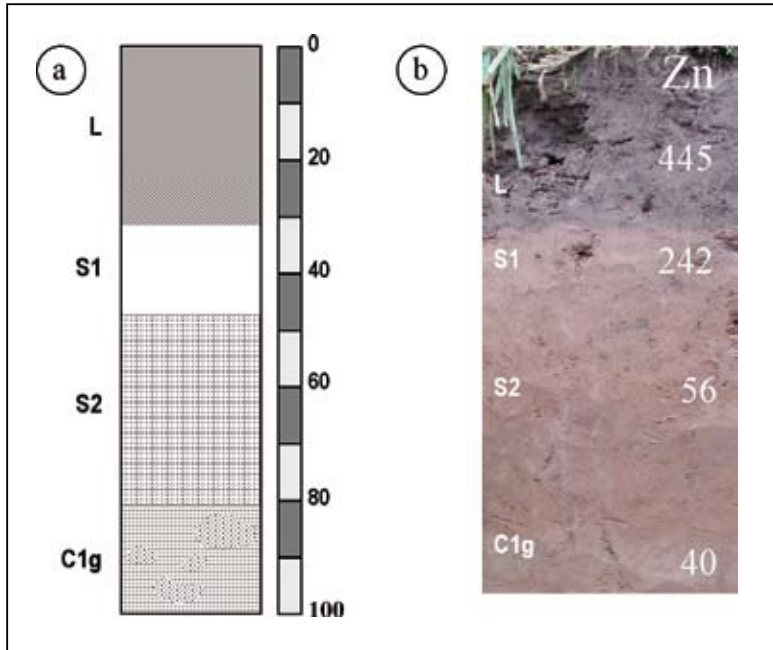


Figure 8 - Sol agricole contaminé par des retombées industrielles de proximité. (a)- Présentation schématique d'un solum sous culture. (b)- Morphologie du sol étudié et analyses des teneurs totales en Zn (mg kg^{-1}).

Figure 8 - Agricultural soils contaminated by industrial fallout deposition. (a)- Schematic presentation of soil development under arable land. (b)- Morphology of the study soil and total Zn contents (mg kg^{-1}).



rition quasi-totale des espèces « ingénieurs », (lombrics épigés et endogés), en faveur d'espèces de litière (Nahmani *et al.*, 2003a). Un premier impact visible de la pollution sur la pédogenèse consiste donc en la formation d'une litière. Les modifications dans la dynamique de minéralisation-humification des MOS et l'absence de leur incorporation en profondeur due à la disparition des vers de terre, représentent un deuxième impact de la pollution sur le sol. Les MOS sont des agents majeurs d'entretien de la structure du sol et de la stabilité des agrégats (Robert et Chenu, 1992). Si le flux d'entrée de carbone et le brassage par la faune diminuent, les agrégats se « soudent » entre eux, la porosité inter-agrégats disparaît et la structure devient continue. Seules persistent des zones périphériques plus sombres d'anciens agrégats, témoins de l'activité biologique passée. De tels scénarii ont également été décrits dans des cas de pollution par le cuivre, en verger (Jongmans *et al.*, 2003) et en vignoble (Besnard *et al.*, 2002). Enfin, un troisième niveau d'impact est relatif à la diminution de la stabilité des agrégats qui entraîne une dispersibilité accrue des argiles. Cette mobilité accrue des argiles a été confirmée par les études *in situ* de la composition de la solution du sol, montrant l'abondance des colloïdes minéraux de type phyllosilicate dans les eaux gravitaires des sols de la pelouse métallicole (Citeau *et al.*, 2003).

Sols d'agrosystèmes : pollution ponctuelle

Pollutions

Des ouvrages militaires, datant des guerres franco-allemandes, sont fréquemment inclus dans le parcellaire agricole. Les chemins d'accès à ces ouvrages ont été rem-

blayés avec les déchets industriels générés par l'usine métallurgique. Dans les parcelles cultivées, ces déchets ont été en grande partie retirés à la fin de la guerre, mais on observe aujourd'hui encore de nombreux fragments grossiers de tessons et de scories à la surface des sols (Leguédois *et al.*, 2004). De telles surfaces agricoles sont aisément reconnaissables dans le paysage par une croissance réduite, voire nulle, des cultures, liée à des effets phytotoxiques des métaux (Mench *et al.*, 2008). Sous prairie pâturée, une couche de plusieurs cm d'épaisseur de déchets industriels est quelquefois encore présente en surface (Nahmani *et al.*, 2008). La pollution conduit alors à un jaunissement de l'herbe ou à la présence de plantes métallophytes (*Arabidopsis halleri*). L'étendue de ces zones de fortes pollutions est souvent réduite à quelques centaines de mètres carrés seulement (van Oort *et al.*, 2008). Les teneurs en métaux se mesurent en milliers de mg kg^{-1} pour le Zn, en centaines pour le Pb et en dizaines pour le Cd. Sous culture, la transition entre pollution ponctuelle et pollution de proximité s'opère souvent en moins de 10 m.

