Recyclage agricole des déchets organiques dans les sols tropicaux (île de La Réunion): quel impact sur les transferts d'éléments traces métalliques?

- E. Doelsch_{(1)*}, I. Basile Doelsch₍₂₎, J.Y. Bottero₍₂₎, P. Cazevieille₍₁₎, C. Chevassus-Rosset₍₁₎,
- F. Feder₍₃₎, J.M. Garnier₍₂₎, J.P. Gaudet₍₄₎, S. Legros₍₁₎, C. Levard₍₂₎, A. Masion₍₂₎,
- G. Moussard₍₃₎, J. Rose₍₂₎ et H. Saint Macary₍₁₎
- 1) CIRAD, UPR Recyclage et risque, 34398 Montpellier, France
- 2) CEREGE, Aix-Marseille Université, CNRS, CDF, IRD Europôle Méditerranéen de L'Arbois, BP 80, 13545 Aix en Provence, France.
- 3) CIRAD, UPR Recyclage et risque, 97408 Saint Denis, France
- 4) CNRS, INPG, LTHE, UMR 5564, IRD, UJF, 38041 Grenoble 9, France
- * Auteur correspondant : doelsch@cirad.fr

RÉSUMÉ

Face à l'augmentation de la production de déchets dans les régions ultra périphériques insulaires comme La Réunion, il est demandé aux décideurs politiques et aux scientifiques de proposer des solutions de valorisation pérennes. Le recyclage agricole est une de ces solutions. Elle suppose, cependant, une bonne appréciation des impacts environnementaux de cette pratique. La présence en quantité élevée à l'état naturel d'éléments traces métalliques (ETM) dans les sols de La Réunion soulève un problème spécifique : l'épandage de déchets organiques ne risque-t-il pas de conduire à des transferts des ETM des sols vers les nappes et les cultures? En milieu tropical, les éléments pour répondre à cette question manquent. Dans le cadre de ce projet, nous avons évalué l'impact de l'épandage de déchets organiques sur la spéciation et le transfert des ETM présents dans les sols réunionnais. Il s'est agit de : (i) déterminer la spéciation des ETM des sols de La Réunion et son évolution suite à l'apport de déchets organiques puis (ii) de quantifier la mobilité des ETM entre les différents compartiments : sol, plante et eau. Pour cela, trois sols, naturellement riches en ETM, ont été sélectionnés afin de représenter la diversité des conditions pédologiques rencontrées à l'échelle de l'île de La Réunion ainsi que deux déchets organiques (compost de déchet vert et lisier de porc) avec des teneurs en ETM contrastées.

L'ensemble des résultats qui concernent la spéciation des ETM dans les sols sont cohérents quelle que soit la méthode utilisée (chimique ou spectroscopique). En effet, ils permettent de montrer que malgré les concentrations élevées en ETM des sols étudiés, les ETM ne sont pas ou peu mobiles et biodisponibles. Malgré des évolutions importantes des propriétés physico-chimiques liées à l'apport de déchets organiques (acidification et augmentation de la salinité), nous n'avons pas détecté d'augmentation de la fraction échangeable des ETM au cours des incubations. Autrement dit, la minéralisation de la MO des déchets organiques ne se traduit pas par le relargage d'une quantité d'ETM significative, ou, si ce phénomène a lieu, les ETM sont rapidement piégés par les phases minérales ou organiques présentes dans le sol. Les expériences conduites en colonnes de sol ou *in situ* sur des parcelles expérimentales donnent des résultats concordants: l'épandage de lisier de porc se traduit par une accumulation de Cu et Zn dans les premiers centimètres du sol et nous n'avons enregistré aucune mobilité des ETM présents dans les sols.

Mots clés

Éléments traces métalliques, sol, déchets organiques, recyclage agricole.

SUMMARY

AGRICULTURAL RECYCLING OF ORGANIC WASTES IN TROPICAL SOILS (REUNION ISLAND): Which impact on heavy metal transfers?

The recent rapid population growth in Réunion has led to an increase in agricultural, industrial and urban activities. This has resulted in a marked increase in waste production. Agricultural recycling of waste is an interesting way to dispose of various agricultural, urban and industrial organic wastes. Nevertheless, the environmental impact of these agricultural recycling practices has to be controlled in order to avoid organic or inorganic contamination of natural resources (soil, water), especially in an insular setting like Réunion, where there is high pressure on non-renewable natural resources. Only a few studies have focused on the speciation or geochemical behaviour of heavy metal in tropical volcanic soils. The aim of this project was to evaluate the impact of organic wastes spreading on the speciation and the transfer of tropical soilborne heavy metals. The soils selected for the present study are representative of the soil-climate conditions on the tropical volcanic island of Réunion and the organic wastes (swine manure and compost) have contrasting properties for heavy metals content.

The results obtained by the different methods (chemical and spectroscopic) highlighted some similarities. We demonstrated that organic wastes spreading did not have an impact on soilborne heavy metal speciation. Soil columns in the laboratory and experimental plots were conducted to study the impacts of pig manure amendment. Both experiments were consistent for the heavy metals behavior, with an increase in Cu and Zn concentrations in the surface layer of amended soil as compared to the control soil.

Key-words

Heavy metal, soil, organic waste, agricultural recycling.

RESUMEN

RECICLAJE AGRÍCOLA DE LOS DESECHOS ORGÁNICOS EN LOS SUELOS TROPICALES (ISLA DE LA REUNIÓN): ¿cual impacto sobre las transferencias de elementos traza metálicos?

Frente al aumento de la producción de desechos en las regiones ultra periféricas insulares como La Reunión, los decidores políticos y los científicos deben proponer soluciones de valorización perenes. El reciclaje agrícola está una de estas soluciones. Supone, sin embargo, una buena apreciación de los impactos ambientales de esta práctica. La presencia en cuantidad elevada al estado natural de los ETM en los suelos de La Reunión planta un problema científico: ¿el esparcimiento de los desechos orgánicos no arriesga conducir a transferencia de ETM de los suelos hacia los acuíferos? En medio tropical, los elementos para contestar a esta pregunta faltan. En el cuadro de este proyecto, evaluamos el impacto del esparcimiento de desechos orgánicos sobre la especiación y la transferencia de los elementos traza metálicos (ETM) presentes en los suelos de La Reunión. Se trata de: (i) determinar la especiación de los ETM de los suelos de La Reunión y su evolución después del aporte de desechos orgánicos luego (ii) cuantificar la movilidad de los ETM entre los diferentes compartimentos: suelo, planta y agua. Para eso, se seleccionaron tres suelos, naturalmente ricos en ETM, para representar la diversidad de las condiciones pedológicas encontrados a escala de la isla de La Reunión así que dos desechos orgánicos (compostas de desechos verdes y estiércol líquido de cerdos) con propiedades contrastadas.

