

Impact des industries métallurgiques sur les sols environnants : Importance de la stratégie d'échantillonnage

Sonia Pénilla*, Edit Fabiàn, François Bordas, Jean-Claude Bollinger
Laboratoire des Sciences de l'Eau et de l'Environnement (LSEE), Faculté des Sciences & Techniques,
123, avenue Albert Thomas, 87 060 Limoges (France)
tél : 05 55 45 75 89 ; fax : 05 55 45 74 59
* email: penilla_sonia@yahoo.fr

L'impact des activités de fonderie sur les sols environnant un site industriel a été évalué dans ce travail. Il s'agissait en priorité d'établir l'état de contamination métallique des sols, pouvant résulter des activités industrielles historiques et actuelles. Notre objectif était ensuite d'identifier l'origine des métaux (géologique ou anthropogène) et les risques environnementaux qu'ils pourraient induire (contamination des eaux souterraines et risque pour la santé humaine). Dans ce contexte, une stratégie d'échantillonnage appropriée a été développée, et le raisonnement suivi est explicité ici. Des cartographies de la pollution métallique ont été réalisées par SIG, et l'étude de la répartition spatiale des métaux a permis de mettre en évidence une pollution anthropique et historique des sols.

The assessment of metal pollution in soils around a metallurgical factory was the aim of the present paper. The main objectives were to identify the origin (geological or anthropogenic) of some metals and the environmental risks they could induce (ground water contamination and human health risk). A suitable sampling strategy was developed and all the tools used in this procedure were chosen according to European guidelines and recommendations. For soil analyses, ISO protocols were mainly adopted. Cartographies of metal contents were used to represent both the horizontal and vertical distribution of metals. The results highlighted an anthropic and historical pollution of top soils around the site. No significant vertical migration was observed for the metals typical of the present industrial activities so that no groundwater contamination is to be feared at the present time. However, groundwater analyses are needed to check the migration of the tracer from the past industrial activities. The sampling strategy developed seemed to be well suited to our context. However, there is no universal sampling procedure and each one must be "purpose-fit", i.e. developed according to clearly defined objectives.

Mots clés :
sols pollués; métaux; industries métallurgiques;
stratégie d'échantillonnage

INTRODUCTION

Les métaux se trouvent naturellement à l'état de traces dans l'environnement et dans les sols. Cependant, les activités historiques ou actuelles des industries métallurgiques ont conduit à la contamination des horizons supérieurs des sols environnants, en raison de l'émission dans l'atmosphère de particules riches en métaux. La présence de ces éléments dans les sols entraîne un risque de contamination des horizons profonds et par conséquent des eaux souterraines par l'intermédiaire de la percolation d'eau de pluie (mobilité), ainsi que la contamination des chaînes alimentaires (biodisponibilité). De nombreuses études (Baize et Tercé, 2002) ont mis en évidence une importante variabilité spatiale dans la distribution des métaux, selon la source de pollution (diffuse ou localisée) et la nature du rejet dans l'environnement (fumée, épandage...). Pour réaliser une évaluation appropriée des risques pour la santé humaine, une caractérisation et une quantification de l'état de pollution des sols sont nécessaires (Malherbe 2002). La mise en œuvre d'études appropriées sur l'impact d'une pollution métallique exige une approche raisonnée des prélèvements de sols, grâce à une stratégie d'échantillonnage qui doit être définie et adaptée en fonction des objectifs de l'étude. Beaucoup d'études ont été publiées sur la pollution métallique des sols, provoquée par des activités industrielles, mais peu d'entre elles ont décrit et discuté la méthodologie employée pour définir leur stratégie d'échantillonnage et son importance (Gomez Ariza et al. 2000, Sutherland et Tack 2000, Li et Thornton 2001). Cependant, plusieurs documents peuvent servir de référence pour aider à faire des choix. La norme ISO 10381-5 (2002) fournit par exemple des directives sur les stratégies de prélèvement et de traitement des échantillons. Le projet CEEM (2001) avait quant à lui pour objectif principal de systématiquement noter, étudier, évaluer et comparer les directives de prélèvement de sol utilisées dans chaque pays européen. Le but de cette étude était également de proposer des procédures opératoires standard qui pourraient être appliquées au niveau européen pour la surveillance des sols, les études de contaminations métalliques et l'évaluation des risques environnementaux.