Morphologie des sols

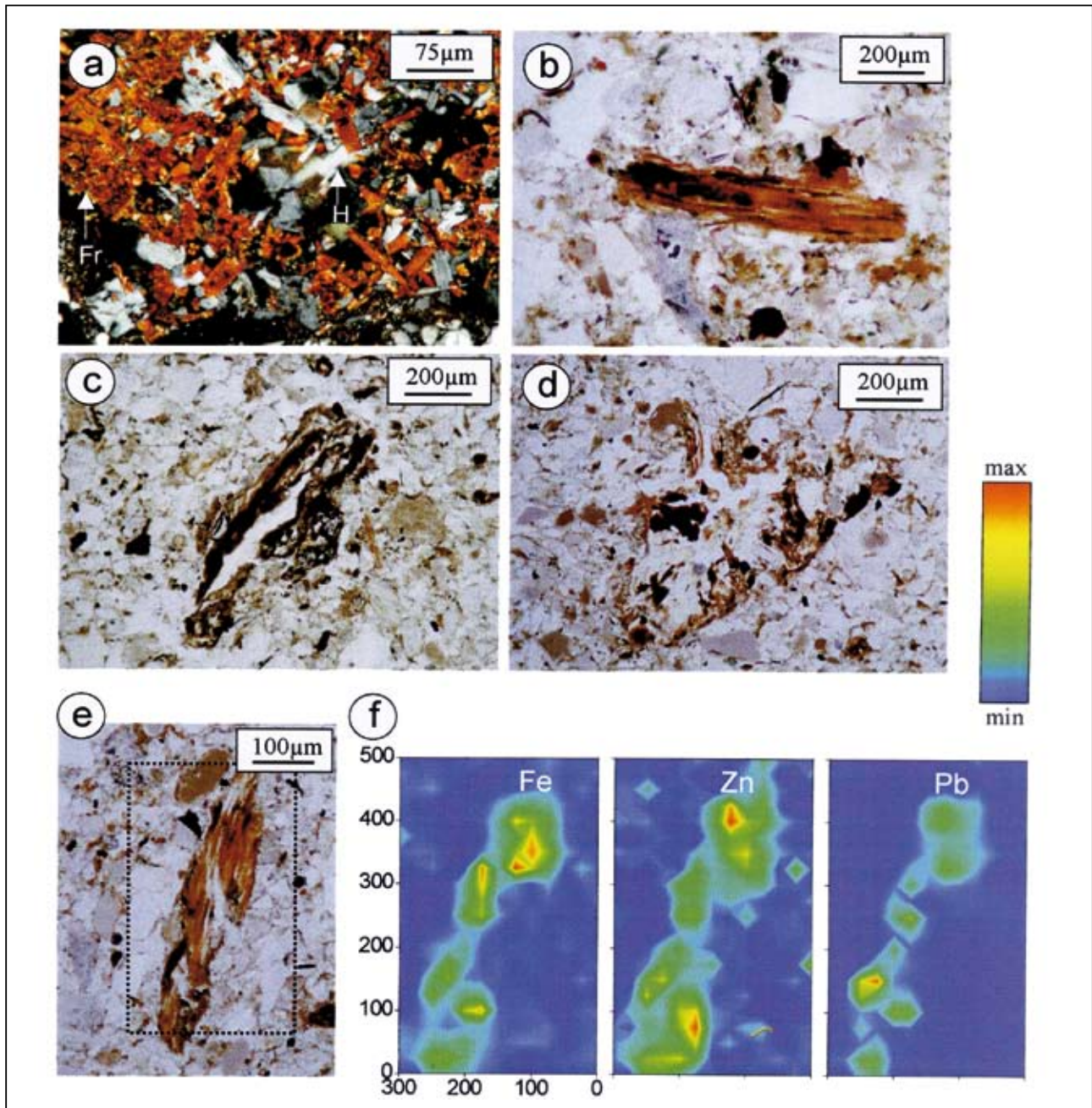
L'examen du solum révèle rapidement des dissemblances par rapport à la morphologie habituelle des sols contaminés par retombées atmosphériques (figure 6a). Les changements les plus nets concernent la surface : fragments grossiers de déchets industriels, absence d'activité de la mésafaune, masse volumique élevée et présence d'un horizon L5 à structure lamellaire indiquant que le sol a subi de forts tassements. Dans les horizons S et C, de nombreuses taches de rouille s'observent, variant en nombre et en intensité selon la profondeur. Ces taches orange-rougeâtre peuvent être attribuées, *a priori*, à des phénomènes d'hydromorphie, mais cette interprétation n'est pas en accord avec la situation topographique du sol.