El conjunto de los resultados que conciernen la especiación de los ETM en los suelos están coherentes entre ellos cualquiera que sea el método usado (químico o espectroscópico). En efecto, permiten mostrar que a pesar de las concentraciones elevadas en ETM de los suelos estudiados, los ETM no están o poco móviles y biodisponibles. A pesar de las evoluciones importantes de las propiedades fisicoquímicas (acidificación y aumento de la salinidad), no detectamos aumento de la fracción intercambiable de los ETM en el curso de las incubaciones. Es decir, la mineralización de la MO de los desechos orgánicos no se traduce por la suelta de una cuantidad de ETM significativa, o si este fenómeno existe, los ETM están rápidamente atrapados por las fases minerales u orgánicas presentes en el suelo. Las experiencias conducidas en columnas de suelo o in situ en parcelas experimentales dan resultados concordantes: el esparcimiento de estiércol líquido de cerdo se traduce por una acumulación de Cu y Zn en los primeros centímetros del suelo y registramos ninguna movilización de los ETM presentes en los suelos.

Palabras clave

Elementos trazas metálicos, suelo, desechos orgánicos, reciclaje agrícola

INTRODUCTION

Éléments de contexte

La gestion des déchets que nous produisons peut être considérée comme un enjeu scientifique, environnemental, technologique et économique crucial de nos sociétés contemporaines. Parmi les solutions de gestion des déchets, le recyclage agricole permet la valorisation de déchets organiques d'origines variées: agricole (lisiers, fumiers, fientes), urbaine (boues de station d'épuration, composts) et agro-industrielle (vinasses, etc.). Le recyclage agricole permet l'apport de produits possédant une valeur fertilisante pouvant se substituer aux engrais traditionnels, l'amélioration des propriétés physiques des sols cultivés comme la texture, la porosité ou l'infiltrabilité, le développement de l'activité de la microflore et de la faune du sol. Afin de prendre en compte les spécificités culturales, climatiques et pédologiques de l'île de La Réunion, milieu tropical, la Chambre d'Agriculture de La Réunion (MVAD: mission de valorisation agricole des déchets) et le Centre de coopération internationale en recherche agronomique pour le développement (CIRAD) ont entrepris depuis 1996 de caractériser les déchets organiques produits sur l'île. Cette typologie se base sur les teneurs en C. N. P. K. les indices de stabilité biochimiques, la caractérisation biochimique de la matière organique et les dynamiques de minéralisation C et N des matières organiques. La valorisation de ce travail s'est traduite en 2006 par la préparation d'un guide pratique d'utilisation des matières organiques destiné aux agriculteurs réunionnais (Chabalier et al., 2006).

Pour assurer la pérennité de la filière de recyclage des déchets organiques, il est toutefois fondamental de limiter l'impact environnemental de ces pratiques qui peut se traduire par:

- la contamination des sols suite à l'apport en quantité importante d'éléments inorganiques (ETM, phosphore) ou organiques polluants (poly-chloro-biphényls - PCB, hydrocarbures aromatiques polycycliques - HAP, pesticides);
- une exportation de ces contaminants par les cultures vers la chaîne alimentaire;
- le transfert vers la nappe souterraine de polluants.

Certaines dispositions législatives permettent d'ores et déjà de limiter ces impacts avec:

- la « directive nitrates » (91-676 CEE) qui a conduit les États membres à définir des zones vulnérables, à élaborer et à mettre en œuvre des programmes d'actions visant à réduire la pollution des eaux par les composés azotés;
- les normes pour les amendements organiques (NF U44-051 et NF U44-095) qui sont rendues d'application obligatoire et précisent les teneurs maximales autorisées en ETM dans les apports d'amendements organiques;

– le décret n° 97-1133 du 8 décembre 1997, complété par l'arrêté du 8 janvier 1998 qui fixe les prescriptions techniques applicables aux épandages de boues de station d'épuration (STEP) sur les sols agricoles. Ces textes fixent entre autres les valeurs limites de concentration en ETM dans les boues et les sols avant épandage.

A ce jour, il est important de noter l'absence de réglementation spécifique à l'épandage de déchets agricoles (lisiers, fumiers, etc.) en relation avec les ETM.

Jusqu'à présent, les études conduites à La Réunion dans le cadre du recyclage agricole des déchets organiques ont essentiellement consisté à caractériser leurs propriétés agronomiques. Aucune étude de l'impact environnemental lié à la présence des ETM dans les sols et les produits épandus n'était entreprise avant le démarrage de ce projet. Les questions scientifiques que nous avons abordées sont issues de plusieurs spécificités de l'île de La Réunion. Cette région est marquée par une forte croissance démographique qui se traduit par une intensification des activités agricoles, industrielles et urbaines. Il en découle une augmentation de la production de déchets. Le gisement des matières organiques épandables à La Réunion est estimé à 837 804 tonnes (données: http://www. mvad-reunion.org). Les effluents d'élevage (752 144 tonnes) constituent le premier gisement de produits organiques, et l'on envisage un accroissement de près de 30 % de ces effluents, en l'espace de 10 ans. Le défi posé à l'agriculture par le problème des effluents d'élevage est bien réel, car les possibilités de valorisation sont limitées par un ensemble de contraintes, liées en particulier aux fortes contraintes topographiques et au mitage important et croissant du territoire. Par ailleurs, les composts ne représentent qu'une faible proportion du gisement des matières organiques épandables à La Réunion (environ 6662 tonnes), il s'agit néanmoins d'une filière en plein essor. En effet, la quasi-totalité des communes réunionnaises prévoit à court terme de se doter de plateformes de compostage afin de faire face à l'augmentation de la production de déchets verts.

L'évolution pédogénétique des sols de La Réunion est contrôlée par le gradient climatique et l'orographie de l'île. Les 60 000 ha de sols cultivés se répartissent en 6 sous-classes de sols de la façon suivante: 34,8 % d'Andosols, 22,8 % d'Andosols perhydratés, 16,5 % de sols Bruns andiques, 12,9 % de sols Bruns ferrallitiques, 12,6 % de sols ferrallitiques et 0,4 % de sols vertiques. Les sols réunionnais cultivés sont acides (4,5 < pH < 6,5) et riches en éléments traces métalliques (ETM). Les concentrations moyennes sont supérieures à celles rencontrées à l'échelle de la planète particulièrement pour Cr, Cu, Ni et Zn (tableau 1). Les travaux conduits sur les sols réunionnais soulignent leurs spécificités physiques, chimiques et un fonctionnement différent de celui des sols de climat tempéré.