Le travail présenté ici traite de la pollution des sols au voisinage d'un site métallurgique. Pour développer notre stratégie d'échantillonnage, nous avons décidé non pas de comparer plusieurs outils entre eux, mais de choisir, conformément aux recommandations du projet CEEM, les paramètres les plus adaptés à notre contexte et à nos objectifs qui étaient les suivants :

- définir dans un premier temps si les teneurs en métal total mesurées dans les sols sont d'origine naturelle ou dues à une contamination anthropique,
- s'il s'agit d'une contamination, est-elle historique ou provient-elle des activités industrielles actuelles ?,
- finalement, évaluer s'il existe une possibilité de migration verticale de la pollution, ce qui pourrait entraîner une contamination des eaux souterraines.

Les publications spécialisées qui visent à quantifier l'incertitude totale de telles données environnementales (par exemple Ramsey, 2004), ont mis en évidence qu'il est quasiment impossible d'éliminer, voire d'estimer, toutes les sources d'erreurs liées à l'échantillonnage et à la préparation des échantillons. Il conviendra donc d'interpréter les valeurs analytiques obtenues avec précaution, en ayant conscience des limites de fiabilité que l'on pourra apporter à ces valeurs.

MATERIELS ET METHODES

Description du site :

L'ensemble du projet dont une partie des résultats est présentée dans cet article est soumis à confidentialité. Les quatre métaux étudiés seront donc nommés M1, M2, M3 et M4.

Le site industriel est exploité depuis 1920 pour la métallurgie du métal M1. Le nouvel exploitant du site (racheté en 2000) a pour principale activité la production, par des procédés de fusion, d'alliages des métaux M2, M3 et M4. Les principales sources d'émission des polluants, historiques comme actuelles, étant localisées (cheminées), notre hypothèse initiale est une contamination des sols par dépôt atmosphérique.

Le site étudié est composé de trois zones différentes : des habitations, des forêts et des prairies ou parcelles agricoles (Fig. 1). Concernant la géologie, les échantillons localisés autour du site ainsi que la référence locale (définie ci-après) reposent sur deux principales roches mères : des gneiss et des granites.

Mise au point d'une stratégie d'échantillonnage (Fig. 1) :

La délimitation spatiale de la zone d'étude (diamètre maximum de 3 km) a été basée sur une étude de dispersion des polluants atmosphériques émis par les cheminées du site. Etant donné le mode de contamination principal (voie aérienne, émetteur proche) il a été décidé de faire un schéma d'échantillonnage systématique à maille carrée de 500 m de côté. Cet intervalle correspond à environ 30 points de prélèvements (échantillons simples), et constitue un compromis entre une couverture optimale de la zone d'étude et la faisabilité technique et financière.

Les horizons de surface ayant des propriétés différentes des horizons profonds et les polluants étant supposés se propager par dispersion atmosphérique, 2 profondeurs ont été collectées pour chaque point d'échantillonnage : 0-10 cm et 10-50 cm. Afin d'évaluer le fond pédogéochimique de la région, une référence locale a été prélevée dans une prairie naturelle, exempte de toute pollution historique connue et dont la nature du sol est proche des sols environnant le site industriel.

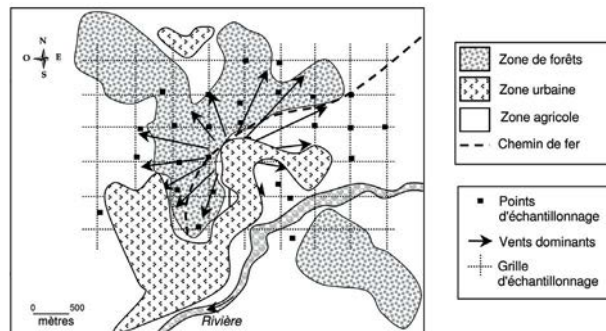


Figure 1 : Schéma récapitulatif de la stratégie d'échantillonnage développée

Caractérisation analytique des sols :