Etude microscopique

L'étude de lames minces des horizons S révèle des traits pédologiques particuliers, en relation avec la pollution du sol. Dans l'horizon L, des formes sphérolaires, de couleur jaune-orange et de quelques microns de diamètre s'observent dans les fragments de déchets et dans la matrice du sol (figure 7a). Les cartographies en μ -SXRF (figure 7b) révèlent une composition chimique

Figure 9 - Micromorphologie et cartographies élémentaires par μ -SXRF sur lames minces de l'horizon de labour d'un sol agricole sous pollution de proximité. (a)- Présence d'un fragment grossier de déchet industriel, vue en détail de la bordure de la particule montrant des cristallisations de Zn (Franklinite (Fr), Hardystonite (H)). (b→d)-Séquence de décomposition des matières organiques particulaires (MOP), illustrant l'individualisation et l'accumulation progressive des parties noires (DLP). (e)-Fragment de MOP sélectionné pour analyse en μ -XRF. (f)- Cartographie élémentaire de Fe, Zn, et Pb (S : 300 x 500 μm^2 , t = 1000 s).

Figure 9 - Micromorphology and elemental mapping by μ -SXRF in thin sections of the plough horizon of an agricultural soil affected by industrial fallout deposition. (a)-Occurrence of coarse fragments of industrial waste, detailed view of the weathering rind of the particle showing different crystallisations of Zn : Franklinite (Fr) and Hardystonite (H). (b→d)-Morphological sequence of biodegradation of particulate organic matter (POM) fragments illustrating the individualisation and relative accumulation of black opaque parts (PPL). (e)-Selected POM fragment for μ -XRF mapping (rectangle). (f)- Elemental mapping of Fe, Zn, and Pb on a POM fragment (S : 300 x 500 μm^2 , dwell-time t = 1000 s).



dominée par Fe, (ainsi que Mn, Ca, et P, Leguédou et al., 2004) et des quantités très significatives de métaux (*figure 7b*). La quantification par microsonde-X montre 6 % de Zn, 0,65 % de Pb (et des traces de Cu). Jusqu'à environ 70 cm de profondeur, les taches rouges observées sur le terrain s'avèrent également correspondre à des phases sphérolaires de couleur rouge vif et d'environ 20 à 50 µm de diamètre (*figure 7c*). Elles présentent une croix d'extinction noire, caractéristique d'une constitution en cristallites anisotropes fibreux ou lamellaires (Morse et Donnay, 1932). Les cartes élémentaires montrent une distribution similaire pour Fe et Zn, mais il n'y a pas de Pb (*figure 7d*). La quantité de Zn est d'environ 1,5 % dans les sphérols rouges. Dans l'horizon C, entre 100 et 150 cm de profondeur existent de nombreux revêtements de fer (*figure 7e*), très purs d'un point de vue optique. Ces ferrans recouvrent des revêtements argileux dans les grands pores. La délimitation entre ces deux types de revêtements est nette et la superposition indique une chronologie de formation, récente pour les ferrans. La µ-SXRF montre qu'en plus de Fe, les ferrans renferment aussi du Pb, mais pas de Zn (*figure 7f*).

Impacts de la pollution sur la pédogenèse

Un processus original est à l'origine de la formation des sphérols métallifères (Lund et Fobian, 1991 ; Canti, 1997 ; Leguédou et al., 2004). L'altération des déchets dans l'horizon de surface libère de grandes quantités de Fe, Mn, et Ca, et de métaux Zn, Pb, Cu, Cd dans la solution du sol. En conditions de drainage bloqué par la présence de l'horizon L5 compacté, la solution du sol dans l'horizon de labour se charge périodiquement en éléments alcalins et alcalino-terreux favorisant, lors du dessèchement subséquent, la précipitation de phases minérales métallifères. Dans les conditions changeantes à la surface des sols, la croissance et la cristallinité des sphérols sont limitées. Elles apparaissent donc sous forme d'amas, directement au contact de fragments de déchets, plus rarement sous forme de grappes isolées dans la matrice du sol, suite aux labours répétés. Sous l'horizon de labour, l'horizon L5 fortement compacté et faiblement perméable, entraîne un écoulement lent des solutions chargées en éléments. C'est dans les horizons aérés sous-jacents (L/S, S₁) que se forment de nombreux sphérols rouges par précipitation à partir des solutions, préférentiellement sur les bords de grands pores, mais également dans la matrice proche.

La morphologie et la disposition des ferrans indiquent une migration récente du fer via la porosité de drainage et sa précipitation à l'intérieur des grands pores. Leur formation est attribuée au transport du Pb dans la solution du sol sous forme colloïdale, majoritairement associé à des colloïdes de Fe (Citeau, 2004 ; Citeau et al., 2001, 2003, 2008). Les colloïdes de fer précipitent quand les conditions redox fluctuent brutalement. C'est ainsi que l'on explique la présence de Pb dans l'horizon C_{1g}, dans la zone de battement de la nappe.

L'absence de Zn dans les ferrans s'explique par le mode de migration de cet élément dans les sols, majoritairement sous

forme Zn²⁺. Le Zn semble donc avoir été «filtré» dans les horizons sus-jacents, intercepté par les argiles à charges négatives (van Oort et al., 2006, 2007).