Les concentrations élevées des sols de La Réunion en ETM ne favorisent *a priori* pas la généralisation du recyclage

Tableau 1: comparaison des concentrations moyennes en ETM (mg.kg⁻¹) des sols réunionnais (Doelsch *et al.*, 2006c) et des sols mondiaux (Kabata-Pendiaset Pendias, 2001).

Table 1: Comparison of the mean trace element contents of Réunion's and world's soils.

	Cd	Cr	Cu	Hg	Ni	Zn
Réunion (N = 97)	0,19	310	63,3	0,23	211	159
Sols Monde	0,53	54	25	<0,1	22	64

agricole des déchets organiques. En effet, 80 % des sols étudiés présentent des teneurs en Ni supérieures à la valeur seuil fixée par l'arrêté du 8 janvier 1998 (55 % des sols étudiés pour Cr) limitant fortement le développement de l'utilisation des boues de STEP en agriculture. En ce qui concerne les déchets organiques agricoles, il n'existe pas de prescription législative limitant leur utilisation en agriculture en fonction des concentrations en ETM des sols. Néanmoins, afin de préserver les ressources sols et eaux qui sont fortement sollicitées dans un contexte insulaire où la surface cultivable est limitée, il est primordial d'évaluer l'impact de pratiques agricoles telles que l'épandage de déchets organiques sur des sols naturellement riches en ETM. Ces pratiques agricoles modifient en effet de manière importante l'état d'équilibre géochimique et biologique du milieu en affectant: le stock et la dynamique de la matière organique : les flux hydriques : la composition et les propriétés physico-chimiques (pH, Eh, etc) des solutions du sol; les propriétés physiques du sol (texture, porosité, infiltrabilité, etc.); les populations de la microfaune comme de la macrofaune. L'ensemble de ces évolutions est susceptible de modifier la spéciation des ETM et il est fondamental d'évaluer les risques de transferts de ces éléments entre les différents compartiments environnementaux.

Objectifs généraux du projet

A l'heure actuelle, peu de moyens sont consacrés à l'évaluation et à la gestion des risques liés au recyclage agricole de déchets en milieu tropical où les conditions climatiques, hydrologiques et pédologiques sont particulières. La pérennisation de telles pratiques agricoles est fortement liée à la préservation des ressources naturelles au premier rang desquelles viennent le sol, élément récepteur, transformateur et redistributeur et l'eau, élément vecteur des potentiels contaminants. Or, l'insularité, qui est synonyme de surfaces cultivables limitées, de ressources en eau particulièrement sensibles aux pollutions, impose de maîtriser et limiter l'impact environnemental du recyclage des déchets organiques. Pour cela, il est nécessaire de déterminer et quantifier les effets des processus liés aux épandages agricoles. Dans le cadre de ce projet, l'impact de l'épandage de déchets organiques sur la spéciation et le transfert des ETM présents dans les sols réunionnais est étudié. Il s'agit de:

- 1. déterminer la spéciation des ETM des sols de La Réunion et son évolution suite à l'apport de déchets organiques;
- 2. quantifier la mobilité des ETM entre les différents compartiments: sol, plante et eau.

Les mécanismes bio-physico-chimiques sont étudiés à différentes échelles spatio-temporelles: du colloïde à la parcelle de terrain, et de la minute à l'année, à l'échelle intermédiaire (colonne de sol au laboratoire, dm³) et en conditions dynamiques (écoulement d'eau).

MATÉRIAUX ET MÉTHODES

Les mécanismes étudiés, de natures très diverses, sont d'ordre géochimique (adsorption, complexation), biologique (évolution des produits dégradables, activité d'une plante) et physique (transferts).

Afin d'évaluer la réactivité et les transferts des ETM dans les sols et les eaux, le projet est structuré en trois volets complémentaires:

- un volet géochimie-réacteur statique qui examine les propriétés et les caractéristiques des matières organiques vis-à-vis des ETM (nature, propriétés des complexes organo-minéraux, etc.). Plus spécifiquement, une partie des expériences en batch renseigne sur les paramètres essentiels définissant les interactions bio-géochimiques entre les phases minérales et aqueuses, qui se manifestent lors de l'introduction de déchets dans les sols ;
- un volet transfert-colonne de sol qui étudie les paramètres hydrodynamiques des sols et suit, au cours du temps, les couplages dynamiques entre la réactivité bio-géochimique des éléments, les cinétiques physiques et les transferts. Pour cela, les expériences en colonnes de sol permettent de contrôler et de suivre en continu l'évolution du régime hydrique du sol ainsi que les propriétés géochimiques des eaux;
- un volet étude in situ qui consiste à partir des mesures de terrain, à valider (ou non) les résultats obtenus au laboratoire (volets 1 et 2) en intégrant les hétérogénéités spatiales et temporelles inhérentes à de telles expérimentations.

Pour chacun des volets expérimentaux de ce projet, plusieurs couples sol/déchet organique sont étudiés. Leur sélection repose sur l'analyse des spécificités de l'île de la Réunion:

 Trois unités pédologiques ont été choisies afin de constituer une séguence pédogénétique typiquement observée à La Réunion possédant des propriétés (minéralogie et concentration en ETM) contrastées. Il s'agit tout d'abord d'un Nitisol (d'après la terminologie (FAO, 1998)) localisé à La Mare (LM) dans le nord de l'île à basse altitude sur la côte exposée au vent. Le deuxième sol, Les Colimaçons (CO), se rapporte à un Cambisol andique. Il est localisé dans l'ouest de l'île à movenne altitude et sous le vent. Enfin le dernier choix s'est porté sur un Andosol de Sainte-Rose (SR). Il a été prélevé à basse altitude dans l'est de l'île. La Réunion est formée par deux volcans distincts: le Piton des Neiges (éteint) et le Piton de la Fournaise (actif). Les sols sélectionnés ont été échantillonnés sur ces 2 massifs volcaniques, ce qui leur confère des propriétés différentes. Le Nitisol LM (tableau 2) est actuellement soumis à des précipitations relativement faibles pour La Réunion (1460 mm/an) et une température moyenne annuelle de 23,9 °C. LM est un sol peu acide, pH = 5,8, peu riche en C (Ctotal = 2,32 %). Le cambisol CO est situé à 780 m d'altitude où la température et les précipitations moyennes annuelles sont respectivement de 18,5 °C et 1250 mm. Il s'agit d'un sol acide (pH = 4,7) et riche en C (C_{total} = 3,9 %). L'Andosol SR est un sol légèrement acide (pH = 5,2) très riche en C (Ctotal = 19.3 %) développé à partir de laves et de pyroclastites issues du Piton de la Fournaise.