Avant analyse, tous les échantillons de sols ont été conditionnés et prétraités suivant la norme NF ISO 11464 (AFNOR, 1994). Les principales caractéristiques pédologiques étudiées sont la capacité d'échange cationique (CEC), le pH et la teneur en matière organique (AFNOR, 2004). Les teneurs totales en métaux ont été déterminées après minéralisation des échantillons de sols (minéralisation acide par four micro-ondes, modèle "CEM Mars 5"). Selon les concentrations, les métaux ont été déterminés avec un spectromètre d'absorption atomique par flamme (Varian SpectrAA 220, équipé d'une flamme air-acétylène et de la correction de bruit de fond par lampe deutérium) ou un spectromètre d'absorption atomique par four graphite (Varian SpectrAA 800 équipé de la correction d'effet Zeeman). Toutes les valeurs analytiques reportées dans cette étude tiennent compte d'une correction de masse vis-à-vis de l'humidité résiduelle du sol, de sorte que les unités sont exprimées en mg/kg de sol sec (ou ppm). La précision pour chaque valeur représente l'écart-type obtenu sur l'analyse de trois répliqués expérimentaux.

RESULTATS / DISCUSSION

Principales caractéristiques pédologiques

L'ensemble des résultats des analyses pédologiques (Tableau 1) met en évidence une bonne homogénéité des caractéristiques pédologiques des sols pour les deux profondeurs prélevées, quel que soit le point de prélèvement considéré. Cette homogénéité des propriétés pédologiques simplifiera la discussion sur les teneurs en métaux mesurées dans les sols. Les horizons de surface ont des propriétés différentes des horizons profonds ; ils sont notamment plus riches en matière organique et ont une CEC plus élevée.

		pH H ₂ O ±0,1	pH KCl ±0,1	CEC meq/100g ±0,2	% MO ±0,2
échantillon de sol 0-10 cm	min	4,2	3,7	7,3	2,8
	max	6,3	4,9	21,3	11,5
échantillon de sol 10-50 cm	min	4,6	3,7	4,5	0,5
	max	6,4	4,9	17,6	9,2
référence locale		6,4	4,4	12,2	4,4

Tableau 1 : Principales caractéristiques physico-chimiques des sols étudiés

Répartition spatiale des métaux dans les horizons de surface et en profondeur

La distribution horizontale des métaux (Fig. 2) permet dans un premier temps d'identifier rapidement s'il y a une contamination des sols environnant le site étudié, mais aussi d'évaluer l'étendue et l'intensité de cette contamination.

Traceurs de l'activité actuelle : M2, M3 et M4

Dans le cas des trois traceurs de l'activité actuelle, aucune relation n'est observée entre les teneurs en métaux mesurées dans les sols et la distance par rapport à la source d'émission (Fig. 2).

Pour le métal M4, les valeurs sont réparties de part et d'autre de la référence locale et sont homogènes pour les deux profondeurs échantillonnées. Ces résultats montrent d'une part la bonne représentativité de la référence locale choisie vis-à-vis des sols environnant le site industriel, mais aussi l'origine naturelle de ce métal.

Pour le métal M2, l'ensemble des valeurs sont faibles. Elles sont majoritairement inférieures à la référence locale et sont homogènes suivant la profondeur. M2 a donc une origine géogène, la référence surestimant légèrement les teneurs naturelles autour du site.

Pour le métal M3, les valeurs sont faibles mais supérieures à la référence locale.

Elles sont soit équilibrées entre les deux horizons, soit plus élevées dans les horizons plus profonds. Ce léger gradient (augmentation de la concentration avec la profondeur) et l'absence de relation entre les teneurs mesurées et la distance par rapport au site laissent penser que M3 a une origine naturelle. Dans ce cas, la référence choisie sous-estime le fond pédogéochimique de la zone échantillonnée.

Ces résultats montrent l'absence de contamination par les métaux M2, M3 et M4 (traceurs de l'activité actuelle). Les teneurs en métaux mesurées ont donc une origine géologique naturelle. Des différences entre les sols échantillonnés et la référence locale sont observées. Elles proviennent de variations dans la nature des sols et donc principalement dans la nature des formations géologiques desquels ils sont issus.