Pollutions de proximité

Sols contaminés dans le périmètre agricole

Contamination

En se basant sur les modèles de retombées atmosphériques autour de sites métallurgiques (Godin et al., 1985), une surface de près de 4000 ha autour du complexe industriel a été prospectée dans le programme Geotox-FrichIndus (van Oort et al., 2002a, b ; 2008). Les sols de ce périmètre ont reçu pendant près de 60 ans, des quantités plus ou moins importantes de poussières selon la distance au site métallurgique. Ces poussières de particules minérales métallifères, d'une taille généralement inférieure à quelques dizaines de µm (Sobanska et al., 1999 ; Elsass et al., 2002) sont géochimiquement instables dans les conditions physicochimiques qui règnent à la surface des sols. Par conséquent, les particules s'altèrent rapidement et les éléments métalliques libérés sont redistribués sur les constituants réactifs des sols (MOS, oxydes, phyllosilicates, phosphates). Généralement, quelques décennies après l'arrêt des activités métallurgiques on ne retrouve plus de traces des particules de poussières (Fernandez-Cornudet, 2006 ; Fernandez et al., 2007). Seules les nombreuses particules de charbon ainsi que la présence occasionnelle de fragments millimétriques de scories vacuolaires altérées, témoignent alors de l'activité industrielle passée.

Morphologie des sols

A proximité immédiate de l'ancien site de métallurgie, les terrains sont en grande partie urbanisés mais des peupleraies «périphériques» se sont développées au cours de l'activité industrielle (van Oort et al., 2008). Tous les sols présentent des teneurs élevées en métaux. Au-delà, s'étend le périmètre agricole qui inclut principalement des cultures céréalières, mais aussi des zones d'élevage et des domaines forestiers. Nous avons étudié plus particulièrement un sol représentatif des parcelles cultivées les plus fortement contaminées, situé à environ 750 m de l'ancien site (*figure 8*). Le sol est un Brunisol (AFES, 1995), développé dans des sédiments sablo-limoneux de la plaine alluviale de la Scarpe-Escaut. Malgré des teneurs notables en Zn (*figure 8b*), aucun impact de la pollution n'a été constaté lors de la description et de l'échantillonnage sur le terrain, ni sur les cultures, ni sur les caractéristiques morphologiques du sol. Le seul fait notable est la couleur gris-sombre de l'horizon L qui contraste avec les teintes brun-clair des horizons S sous-jacents. L'essentiel des métaux est contenu dans cet horizon de surface, mais une partie non négligeable du Zn et du Cd semble toutefois avoir migré plus en profondeur (Labanowski et al., 2007).

Étude microscopique

Les études micromorphologiques confirment la présence de nombreuses particules de charbon et de rares particules de scories industrielles, comme en témoignent des cristallisations de Franklinite et d'Hardystonite (figure 9a). Les figures 9b - d montrent des fragments de matières organiques particulaires (MOP) à différents stades de décomposition. Les fragments peu dégradés ont une couleur caractéristique brun-rougeâtre en lumière naturelle et laissent généralement encore entrevoir les structures cellulaires. A un stade de dégradation plus avancé, les MOP présentent localement des zones noires et opaques, souvent à la périphérie de la particule (figures 9b, e). Ces parties noires s'individualisent progressivement (figure 9c) en particules irrégulières, noires et opaques qui sont *in fine* incorporées dans la matrice fine du sol (figure 9d). Les cartographies élémentaires en μ -SXRF d'une MOP en voie de décomposition (figure 9e) montrent que ces parties noires et opaques correspondent à des zones d'accumulation de métaux (Zn, Pb), souvent accompagnées d'enrichissement en Fe (figure 9f).

Impacts de la pollution sur la pédogenèse

Parmi les constituants réactifs des sols souvent cités pour leur capacité à retenir des métaux dans les horizons de surface, les MOP occupent une place prépondérante. Dans le sol étudié, les fractions MOP (20-2000 μ m) accumulent plus de métaux (10 à 15 %) que les autres constituants organiques ou minéraux du sol (Labanowski *et al.*, 2007), en dépit de leur faible représentation dans le sol (environ 3 % de la masse totale du sol). Les concentrations en métaux dans les fractions MOP sont d'autant plus élevées que leur taille est faible. Ceci a été démontré à la fois pour les pollutions localisées, par exemple dans le cas de la pelouse métallicole (Balabane *et al.*, 1999), et dans le cas de sols des agrosystèmes soumis à la pollution de proximité (Balabane et van Oort, 2002 ; Lamy *et al.*, 2002). Récemment, nous avons montré que l'extractibilité des métaux (par l'EDTA) diminuait dans les fractions plus fines des MOP (Labanowski *et al.*, 2007). Dans ce même travail, un comptage de 800 points aléatoires sur des lames minces, estime à 5-10 % l'abondance de fines particules organiques noires (< 20 μ m) dérivées des MOP. Leur présence dans les fractions fines du sol et la diminution de l'extractibilité des métaux contenus suggèrent la formation de complexes organométalliques, stables à moyen, voire long terme, dans les sols. Des observations micromorphologiques suggèrent une perturbation du turn-over du carbone, notamment dans la séquence de décomposition des MOP dans les parties noires, riches en métaux. Ce processus de séquestration durable des métaux sous forme de complexes organométalliques stables impliquerait en retour la séquestration de carbone dans les sols pollués par des métaux. Dans ce cas, l'impact de la pollution de proximité sur la pédogenèse conduirait à l'apparition d'une nouvelle phase organométallique s'accumulant avec le temps dans la matrice fine du sol en lui conférant la couleur gris-sombre fréquemment notée dans les sols pollués par les métaux.