 Le gisement des déchets organiques de La Réunion est marqué par l'importance des lisiers de porc (184110 t/an, données MVAD) et la production croissante des composts de déchets verts (6662 t/an, données MVAD).

Cette sélection représente 6 couples sol-déchet organique. Les ETM étudiés dans le cadre de ce projet sont: Cr, Cu, Ni, Pb et Zn en raison de leur forte occurrence dans les sols et les déchets organiques de la Réunion.

RÉSULTATS

Volet géochimie-réacteur statique

Caractéristiques des sols et déchets étudiés

Nous avons récemment démontré le lien étroit entre les teneurs en ETM des sols et l'origine des matériaux volcaniques à partir desquels les sols se sont formés (Doelsch *et al.*, 2006c). Les sols qui se sont développés à partir de matériaux issus du Piton de la Fournaise sont plus riches en Cu, Cr et Ni que les sols développés à partir de matériaux issus du Piton des Neiges. Ainsi l'Andosol SR *(tableau 2)* est particulièrement riche en Cr, Cu et Ni (Cr = 475, Cu = 74,5, Ni = 301 mg.kg⁻¹) par rapport aux sols CO (Cr = 113, Cu = 89 et Ni = 88,5 mg.kg⁻¹) et LM (Cr = 106, Cu = 34 et Ni = 100 mg.kg⁻¹). Une tendance inverse a

été décrite pour Zn puisque CO et LM sont plus riches en Zn (respectivement 242 et 170 mg.kg⁻¹) que SR (Zn = 104 mg.kg⁻¹). Les concentrations en Cr, Cu, Ni et Zn des sols sélectionnés sont plus élevées que les concentrations moyennes des sols mondiaux dont les valeurs sont reportées dans le *tableau 1* (Doelsch *et al.*, 2006b). De plus ces sols présentent tous des teneurs en Ni supérieures à la valeur seuil réglementaire de la législation sur l'épandage des boues d'épuration.

Nous avons sélectionné deux déchets organiques qui possèdent des caractéristiques analytiques contrastées (tableau 3). Le lisier de porc (LP) est riche en carbone et azote ammoniacal. Le compost de déchet vert (CDV) est un produit de consistance solide et riche en carbone organique. Les deux déchets présentent un pH basique supérieur à 8. Les concentrations en ETM de ces deux déchets sont également contrastées. Les concentrations en Cu et Zn de CDV (79,5 et 220 mg.kg⁻¹) sont assez proches des valeurs moyennes obtenues à partir de trente composts (Geneviniet Adani, 1997) échantillonnés auprès de producteurs industriels européens: 130 and 251 mg.kg⁻¹. Par contre pour Cr et Ni, les concentrations de CDV (60,8 et 54,7 mg,kg-1) sont deux fois supérieures à celles mesurées dans les composts européens (28 et 29 mg.kg-1). Ces teneurs élevées s'expliquent par la présence de particules de sol riches en ETM qui restent liées aux végétaux pendant le processus de compostage (Payet et al., 2008; Veekenet Hamelers, 2002). Pour LP, les concentrations en Cr et Ni sont faibles (<16 mg.kg-1) alors qu'elles sont très fortes en Cu et Zn (≈1 150 mg.kg⁻¹).

Des concentrations élevées en Cu et Zn dans les lisiers de porc sont couramment décrites dans la littérature scientifique. Cu et Zn sont intégrés dans l'alimentation porcine. Ce sont pour les porcs des oligo-éléments puisque Zn prévient la parakératose (affection cutanée) et les diarrhées et Cu est utilisé comme facteur de croissance (Jondreville *et al.*, 2002; Revy *et al.*, 2003). Jusqu'à 95 % des doses de Cu et Zn sont excrétés dans les fèces ce qui explique les concentrations élevées en Cu et Zn de LP.

Spéciation des ETM au sein des sols et des déchets

Les sols

L'étude de la spéciation des ETM, c'est-à-dire des formes sous lesquelles on trouve ces éléments (forme libre, liée plus ou moins intimement à la matrice organique ou minérale) dans ces sols, a été conduite en utilisant deux protocoles d'extraction chimique (Doelsch et al., 2008). Cela consiste à extraire avec des réactifs de force croissante les ETM contenus dans les phases solides des échantillons de sol. Ainsi sont caractérisées des fractions: échangeable, adsorbée, liée à la matière organique, liée à des oxyhydroxydes amorphes, liée à des oxyhydroxydes cristallisés et résiduelle. Quel que soit le protocole utilisé, nous avons montré que la fraction échangeable représente la plus

Tableau 2 : Caractéristiques des sols étudiés.

Table 2: Study soils properties.

	Nom	Altitude	Localisation	Précipitation	Température	Origine de la		C _{total}	N _{total}	Fe ₂ O ₃	
	(FAO)			annuelle annuelle moyenne mm moyenne °C		roche mère	pH _{eau}	%	%	%	
La Mare LM	Nitisol	60	Nord	1 460	23,9	Volcan Piton des Neiges	5,8	2,32	2,42	20,8	
Les Colimaçons CO	Andic cambisol	780	Ouest	1250	18,5	Volcan Piton des Neiges	4,7	3,9	3,85	21,4	
Ste-Rose SR	Silic andosol	450	Est	3460	23,2	Volcan Piton de la Fournaise	5,2	19,3	10,9	13,6	

Tableau 3: Caractéristiques des déchets organiques étudiés. **Table 3:** Properties of the organic wastes.

		Lisier de porc	Compost	
Matière sèche	(%)	3,4	78,7	
pН		8,9	8,1	
C _{total}	(g.100g ⁻¹)	35,7	21,1	
N_{total}	(g.100g ⁻¹)	5,43	1,4	
Cr	(mg.kg ⁻¹)	9,6	60,8	
Cu	(mg.kg ⁻¹)	1140	79,5	
Ni	(mg.kg ⁻¹)	15,8	54,7	
Zn	(mg.kg ⁻¹)	1150	220	

petite fraction des ETM étudiés (Cr, Cu, Ni et Zn) et que la fraction résiduelle est la plus importante (Doelsch et al., 2008).

Dans un second temps, nous nous sommes focalisés sur l'identification des phases minérales porteuses de Cr et Ni dans l'andosol en utilisant des techniques spectroscopiques basées sur l'interaction entre les rayons X et la matière (XAS = X-ray absorption spectroscopy). Il ressort de notre étude que 60 % du chrome se trouve dans les minéraux primaires (olivines) c'est-à-dire des minéraux initialement présents dans la roche à partir de laquelle l'andosol s'est formé (Doelsch et al., 2006a). L'altération de ces phases primaires a conduit à la formation de différents minéraux de type oxyhydroxydes qui représentent 21 % du chrome total. Enfin nous avons montré que 13 % du Cr total est lié à la matière organique (figure 1).

