

INTERNATIONAL SYMPOSIUM

Environmental health aspects of lead

**Die gesundheitlichen Aspekte
der Umweltverschmutzung durch Blei**

**Les problèmes sanitaires posés par le plomb
présent dans l'environnement**

TRANSPORT DU PLOMB DANS L'ENVIRONNEMENT

SERVANT J.

Laboratoire de Physique des Aérosols
et Echanges Atmosphériques
Université Paul Sabatier
TOULOUSE, FRANCE

Amsterdam, October 2 - 6, 1972

N40700

RESUME

On mesure en France au cours des dernières années, la teneur en plomb de l'air atmosphérique près du sol, des eaux de précipitation, des eaux de surface et des végétaux (bois).

On établit le bilan de la retombée de plomb sur la France (11 stations) de novembre 1971 à juin 1972. Il est égal à $0,66 \cdot 10^9 \text{ g/mois}^{-1}$ pour une pluviosité de 83 mm/mois^{-1} .

Dans la région Midi-Pyrénées, on discute l'origine naturelle du plomb dans les eaux fluviales (Garonne, Ariège, Hers) ; la teneur moyenne de mars 1971 à juin 1972 est comprise entre $6,7$ à $10,4 \cdot 10^{-6} \text{ g L}^{-1}$ pour la phase soluble. On dresse un bilan des apports et des pertes de plomb par unité de surface d'un sol.

SUMMARY

In France, during the last few years, the lead concentration is measured in air, in rain water, in surface water and in trees (wood).

From november 1971 to june 1972, the mean concentration of lead in rain water is equal at $14,5 \text{ g L}^{-1}$, the fall out over France is estimated at $0,66 \cdot 10^9 \text{ g/mois}^{-1}$.

In the Midi-Pyrénées region, the natural origin of lead in river water is discussed (Garonne, Ariège, Hers). From march 1971 to june 1972, the mean soluble concentration varies from $6,7$ to $10,4 \cdot 10^{-6} \text{ g L}^{-1}$. The balance of gains and losses of lead per unit of surface of the earth is drawn.

Le développement de l'ère industrielle s'accompagne de la dispersion dans l'environnement de matières diverses avec le risque d'une distorsion écologique à la surface du globe et d'une incidence sur la santé humaine.

Les métaux à l'état de traces en sont un exemple et parmi ceux-ci le plomb paraît être particulièrement important.

Son rejet dans l'atmosphère sous forme de fins aérosols entraîne sa dispersion à des distances considérables de son point d'émission. MUROZUMI et al. (1969) l'ont dosé dans les neiges du Groenland et de l'Antarctique, et, ont relié l'intensité du dépôt à celle de l'activité humaine. PATTERSON (1965) a indiqué aussi que la teneur moyenne en plomb d'un individu américain était cent fois supérieure à celle qu'elle serait dans le milieu naturel. Cette analyse discutée sur les conséquences sur la santé humaine, (TRUFFERT, 1972) a permis cependant de mettre en lumière les problèmes géochimiques à résoudre pour rendre compte du cycle d'un élément dans l'atmosphère, l'hydrosphère et la biosphère.

Dans la présente communication, on se propose d'analyser en France, loin des centres de pollution, dans quelle mesure l'augmentation de la concentration en plomb de l'air atmosphérique et des eaux de précipitation rend compte d'une augmentation de celle des eaux de surface. Selon TATSUMOTO et PATTERSON (1963) dans l'hémisphère nord cette teneur serait passée de $0,5 \cdot 10^{-6}$ (au cours du pleistocène) à $5 \cdot 10^{-6} \text{ g l}^{-1}$ (de nos jours). On mesure aussi les variations naturelles de la teneur en plomb des végétaux au cours des 60 dernières années et de celles de quelques échantillons vieux de plusieurs siècles (10e au 16e siècle).

1. ATMOSPHERE : AIR PRES DU SOL

Les résultats obtenus dans différents sites sont donnés dans le tableau I.

Les teneurs dans les sites urbains, de l'ordre de 10^{-6} g m^{-3} sont comparables à celles données pour Paris, (TRUFFERT, 1972), et supérieures de deux ordres de grandeur à celles des autres sites.

En supposant que la teneur en plomb des aérosols atmosphériques est 50 ppm, comparable à celle des argiles de la région du Sud-Ouest et des poussières sahariennes 57 ppm ($351 \cdot 10^{-3} \text{ g}$ récolté sur un champ de neige des Pyrénées en février 1972), la

		Date	Teneur (10^{-6} g m $^{-3}$)
Site urbain	. région parisienne (Gif-sur-Yvette)	Juin 1968	1,4
	. région toulousaine (Toulouse)	Janv.Sept.68	0,01 - 1,0
Site marin	. Bretagne (Roscoff)	Juin 1965	0,02
		Août 1965	0,06
		Septembre 1966	0,02
Site montagneux	. Suisse (Jungefraujoch, 3500m)	Juillet 1967	0,03
		Septembre 1967	0,02
Site de campagne	région toulousaine (30 km Toulouse, direction Est)	Avril-Juin 71	0,02 - 0,05

TABLEAU I : Concentration en plomb de l'air atmosphérique, près du sol, dans différents sites (moyennes mensuelles).

teneur naturelle de l'air est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-10}$ g m $^{-3}$ ($10 \cdot 10^{-6}$ g m $^{-3}$, 50 ppm) soit 100 fois inférieure à celle qui existe actuellement dans des sites éloignés des zones urbaines ou industrielles.