CONCLUSIONS

Les travaux présentés dans cette note témoignent de différents degrés d'impacts des pollutions métalliques sur le fonctionnement des sols, visibles et détectables à toutes les échelles d'observation. A l'échelle du profil et dans le cas de forte pollution, peuvent apparaître de nouveaux horizons, organiques ou minéraux, à la surface des sols. Dès les premières observations sur le terrain, on est souvent frappé par la stratification horizontale des horizons superficiels, qui résulte directement du dysfonctionnement des communautés fauniques. A l'échelle des mésostructures, l'impact de la pollution se marque fréquemment par l'apparition de colorations particulières, à la fois dans les horizons superficiels et en profondeur.

Les observations à l'échelle microscopique montrent la redistribution des métaux dans ces sols, avec parfois la néogenèse de phases métallifères et généralement la formation de complexes organo-métalliques qui peuvent modifier profondément la microstructure du sol. Les composants directement issus des apports en polluants, peuvent colmater partiellement la porosité, et donc affecter le fonctionnement hydrique du sol. Ces complexes métalliques, formés relativement récemment sont le plus souvent métastables, tributaires du stade d'altération des composés primaires introduits par la pollution ou de l'usage des sols. Ils sont donc susceptibles de déstabilisation à plus ou moins longue échéance et seront donc à terme des nouvelles sources de redistribution de polluants métalliques.

Dans les sols agricoles, ce sont les mécanismes d'immobilisation mutuelle des métaux et de la matière organique qui apparaissent prédominants. Ils sont à la fois le révélateur d'une modification du cycle biogéochimique du carbone dans ces sols, en même temps qu'ils constituent une voie d'atténuation naturelle des risques induits par les métaux dans les sols.

Le fonctionnement de ces sols « perturbés » montre la complexité des interactions entre biologie, géochimie et pétrophysique dans l'équilibre des sols qui sont encore trop souvent regardés comme des « objets » figés, à l'équilibre, et donc stables. L'étude des sols pollués nous enseigne que les équilibres sont fragiles, que la moindre perturbation peut entraîner la déstabilisation du système. En cas d'impacts toxicologiques des métaux sur la faune du sol, les cycles biogéochimiques peuvent être fortement perturbés. La stabilité des complexes organo-minéraux est soit renforcée, soit fragilisée ; cela peut aller jusqu'à l'édification ou la déstabilisation de structures « architecturales », et par là, modifier les propriétés physiques (compaction, perméabilité, etc.) des sols.

Ce travail montre l'importance primordiale de l'observation à diverses échelles dans l'étude des sols pollués, non seulement observation des sols dans le paysage, mais aussi lecture des changements liés aux activités anthropiques au niveau des sols. Les microstructures pédologiques représentent une échelle à laquelle s'expriment le plus souvent les impacts de la pollution. L'observation des microstructures peut donc renseigner sur l'or-

ganisation spatiale des polluants et sur leur histoire, sur la chronologie des altérations successives, et permet ainsi de démêler les mécanismes : incorporation, mobilité, immobilisation. La connaissance fine de ces mécanismes permet souvent de pressentir ou pronostiquer le devenir des métaux dans les sols. L'étude de ces transformations est primordiale pour prévenir, gérer et traiter les effets à venir, adapter l'utilisation des sols par la recommandation de pratiques culturales, ou d'aménagements lors d'occupations urbaines.

L'organisation spatiale des constituants des sols soulève aussi des questions pertinentes sur la spéciation des polluants métalliques et donc sur leur mobilité et les conséquences en termes d'exposition aux êtres vivants. De telles questions motivent aujourd'hui les nouvelles thématiques de recherche conjuguant pédologie, minéralogie, physicochimie et microbiologie, menées dans la structure « PESSAC », affichant une transversalité entre sciences physiques et biologiques.

Cette transversalité disciplinaire faisait partie intégrante des motivations scientifiques de Michel Robert. Il l'a mise en œuvre dans de nombreux travaux de recherche qu'il a menés avec des collaborations très larges. Il l'a impulsée maintes fois lors de l'élaboration de programmes de recherche tant à l'INRA que dans les programmes nationaux des Ministères de l'Agriculture et de l'Environnement. Il l'a aussi mise en œuvre très concrètement dans les équipements et les thématiques abordées pendant sa carrière au laboratoire des sols de l'INRA de Versailles.