L'une des particularités des Andosols réside dans la présence en abondance d'aluminosilicates cristallisés à très courte distance, communément appelés « imogolite » et « allophane » dont la taille varie de quelques nanomètres à 100 nm. La structure de ces « nano-minéraux » leur confère de très grandes surfaces spécifiques (jusqu'à 700 m²/g) ainsi que de fortes capacités d'échanges cationique et anionique. Ces propriétés expliquent leur important potentiel d'adsorption des espèces chargées présentes dans les sols que ce soit la matière organique du sol ou des métaux lourds. Pour le nickel, nous avons montré que la quasi-totalité (76 %) de cet élément est lié aux imogolites (Levard et al., 2007). Ces nanotubes d'aluminium et de silicium présentent des lacunes dans lesquelles vient s'insérer le nickel (figure 2).

L'ensemble des résultats qui concernent la spéciation des ETM dans les sols est cohérent quelle que soit la méthode utilisée (extraction chimique séquentielle ou techniques spectroscopiques). En effet, ils permettent de montrer que malgré les concentrations élevées en ETM des sols réunionnais, les ETM ne sont pas ou peu mobiles.

Les déchets

Nous avons également étudié la spéciation de Cu et Zn au sein d'un lisier de porc en utilisant une méthode d'extraction chimique ainsi qu'un protocole de séparation granulométrique couplée à une méthode spectroscopique (XAS). Tout d'abord, 75 % de Zn et 78 % de Cu se retrouvent dans la fraction dont les éléments ont une taille comprise entre 0,45 µm et 20 µm. Cette approche a également permis de calculer que 40 % de Zn était lié à la matière organique, 39 % sous forme d'hydroxyde de Zn et 20 % sous forme de sulfures. Cette dernière forme est pour

Al ₂ O ₃	SiO ₂	Mn	Cr	Cu	Ni	Zn	Minéralogie
25,6	31,1	2690	106	34	100	170	halloysite, goethite, magnétite, hématite, ilménite, gibbsite, feldspath
29,8	18,8	3420	113	89	88.5	242	gibbsite, halloysite, magnétite, hématite, ilménite, quartz
11,2	16	1300	475	74.5	301	104	allophane/imogolite, smectite, gibbsite, magnétite, hématite, ilménite, feldspath, quartz

la première fois à notre connaissance mise en évidence dans les lisiers de porc (Legros et al., 2010b). Pour Cu, l'étude des spectres indique qu'il est très majoritairement sous la forme de sulfure de cuivre (Cu_2S) avec un degré d'oxydation +1 (Legros et al., 2010a).

La présence de ces formes minérales inorganiques peut s'expliquer par leur précipitation en raison des conditions anoxiques qui règnent dans une fosse à lisier (Eh =-150 à -500 mV, pH = 8) et/ou par l'intervention de bactéries sulfatoréductrices qui ont la propriété de faire précipiter par exemple des sulfures de zinc. La solubilité des sulfides de cuivre est très faible et principalement gouvernée par le pH du milieu et non par les conditions d'oxydo-réduction. Ainsi, l'accumulation de cuivre qui a été observée sur des sols cultivés suite à l'épandage de lisier de porc peut s'expliquer par la très faible solubilité de la phase porteuse du Cu (Cu₂S). Les trois formes de Zn décrites dans le lisier de porc (Zn lié à la matière organique, sphalérite et hydroxyde de Zn) sont toutes potentiellement solubles dans un environnement de surface (milieu aérobie et pH compris entre 5 et 8).

Dans le cadre d'une étude conduite avec la MVAD (Payet et al., 2008), nous avons montré que les concentrations en ETM des composts de déchet vert de La Réunion pouvaient s'expliquer par la présence de résidus de terre « collés » sur les végétaux (la proportion de métaux apportés par les seuls végétaux est trop faible pour expliquer les fortes concentrations mesurées dans les composts). En effet, il suffit de 3 % de terre en volume pour expliquer les fortes teneurs en Cr et Ni mesurées dans les composts réunionnais. Autrement dit, la spéciation des ETM des composts est identique à celle des sols que nous avons étudiés.

Incubations des couples sols/déchets

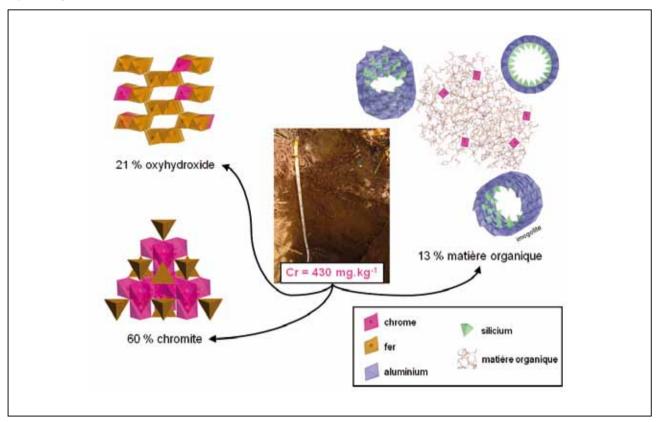
Des incubations de six couples sol/déchet (CO, LM et SR et LP, CDV) ont été conduites à 28 °C avec des apports de déchets calculés de manière à correspondre à des épandages contrastés de 350 et 1000 kgN/ha (Doelsch *et al.*, 2010). Un suivi de l'évolution du pH et de la conductivité électrique (CE) a été effectué pendant les incubations ainsi que des mesures de la minéralisation du carbone. Les deux déchets présentent des cinétiques de minéralisation très différentes, le compost riche en molécules humifiées est peu minéralisable par rapport au lisier de porc. En revanche, et ce résultat est plus inattendu, les trois sols présentent des réactivités (pH, CE) et des coefficients de minéralisation différents. En effet, les résultats permettent de penser que les constituants amorphes (imogolite, allophane) de l'andosol créent une protection d'une fraction de la matière organique vis-à-vis des microorganismes.

Au cours de ces incubations, nous avons également mesuré à t = 0, 14 et 28 jours la fraction échangeable de Cu, Cr, Ni et Zn (Doelsch et al., 2010). Malgré des évolutions importantes des propriétés physico-chimiques (acidification et augmentation de la salinité), nous n'avons pas détecté d'augmentation de la fraction échangeable des ETM au cours des incubations. Autrement dit, la minéralisation de la MO des déchets organiques ne se traduit pas par le relargage d'une quantité d'ETM significative, ou, si ce phénomène a lieu, les ETM sont rapidement piégés par les phases minérales ou organiques présentent dans le sol.