Traceur des activités passées : M1

On observe une relation marquée entre la concentration en métal M1 dans les sols et l'éloignement du site (Fig. 2). Dans un rayon de 600 m autour du site, les teneurs sont élevées (jusqu'à 250 ppm) et nettement supérieures à la référence locale. Au-delà de 600 m, les teneurs diminuent avec l'éloignement du site jusqu'à atteindre la référence locale. La nature de la roche mère ne pouvant expliquer de telles teneurs en métal M1, une situation de contamination anthropique est clairement observée. De plus, ces résultats illustrent que la référence locale apparaît représentative des teneurs naturelles en métal M1 des sols environnant le site industriel. La répartition des métaux entre les deux horizons montre un gradient de concentration suivant la profondeur; les concentrations totales diminuant avec l'augmentation de la profondeur. Cet écart entre les teneurs mesurées dans les deux profondeurs de sol diminue lorsque l'on s'éloigne du site, jusqu'à l'équilibre entre ces teneurs.

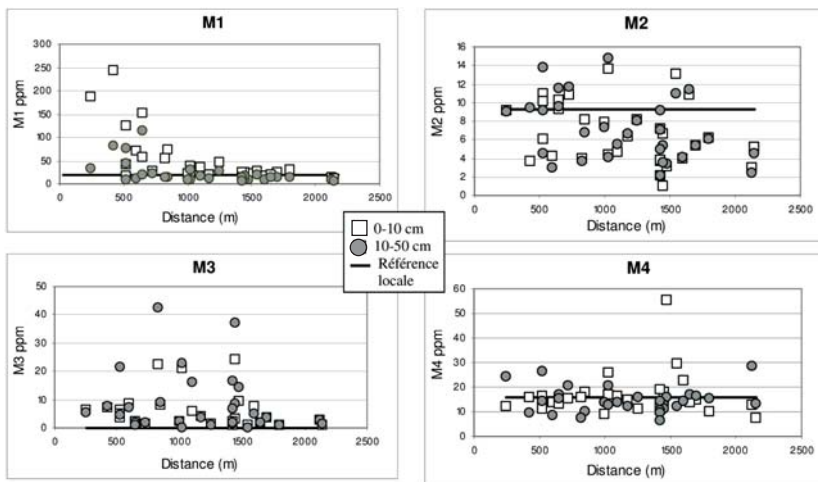
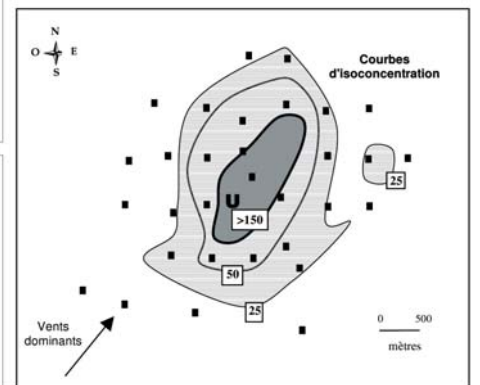


Figure 2 : Relation entre les teneurs en métaux M1 (traceur de l'activité passée du site) et M2-4 (traceurs de l'activité actuelle) et la distance au site U

Figure 3 : Répartition des teneurs en métal M1 (ppm) dans les sols de surface (0-10 cm) autour du site (U)



Ainsi, la source principale de M1 est due à des apports superficiels.

Afin de confirmer la source d'émission de cette contamination, les courbes d'isoconcentrations en métal M1 (25, 50 et > 150 ppm) sont présentées sur une carte simplifiée (Fig. 3). Cette carte met en évidence l'orientation nord/nord-est du panache de pollution, ce qui correspond aux vents dominants. Ces résultats confirment notre hypothèse précédente au sujet de la source de contamination du métal M1, qui résulte d'un dépôt atmosphérique par diffusion des fumées suivant les vents dominants.

Migration verticale des métaux et risque de contamination des eaux souterraines

Les teneurs en métaux M2, M3 et M4 mesurées dans les sols ont principalement une origine géologique naturelle. De plus, l'étude de la répartition des métaux M2, M3 et M4 entre les deux horizons, ne met en évidence aucune relation entre les teneurs en ces métaux et la profondeur. Il n'y a donc actuellement pas de contamination possible des eaux souterraines par ces trois métaux.