BIBLIOGRAPHIE

- AFNOR, 1996 - Qualité des sols. Recueil des normes Françaises. AFNOR, Paris, France.
- AFES, 1995 - Le référentiel pédologique (coordinateurs Baize D et Girard, M.), INRA-Éditions, Paris, 336 p.
- Balabane M., Faivre D., van Oort F., Dahmani-Muller H., 1999 - Mutual effects of soil organic matter dynamics and heavy metals fate in a metallophyte grassland. *Environmental Pollution*, 105, pp. 45-54.
- Balabane M., van Oort F., 2002 - Abundance and metal enrichment of coarse particulate organic matter in cultivated soils low metal-contaminated from past smelter emissions. *Soil Biochemistry & Biology*, 34, pp. 1513-1516.
- Balesdent J., Pétraud J.P., Feller C., 1991 - Some effects of ultrasonic vibrations on size-distribution of soil organic matter. *Science du Sol*, 29, pp. 95-106.
- Besnard E., van Oort F., Jongmans A.G., 2002 - Amendements organiques, distribution du cuivre et structure des sols dans le vignoble de Champagne. In Baize D., Tercé M., (Eds.) « Les Eléments métalliques dans les sols - Approches fonctionnelles et spatiales » pp 201-213, INRA-Éditions, Paris.
- Boucher U., Balabane M., Lamy I., Cambier P., 2005a - Decomposition in soil microcosms of leaves of the metallophyte *Arabidopsis halleri* : effect of leaf-associated heavy metals on biodegradation. *Environmental Pollution*, 135, pp. 187-194.
- Boucher U., Lamy I., Cambier P., Balabane M., 2005b - Decomposition of leaves of the metallophyte *Arabidopsis halleri* in soil microcosms : fate of Zn and Cd from plant residues. *Environmental Pollution*, 135, pp. 323-332.
- Cambier P., 2001 - Synthèse de travaux portant sur la pollution environnementale autour de la friche industrielle de Mortagne-du-Nord. Contribution au développement des méthodes d'investigation et de gestion des sites contaminés. Rapport de contrat MATE-SRAE / INRA-Versailles, n° 95-245, 27p.
- Canti M.G., 1997 - An investigation of microscopic calcareous spherulites from herbivore dung. *Journal of Archaeological Science*, 24, pp. 219-231.
- Citeau L., 2004 - Etude des colloïdes naturels circulant dans les eaux gravitaires de sols contaminés : nature des colloïdes et réactivité vis-à-vis des métaux. Thèse de doctorat, INAPG, Paris, 251 p.
- Citeau L., Lamy I., van Oort F., 2008 - Suivi *in situ* de la composition des eaux gravitaires de sols sableux contaminés : déterminisme de la mobilité de Zn et Pb. In Cambier P., Schwartz C., van Oort F., (Eds.) « Devenir et Effets des Contaminations Métalliques dans les Agrosystèmes et Ecosystèmes Terrestres Péri-industriels » Editions Quae, Versailles, France (sous presse).
- Citeau L., Lamy I., van Oort F., Elsass F., 2001 - Nature des sols et nature des colloïdes circulant dans les eaux gravitaires : une étude *in situ*. *Comptes Rendus à l'Académie des Sciences*, 332, pp. 657-663.
- Citeau L., Lamy I., van Oort F., Elsass F., 2003 - Colloidal facilitated transfer of metals in soils under different land use. *Colloids and Surfaces A*, 217, pp. 11-19.
- Dahmani-Muller H., 2000 - Phytoréhabilitation des sols pollués par des éléments métalliques : facteurs et mécanismes de prélèvement dans les sols et d'accumulation par des espèces métallobytophytes. Thèse ENGREF, Paris, 151 p.
- Dahmani-Muller H., van Oort F., Gélie B., Balabane M., 2000 - Strategies of heavy metal uptake by three plant species growing near a metal smelter. *Environmental Pollution*, 109, pp. 231-238.
- Dahmani-Muller H., van Oort F., Balabane M., 2001 - Metal extraction by *Arabidopsis halleri* grown on an unpolluted soil amended with various metal-bearing solids : a pot experiment. *Environmental Pollution*, 114, pp. 77-84.
- Dahmani-Muller H., van Oort F., Denaix L., 2002 - Is metal extraction by *Arabidopsis halleri* related to exchangeable metal rates in substrates amended with different metal-bearing solids? *Environmental Pollution*, 117, pp. 487-498.
- Deffontaines J.-P., 2006 - Interview du 13 mars 2006. *INRA mensuel*, 218, pp. 68-70.
- Deffontaines J.-P., Ritter J., Deffontaines B., Michaud D. 2006 - Petit guide de l'observation du paysage. Editions Quae-INRA, Versailles, 31p.
- Ducauroir J., Lamy I., 1995 - Evidence of trace metal association with soil organic matter using particle size fractionation after physical dispersion treatment. *The Analyst*, 120, pp. 741-745.
- Elsass F., Jaunet A.M., van Oort F., Le Mot Y. 2002 - Spéciation physique, par microscopie électronique analytique, de métaux traces dans les sols contaminés. In Baize D., Tercé M., (Eds.) « Les Eléments métalliques dans les sols - Approches fonctionnelles et spatiales » pp. 331-350, INRA-Éditions, Paris.
- Fernandez-Cornudet C., 2006 - Devenir du Zn, Pb, et Cd issus de retombées atmosphériques, à différentes échelles d'étude. Influence de l'usage des sols sur la distribution et la mobilité des métaux. Thèse de doctorat, INAPG, Paris, 185 p.
- Fernandez, C., Labanowski J., Cambier P., Jongmans A.G., van Oort F. 2007 - Fate of airborne pollution in soils as related to agricultural management : 1. distributions of Zn and Pb in soil profiles. *European Journal of Soil Science*, 58, pp. 547-559.
- Godin P. M., Feinberg M. H., Ducauze C.J., 1985 - Modelling of soil contamination by airborne Lead and Cadmium around several emission sources. *Environmental pollution*, 10, pp. 97-114.
- Guérin R., Panissod C., Thiry M., Bendritter Y., Tabbagh A., Huet-Taillanter S., 2002 - La friche industrielle de Mortagne-du-Nord (59), III – Approche