D'un point de vue statique, l'incorporation de déchet de type compost ou lisier de porc ne se traduit pas par une augmentation de la fraction échangeable des ETM.

Figure 1: Schéma de la spéciation du chrome dans un andosol de La Réunion.

Figure 1: Speciation scheme of Cr in an Andosol from La Réunion.



Volet transfert-colonne de sol

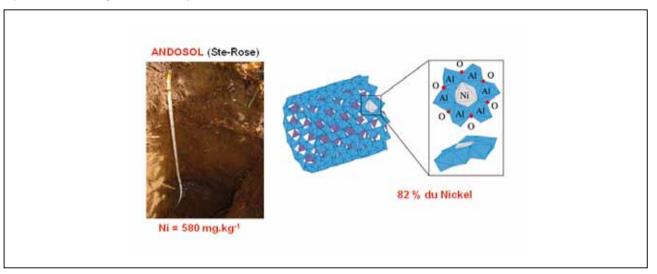
Dispositif expérimental

Le dispositif se compose de trois colonnes de 110 cm de haut et de 37,5 cm de diamètre. A leur base, une plaque en plexiglas présente une légère pente qui dirige l'eau vers un exutoire percé dans la plaque. Un pluviomètre à augets (ARG 100, Campbell Sci.) a été placé en bas de chaque colonne afin de mesurer le débit de drainage. Pour la reconstitution des horizons du sol, nous avons choisi la technique du sol remanié avec reconstitution de chaque horizon du sol. Cette méthode permet le contrôle de l'humidité et de la densité du sol. Dans chacune des trois colonnes, nous avons reconstitué les deux horizons pédologiques (0-30 cm et 30-85 cm) que nous avions identifiés et prélevés sur le terrain. Pour mesurer les flux d'eau à différentes profondeurs dans les colonnes de sol, nous avons besoin de connaître conjointement: (i) l'état d'humidité du sol, (ii) le potentiel de l'eau et (iii) la conductivité hydraulique du sol. L'humidité du sol a été mesurée par des sondes TDR (Time Domain Reflectometry, CS616). Afin de mesurer le potentiel

matriciel de l'eau dans le sol, nous avons utilisé des microtensiomètres (micro-bougie poreuse SDEC reliée à un capillaire rempli d'eau dégazée au bout duquel est placé un capteur de pression). Pour chacune des profondeurs d'installation des sondes TDR et des micro-tensiomètres, dans chaque colonne, nous pouvons mesurer et enregistrer en continu les humidités et potentiels matriciels de l'eau dans le sol. Les stocks d'eau ont été alors calculés par intégration de l'humidité volumique θ entre deux profondeurs de sol. Les variations de stocks ont été calculées comme la différence entre le stock d'eau à l'instant t et le stock d'eau initial. Les flux d'eau ont été estimés par la loi classique de Darcy. Afin de compléter les termes du bilan hydrique, nous avons mesuré également l'évaporation maximum des colonnes au cours de la période d'étude. Pour cela, nous disposions d'un bac rempli d'eau et présentant la même surface que les colonnes de sol. Le bilan hydrique d'une colonne entre deux dates a été alors calculé de la façon suivante: ΔS(mm) = Ap - Ev - Dr - Pr + ε , avec: Δ S, la variation de stock d'eau entre deux dates, Ap (mm), les apports d'eau entre les deux dates, Ev (mm), l'évaporation entre les deux dates, Dr (mm), le drainage entre les deux dates, Pr (mm), le prélèvement par préleveurs

Figure 2: Rôle des imogolites dans la spéciation du nickel dans un andosol de La Réunion.

Figure 2: Role of imogolites in the Ni speciation in an Andosol from La Réunion.



entre les deux dates et ϵ , le défaut de bilan entre les deux dates englobant l'ensemble des erreurs réalisées sur tous les autres termes. Pour prélever de manière non-destructive de l'eau à différentes profondeurs dans les colonnes, nous avons utilisé des préleveurs construits et testés spécifiquement pour les ETM (flacon recouvert de Bidim® laissant passer la solution qui est échantillonnée par un capillaire et une seringue). Pour chacune des colonnes, trois préleveurs ont été installés aux profondeurs suivantes: 17,5 cm, 30 cm et 55 cm, afin de prélever la solution du sol de manière homogène et réduire les biais de mesure. Nous avons également prélevé les eaux qui drainent à l'exutoire des colonnes (profondeur = 85 cm).

Modalités expérimentales et mesures chimiques

Afin d'exacerber une éventuelle influence du lisier sur la dynamique des ETM dans le sol, nous nous sommes basés sur un épandage de lisier de porc de 350 kg.ha-1 de N par apport. De plus, nous avons réalisé deux apports de lisier à deux mois d'intervalle: aux jours 9 et 72 de l'expérimentation. Les colonnes 1 et 2 ont recu du lisier de porc tandis que la colonne 3 a servi de témoin. Nous avons décidé de réaliser des apports d'eau conséquents, à savoir 100 mm deux fois par semaine et par colonne, ce qui correspond à un apport de 22,08 litres d'eau par colonne et par semaine. Ainsi, au bout de cing semaines d'apports, nous avons apporté l'équivalent d'une année entière soit 1 000 mm (par rapport à la pluviométrie de la zone d'étude). Les prélèvements de la solution du sol ont été réalisés six heures après chaque apport d'eau. Il y a quatre profondeurs de prélèvement par colonne (17,5 cm, 30 cm, 55 cm et 85 cm). Pour chaque niveau de prélèvement, il y a trois préleveurs répartis uniformément au sein de la colonne, excepté pour la profondeur 85 cm qui correspond à l'exutoire.

Pour l'ensemble des prélèvements, les échantillons ont été conservés dans des récipients hermétiques pour éviter au maximum le contact avec l'air après filtration à 0,45 μm. Immédiatement après le prélèvement sont mesurés pH, Eh, la température, O₂ dissous et CE. Les éléments majeurs sont analysés par ICP-OES (Varian Vista). Les nitrates (N-NO₃) et l'ammonium (N-NH₄) ont été quantifiés par colorimétrie à flux continu (Alliance Instruments). À partir de la première aliquote non acidifiée (a), ont été dosés les éléments Cl⁻, NO₃⁻, P et S. Les aliquotes acidifiées à l'acide chlorhydrique concentré (b) ont été utilisées d'une part pour analyser les éléments Ca, Mg, K, Na, Fe, Al, Mn et Si, et d'autre part pour analyser les éléments traces métalliques (Cu et Zn). Au terme de l'expérimentation, les 3 colonnes ont été démantelées et un échantillonnage des sols a été réalisé afin de mesurer les teneurs en C, P, S, Cu et Zn.