Pour M1, les teneurs mesurées en surface décroissent avec l'éloignement du site (de 250 à 40 ppm), tandis qu'à trois exceptions près les valeurs mesurées en profondeur sont équivalentes à la référence locale (≤ 40 ppm). Ces trois exceptions correspondent aux points les plus contaminés en surface. Une contamination par M1 des sols de surface apparaît nettement autour du site et en certains points (situés à moins de 600 m du site) cette contamination de surface a migré en profondeur. Etant donné que M1 a été produit et traité de façon intensive depuis le début du 20^e siècle, nous pouvons alors nous demander pourquoi cette contamination n'est pas plus étendue (en quantité, en distance et en profondeur). Du fait de la mobilité avérée de ce métal, ceci pourrait s'expliquer par une atténuation naturelle avec le temps par lessivage, exportation... Une migration verticale ayant été observée dans les sols à proximité du site, il serait nécessaire d'effectuer des analyses d'eaux souterraines avant de pouvoir conclure sur un risque potentiel de contamination des eaux.

CONCLUSION GENERALE

La répartition dans l'espace des métaux étudiés nous a permis d'aboutir aux conclusions suivantes :

- i) une contamination par le métal M1 apparaît nettement autour du site, et cette contamination est due aux activités industrielles passées ;
- ii) pour les taux de contamination les plus importants (distance au site ≤ 600 m) le métal M1 a migré en profondeur dans les sols ;
- iii) aucune contamination par les métaux M2, M3 et M4 n'est observée autour du site.

La stratégie d'échantillonnage développée dans cette étude s'est avérée adaptée à l'évaluation de la contamination des sols situés à proximité d'un site métallurgique dans le cas d'une pollution localisée et d'une dissémination des polluants métalliques par voie atmosphérique.

De plus, cette campagne d'échantillonnage aura permis de récolter des valeurs de référence représentant un état initial du site au moment de sa reprise par le nouvel exploitant. Ces données pourront également être comparées aux résultats d'investigations ultérieures, ce qui permettra d'identifier et d'évaluer les risques pour l'environnement ainsi que l'effet d'un usage continu du site sur la qualité des sols. Cela permettra également d'identifier les risques liés à la présence de métaux dans les sols en fonction de l'usage de ces sols (MATE, 2000).

Remerciements

Ces travaux s'inscrivent dans le cadre d'un programme de recherches financé par le Contrat de plan Etat - Région Limousin et par le Conseil Régional du Limousin, et coordonné par le LSEE. La contribution de Edith Fabian constitue son stage du DESS "Pollutions Chimiques et Environnement" de l'université d'Orsay (2004).

Bibliographie

- AFNOR (1994) : Evaluation de la qualité des sols, AFNOR, Paris.
- AFNOR (2004) : Evaluation de la qualité des sols, I, Méthodes d'analyse chimique, AFNOR, Paris.
- CEEM Project (2001) : Comparative evaluation of European methods for sampling and sample preparation of soils project description, *Sci Total Environ* 264, 1-204.
- Baize D, Tercé M. (2002) : Les éléments traces métalliques dans les sols, approches fonctionnelles et spatiales, Ed INRA, Paris.
- Gomez Ariza J.L., Giraldez I., Sanchez-Rodas D., Morales E. (2000) : Metal sequential extraction procedure optimized for heavily polluted and iron oxide rich sediments, *Anal Chim Acta* 414, 151-164.
- ISO (2002) : Soil Quality – Sampling, part 5 : Guidance on the procedure for investigation of urban and industrial sites with regard to soil contamination (ISO/DIS 10381-5).
- Li X. and Thornton I. (2001) : Chemical partitioning of trace and major elements in soils contaminated by mining and smelting activities, *Appl Geochem* 16, 1693-1706.
- Malherbe L. (2002) : Designing a contaminated soil sampling strategy for human health risk assessment, *Accred Qual Assur* 7, 189-194.
- MATE, INERIS, BRGM (2000) : Guide Gestion des sites pollués : Diagnostic approfondi - Evaluations détaillées des risques, BRGM, Orléans.
- Ramsey M.H. (2004) : Sampling the environment : Twelve key questions that need answers, *Geostandards and Geoanal Res* 28, 251-261.
- Sutherland R.A. and Tack F.M.G. (2000) : Metal phase associations in soils from an urban watershed, Honolulu, Hawaii, *Sci Total Environ* 256, 103-113.