- méthodologique d'étude géophysique non-destructive des sites pollués par des eaux fortement minéralisées, Bulletin de la Société Géologique de France, 173, pp. 471-477.
- Guérin R., Bégassat P., Benderitter Y., David J., Tabbagh A., Thiry M., 2004 - Geophysical study of the industrial waste land in Mortagne-du-Nord (France) using electrical resistivity. Near Surface Geophysics, 2, pp. 137-143.
- Hardy O. 1970 - Croissance et déclin d'une implantation industrielle au XX^e siècle : le zinc dans le pays de Saint-Amand. La compagnie métallurgique franco-belge de Mortagne 1905-1948. Revue du Nord, 204, pp. 43-84.
- Jongmans A.G., Pulleman M.M., Balabane M., van Oort F., Marinissen J.C.Y., 2003 - Soil structure and characteristics of organic matter in two orchards differing in earthworm activity. Applied Soil Ecology, 24, pp. 219-232.
- Labanowski J., Sebastia J., Foy E., Jongmans A.G., Lamy I., van Oort F., 2007 - Fate of metal-associated POM in a soil under arable land use contaminated by metallurgical fallout. Environmental Pollution, 149, pp. 59-69.
- Lamy I., Ducaroir J., Sterckeman T., Douay F., 2002 - Réactivité des matières organiques. In Baize, D., Tercé, M., (Eds.) « Les Eléments métalliques dans les sols - Approches fonctionnelles et spatiales » pp. 269-282, INRA-Éditions, Paris.
- Leguédois S., van Oort F., Jongmans A.G., Chevallier P., 2004 - Morphology, chemistry and distribution of neoformed mineral species in agricultural land affected by metallurgical point-source pollution. Environmental Pollution, 130, pp. 135-148.
- Lund U., Fobian A., 1991 - Pollution of two soils by arsenic, chromium and copper. Denmark. Geoderma, 49, pp. 83-103
- Mench, M., Bessoule, J.J., Chartier, S., Denaix, L., Girardi, S., Riff, M., Solda, P., van Oort, F., 2008 - Exposition de végétaux aux éléments traces, évaluation et gestion des risques. - Exemple de la zone agricole de Mortagne-du-Nord. In Cambier P., Schwartz C., van Oort F., (Eds.) « Devenir et Effets des Contaminations Métalliques dans les Agrosystèmes et Ecosystèmes Terrestres Péri-industriels » Editions Quae, Versailles, France (sous presse).
- Morse H.W., Donnay J.D.H., 1932 - Spherulites optics. American Journal of Science, 23, pp. 440-461.
- Nahmani J., Lavelle P., 2002 - Effects of heavy metal pollution on soil macrofauna in a grassland of Northern France. European Journal of Soil Biology, 38, pp. 297-300.
- Nahmani J., Lavelle P., Lapied E., van Oort F., 2003a - Effects of heavy metal soil pollution on earthworm communities in the north of France. Pedobiologia, 47, pp. 663-669.
- Nahmani, J., Lavelle, P., Lapied, E., van Oort, F. 2008 - Impact des métaux sur la structure et le rôle fonctionnel des communautés de macroinvertébrés et de microorganismes des sols du Nord - Pas-de-Calais : une approche multiscale. In Cambier P., Schwartz C., van Oort F., (Eds.) « Devenir et Effets des Contaminations Métalliques dans les Agrosystèmes et Ecosystèmes Terrestres Péri-industriels » Editions Quae, Versailles, France (sous presse).
- Nahmani J., van Oort F., Lapied E., Rouland C., Lavelle P., 2003b - Les métaux et leurs effets sur les communautés biologiques des sols. Biofutur, 230, pp. 40-42.
- van Oort F., Balabane M., Gaultier J.P., Hardy R., Bourenne H. 2001 - Dissemination and spatial variability of metal pollutants generated by past metallurgical activity of a zinc smelter complex in surrounding agricultural land (Mortagne-du-Nord, northern France). Mémoires des Sciences de la Terre, 40, pp. 157-160.
- van Oort F., Balabane M., Dahmani-Muller H., Jongmans A.G., Nahmani J., 2002a - Approches intégrées du fonctionnement d'une pelouse métallique. In Baize D., Tercé M., (Eds.) « Les Eléments métalliques dans les sols - Approches fonctionnelles et spatiales » pp. 313-330, INRA-Éditions, Paris.