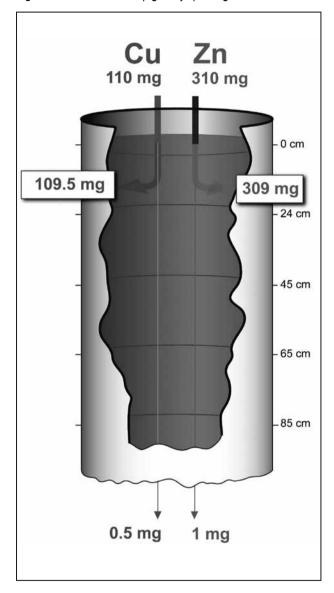
Résultats

En ce qui concerne la dynamique de transfert des éléments chimiques apportés en quantité non négligeable que sont Ca, K, P, Cu et Zn (avec respectivement 5,5 %, 7,9 %, 7,3 %, 17 % et 9 % du stock initial dans les 15 premiers centimètres du sol), nous pouvons noter des différences significatives.

Contrairement aux nitrates, par exemple, qui migrent progressivement dans les colonnes de sol ayant reçu du lisier, les analyses des solutions du sol et leur cumul sur de grandes périodes n'ont pas montré de flux de Cu et de Zn significatifs à la base des colonnes ni même aux profondeurs intermédiaires à l'intérieur des colonnes. La figure 3 montre l'accumulation en

Figure 3: Bilan massique de l'épandage de lisier (Cu = 1800 mg.kg⁻¹ et Zn = 5100 mg.kg⁻¹) de porc sur un Nitisol (LM).

Figure 3: Mass balance of pig slurry spreding on a Nitisol.



cuivre et zinc dans les colonnes de sol en fin d'expérimentation. Cu et Zn n'ont donc pas migré en profondeur et sont restés en surface des colonnes. Concernant Pb, Cd, Cr et Ni, nous n'observons aucune différence entre les colonnes ayant reçu le lisier et la colonne témoin.

Un bilan de masse réalisé au terme de l'expérimentation en colonnes montre que 100 % de Cu et Zn apportés par le lisier sont immobilisés dans les dix premiers centimètres de sol. Autrement dit, ils ne sont pas entraînés malgré l'important lessivage auquel ont été soumises les colonnes de sol (équivalent de 2 saisons des pluies).

Volet étude in situ

L'objectif de ce dernier volet est d'évaluer les risques de pollution d'un système eau-sol-plante tropical par Cu et Zn associés à l'épandage de lisier. Le site expérimental sélectionné se situe aux Colimacons (CO) dans les hauts de l'Ouest de La Réunion (Legros, 2008). La parcelle cultivée est divisée en deux parties afin d'y appliquer deux traitements: le premier traitement avec apport de lisier et le deuxième traitement sans apport de lisier (parcelle témoin). Entre 2001 et fin 2007, la quantité totale de lisier de porc apportée sur la parcelle est de 9 400 litres pour 589 m², soit environ 16 l.m⁻². En tenant compte des concentrations en Zn et Cu des lisiers, ceci représente un apport de 6 ± 6 kg.ha⁻¹ de Cu et 10 ± 11 kg.ha⁻¹ de Zn (figure 4). Les parcelles (Lisier et Témoin) sont équipées afin de pouvoir quantifier en continu le bilan hydrique (dispositif comparable à celui décrit pour les colonnes de sol). Le prélèvement de solution de sol, une fois par semaine au cours de deux saisons des pluies (2006 et 2007, 120 jours chacune), a permis d'évaluer les flux d'éléments drainés à 60 cm de profondeur.

Au terme des deux saisons des pluies, un échantillonnage du couvert végétal (traînasse *Stenotaphrum dimidiatum*) des deux parcelles a été réalisé afin de quantifier le prélèvement de Cu et Zn par les plantes. Il n'y a pas de différence significative entre les concentrations en Zn des plantes sur la parcelle Lisier et celles de la parcelle Témoin. Le prélèvement de Zn par le couvert végétal est inférieur à la limite de détection. En revanche, la concentration des plantes en Cu sur la parcelle Lisier est significativement supérieure à celle de la parcelle Témoin (*figure 4*). Ce prélèvement (0.005 kg.ha⁻¹) demeure cependant très faible devant l'apport de 6 kg.ha⁻¹ de Cu par les épandages de lisier de porc.

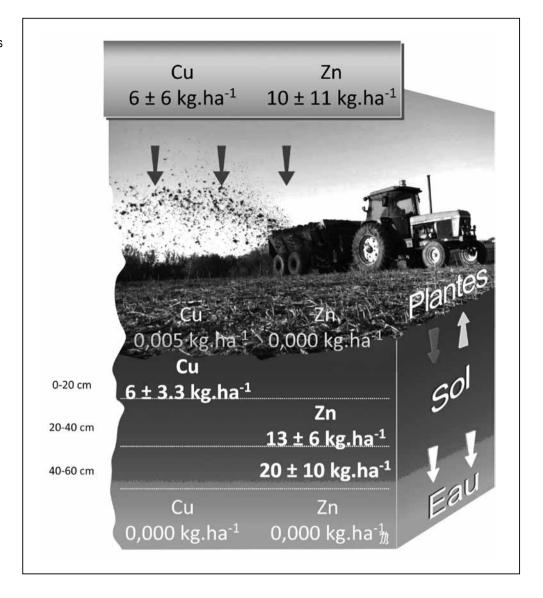
La comparaison des concentrations en Cu et Zn du sol de la parcelle Lisier par rapport à celles de la parcelle Témoin a permis de montrer une augmentation significative de la concentration en Cu entre 0 et 20 cm et en Zn entre 20 et 60 cm suite aux épandages de lisier de porc. Ceci suggère que Cu et Zn s'accumulent dans le sol.

Les campagnes de mesures pour la modélisation des flux d'eau et de Cu et Zn ont été réalisées au cours de deux saisons des pluies. La modélisation des flux d'eau est satisfaisante pour les deux parcelles (défaut de bilan inférieur à 1 %). Ceci nous a permis de calculer les flux de Cu et Zn à 60 cm de profondeur et d'observer que ces flux sont équivalents sur la parcelle Témoin et la parcelle Lisier. Il n'y a donc pas de flux de Cu et Zn provenant du lisier de porc à 60 cm de profondeur.

Ainsi, si l'on considère les résultats obtenus sur l'ensemble du système eau-sol-plante, on peut conclure sur l'accumulation de Cu dans le sol entre 0 et 20 cm de profondeur. Ce comportement est très similaire à celui observé dans les systèmes tempérés. Dans le cas de Zn, il s'accumule entre 20 et 60 cm de profondeur. Ce résultat est différent de ce qui a été observé dans les systèmes

Figure 4: Répartition de Cu et Zn apportés par des épandages successifs de lisier de porc sur un cambisol andique (La Réunion).

Figure 4: Repartition of Cu and Zn inputs through successive pig slurry spreadings on an Andic Cambisol (La Réunion).



tempérés qui montrent en général l'accumulation de Zn la plus forte dans l'horizon de surface (0-20 cm).

Comme pour l'expérimentation en colonne de sol, les expérimentations *in situ* indiquent que l'épandage de lisier de porc se traduit par une accumulation de Cu et Zn dans les premiers centimètres du sol.

CONCLUSION

Implications pratiques

Malgré les concentrations élevées en ETM des sols de La Réunion, l'étude de leur spéciation montre qu'ils sont surtout présents sous des formes peu mobiles et peu disponibles. De plus ces éléments ne sont pas ou très peu mobilisés lors de l'application d'un déchet organique de type lisier de porc ou compost de déchet vert.

Les résultats de ce projet Gessol sont tout à fait concordants avec une étude réalisée sur les sols de la Communauté Intercommunale Réunion Est (CIREST), en perspective d'une demande de dérogation à la réglementation sur l'épandage des boues de stations d'épuration (Collin et Doelsch, 2010). Comme de nombreux sols agricoles, développés sur des matériaux volcaniques du Piton des Neiges et du Piton de la Fournaise, présentent des teneurs en nickel, chrome et cuivre supérieures aux valeurs seuils, l'épandage des boues ne peut donc être autorisé sur ce sols sans un contrôle de la mobilité et de la phytodisponibilité des ces ETM. Nous avons montré que la mobilité et la phytodisponibilité des éléments Cr, Ni et Cu sont faibles et qu'une demande de dérogation est donc envisageable.

Autrement dit, les concentrations élevées et naturelles en ETM des sols de la Réunion ne doivent pas constituer un frein à la mise en place du recyclage agricole de déchet organique.

Recommandations et limites éventuelles

Nous avons également montré au cours de ce projet que les ETM apportés avec le ou les déchets organiques (ici, le lisier de porc) s'accumulent dans les premiers centimètres de sol. Ceci pourrait à plus long terme affecter la production agricole en raison de problèmes liés à la phytotoxicité des ETM. Afin d'éviter ces éventuels problèmes, une réglementation sur l'épandage des lisiers de porcs (qui pourrait être proche de celle qui régit l'épandage des boues d'épuration) semble être utile.

BIBLIOGRAPHIE

- Chabalier P., Van de Kerchove V., et Saint Macary H., 2006 Guide de la fertilisation organique à La Réunion., (Montpellier, CIRAD), 302 p.
- Collin B., et Doelsch E., 2010 Impact of high natural soilborne heavy metal concentrations on the mobility and phytoavailability of these elements for sugarcane. Geoderma. 159, 452-458.
- Doelsch E., Basile-Doelsch I., Rose J., Masion A., Borschneck D., Hazemann J.L., SaintMacary H., et Bottero J.Y., 2006a New Combination of EXAFS Spectroscopy and Density Fractionation for the Speciation of Chromium within an Andosol. Environ. Sci. Technol. 40, 7602-7608.
- Doelsch E., Masion A., Moussard G., Chevassus-Rosset C., et Wojciechowicz O., 2010 - Impact of pig slurry and green waste compost application on heavy metal exchangeable fractions in tropical soils. Geoderma. 155, 390-400.
- Doelsch E., Moussard G., et Saint Macary H., 2008 Fractionation of tropical soilborne heavy metals - Comparison of two sequential extraction procedures. Geoderma. 143, 168-179.
- Doelsch E., Saint Macary H., et Van de Kerchove V., 2006b Sources of very high heavy metal content in soils of volcanic island, La Reunion J. Geochem. Explor. 88, 194-197.
- Doelsch E., Van de Kerchove V., et Saint Macary H., 2006c) Heavy metal content in soils of Reunion (Indian Ocean) Geoderma. 134, 119-134.
- FAO, 1998 World reference base for soil resources, Rome: Food and Agriculture Organization of the United Nations
- Genevini P.L., et Adani F., 1997 Heavy metal content in selected European commercial composts. Compost Sci. Util. 5, 31.
- Jondreville C., Revy P.S., Jaffrezic A., et Dourmad J.Y., 2002 Le cuivre dans l'alimentation du porc: oligo-élément essentiel, facteur de croissance et risque potentiel pour l'Homme et l'environnement. INRA Prod. Anim. 15, 147-165.
- Kabata-Pendias A., et Pendias H., 2001 Trace elements in soils and plants, 3rd edn, Boca Raton, Fla.: CRC Press
- Legros S., 2008 Evaluation multi-échelle de l'impact environnemental de l'épandage de lisier de porc sur un sol tropical, lle de La Réunion: spéciation et modélisation du comportement du cuivre et du zinc., Saint-Denis, Université de La Réunion. 236 p.
- Legros S., Chaurand P., Rose J., Masion A., Briois V., Ferrasse J.H., Saint Macary H., Bottero J.Y., et Doelsch E., 2010a - Investigation of Copper Speciation in Pig Slurry by a Multitechnique Approach. Environ. Sci. Technol. 44, 6926-6932.
- Legros S., Doelsch E., Masion A., Rose J., Borshneck D., Proux O., Hazemann J.L., Saint-Macary H., et Bottero J.Y., 2010b - Combining Size Fractionation, Scanning Electron Microscopy, and X-ray Absorption Spectroscopy to Probe Zinc Speciation in Pig Slurry. J. Environ. Qual. 39, 531-540.
- Levard C., Rose J., Masion A., Doelsch E., Basile-Doelsch I., et Bottero J.Y., 2007 - Role of natural nanoparticles, imogolite and allophane on the mobility of trace metals in soils from La Reunion island. Geochim. Cosmochim. Acta. 71, A564.
- Payet N., Moussard G., Van de Kerchove V., et Doelsch E., 2008 Composts de déchets verts urbains réunionnais: origine des concentrations élevées en Eléments Traces Métalliques (ETM) (Chambre d'Agriculture de La Réunion Cirad), 25 p.
- Revy P.S., Jondreville C., Dourmad J.Y., et Nys Y., 2003 Le zinc dans l'alimentation du porc: oligo-élément essentiel et risque potentiel pour l'environnement. INRA Prod. Anim. 16, 3-18.
- Veeken A., et Hamelers B., 2002 Sources of Cd, Cu, Pb and Zn in biowaste. Sci. Tot. Environ. 300, 87-98.