- van Oort F., Gaultier J.P., Hardy R., Bourenne H., 2002b - Distributions spatiales de métaux et stratégies d'échantillonnage dans les sols du périmètre agricole d'une friche industrielle. In Baize D., Tercé M., Eds. « Les Eléments métalliques dans les sols - Approches fonctionnelles et spatiales » pp. 283-298, INRA-Éditions, Paris.
- van Oort F., Jongmans A.G., Citeau L., Lamy I., Chevallier P., 2006 - Microscale Zn and Pb distribution patterns in subsurface soil horizons : an indication for metal transport dynamics. European Journal of Soil Science, 57, pp. 154-166.
- van Oort F., Thiry M., Jongmans T., Bourenne H., Cambier P., Lamy I., Citeau L., Fernandez C., Nahmani J. 2008 - In Cambier Ph., Schwartz C., van Oort F., (Eds.) « Les pollutions métalliques d'un site industriel et des sols environnants : distributions hétérogènes des métaux et relations avec l'usage des sols. Devenir et Effets des Contaminations Métalliques dans les Agrosystèmes et Ecosystèmes Terrestres Péri-industriels » Editions Quae, Versailles, France. (sous presse).
- van Oort, F., Jongmans A.G., Lamy I., Baize D., Chevallier P., 2007 - Impacts of long-term waste water irrigation on the development of sandy Luvisols. Consequences for metal pollutant distributions. European Journal of Soil Science, (revised version returned).
- Robert M., 1996 - Le sol, une interface dans l'environnement, une ressource pour le développement. Masson, Paris, 244 p.
- Robert M., Chenu C., 1992 - Interactions between Soil Minerals and Microorganisms. In Stotzky G., Bollag J.-M., (Eds) « Soil Biochemistry » pp. 307-404, Marcel Dekker, New York.
- Schmitt J.-M., Huet-Taillanter S., Thiry M., 2002 - La friche industrielle de Mortagne-du-Nord (59) – II – Altération oxydante des scories, hydrochimie, modélisation géochimique, essais de lixiviation et proposition de remédiation. Bulletin de la Société Géologique de France, 173, pp. 383-393.
- Schwartz C., E. Gérard, K. Péronnet, J.L. Morel, 2001 - Measurement of *in situ* phytoextraction of zinc by spontaneous metallophytes growing on a former smelter site. The Science of the Total Environment, 279 : pp. 215-221.
- Sobanska S., Ricq N., Laboudigue A., Guillermo R., Brémard C., Laureyns J., Merlin J.C., Wignacourt J.P., 1999 - Microchemical investigations of dust emitted by a lead smelter. Environmental Science and Technology, 33, pp. 1334-1339.
- Thiry M., Huet-Taillanter S., Schmitt J.-M., 2002 - La friche industrielle de Mortagne-du-Nord (59) – I - Prospection du site, composition des scories, hydrochimie, hydrologie et estimation des flux. Bulletin de la Société Géologique de France, 173, pp. 369-381.
- Thiry M., van Oort F., 1996 - Etat de la pollution, toxicité et devenir des métaux polluants d'une friche industrielle. Projet de recherches intégrées de la friche de Thun-St-Amand - Mortagne-du-Nord. (Géotox-FrichIndus). Contrat Min. Env. Doc.CIG-ENSMP LHM/RD/96/31, Fontainebleau. 37 p.
- Thiry M., van Oort F., 1999a - De l'échantillonnage à la spéciation : pertinence des analyses minéralogiques par diffraction des Rayons-X dans les sites et sols pollués par des métaux. In Club CRIN Environnement & Ministère de l'Environnement (Eds) « Spéciation des métaux dans le sol. Les cahiers du club CRIN » pp. 96-107, Association ECRIN, Paris.
- Thiry M., van Oort F., 1999b - Les phases minérales majeures et mineures d'une friche industrielle de métallurgie des métaux non ferreux : état d'altération, évolution géochimique et devenir des métaux polluants du site de Mortagne-du-Nord. In Club CRIN Environnement & Ministère de l'Environnement (Eds) « Spéciation des métaux dans le sol. Les cahiers du club CRIN » pp. 108-135, Association ECRIN, Paris.
- Van Haluwyn C., Petit D., Mériaux J.-L., 1987 - Végétations métalliques dans la région Nord - Pas-de-Calais. Bulletin de la Société Botanique Nationale de France, 40, pp. 7-15.