II. EAUX DES PRECIPITATIONS

Le niveau en plomb des eaux de pluie recueillies entre novembre 1971 et juin 1972 est donné dans le tableau II. Les points de prélèvements sont situés en dehors des agglomérations et à plus de 20 mètres d'une route où la circulation journalière est inférieure à quelques dizaines de voitures.

Les valeurs observées d'une station à une autre sont comprises entre $7,2 \cdot 10^{-6}$ gL $^{-1}$ à Moulis et $31,2 \cdot 10^{-6}$ gL $^{-1}$ à Saclay exceptées celles de Noyelles-Godault qui atteignent $4350 \cdot 10^{-6}$ gL $^{-1}$. Ces fortes valeurs semblent indiquer des sources locales importantes, en particulier, l'autoroute Paris-Lille est située à 2 kilomètres environ à l'Ouest et des industries diverses sont implantées dans la région. Dans cette station, le dépôt en l'absence de précipitations humides, appelé dépôt sec, peut être important. Ainsi à Toulouse, à 4 kilomètres du centre de la ville,

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1971 Nov.	16,5	48,3	19,4	18,2	7,5	16,3		32,4	21,5	15,4	
1971 Déc.	7,5		8,5	2,1	8,0	24,7				15,2	
1972 Janv.	5,5	50,2	5,7	10,4	8,5	45,5				8,7	
1972 Fév.	5,1	2250	12,1	8,5	8,5	17,5	17,3			10,0	6,5
1972 Mars	15,2	2250	38,5	12,0	10,2	22,5	11,5			7,5	5,7
1972 Avril		4350	6,1	5,5	23,4	12,2	13,1			27,6	12,2
1972 Mai	32,6	1950	19,3	12,0	10,5	10,3	10,0	30,1	35,0	8,4	4,3
Teneur 10^{-6} g L^{-1}	13,7	1806	14,2	9,6	10,9	21,1	10,2	31,2	28,2	13,3	7,2
Teneur moyenne 10^{-6} g L^{-1}	14,5										

TABLEAU II : Concentration en plomb des eaux de pluie.

1. Maslives (Loire et Cher, 250 h)
2. Noyelles-Godault (Nord, 5200 h)
3. Rostrenen (Côtes du Nord, 2950 h)
4. Rouvres la Chétive (Vosges, 423h)
5. Moulis (Ariège, 1013 h)
6. Vieux-Boucau (Landes, 1500 h)
7. Millau (Aveyron, 23442 h)
8. Saclay (Essonne, 570 h)
9. Fontenay-le-Vicomte (Essonne, 326 h)
10. Toulouse, (Haute-Garonne, 400000 h)
11. Rosans (Hautes-Alpes, 370 h).

dans l'enceinte du parc de l'Université Paul Sabatier, la fraction de plomb fixée sur les parois du pluviomètre, probablement le dépôt sec, est égale à 70% de la quantité dissoute dans l'eau de pluie. On peut supposer que ce phénomène est d'autant moins important que l'air près du sol est moins riche en plomb.

Pour une pluviosité de 1000 mm, la valeur moyenne $14,5 \cdot 10^{-6} \text{ g L}^{-1}$ correspond à une retombée sur la France de

$8,0 \cdot 10^9 \text{ an}^{-1} \text{ g de Pb}$. En 1970, la consommation des essences, $16,7 \cdot 10^9 \text{ L}$ et $0,64 \text{ g(Pb) L}^{-1}$, conduisait à une injection de $10,7 \cdot 10^9 \text{ g de Pb}$ dans l'atmosphère ou $8,0 \cdot 10^9 \text{ g}$ en tenant compte de la fixation de 25 % du plomb dans les moteurs et tuyaux d'échappement des véhicules. Cette valeur est identique à celle donnée par l'analyse des eaux de pluie, mais évidemment la concordance parfaite est fortuite.

De même que la teneur de l'air près du sol, la teneur des eaux de précipitation doit être supérieure de deux ordres de grandeur à celle qui a prévalu avant l'ère industrielle.

III. EAUX DE SURFACE

La teneur en plomb soluble des eaux de surface a été mesurée depuis mars 1971, tableau III.

	Lieu, date et nombre de prélèvements	Teneur (10^{-6} g L^{-1})		
		Moyenne	Maximum	Minimum
<u>Cours d'eau</u>				
Garonne	{ 4 km amont Toulouse (23)	10,4	5,5	22,0
Ariège	{ 1971-1972 (25)	7,8	3,5	17,5
Hers	Castanet, 71-72 (27)	6,7	1,6	14,1
Adours	Aire/s/Adour, 71-72 (7)	8,3		
Seine	Paris, 1971 (1)	7,5		
Loire	12 km amont Blois, 71 (2)	5,5		
Cosson	Chambord, 1971, (2)	14,5		
<u>Lacs</u>				
Cammazes	Cammazes, 1971, (2)	18,5		
Moullis	Moullis, 1972, (1)	3,2		
Soustons	Vieux-Boucau, 1972 (2)	24,5		
Pinsolles	Vieux-Boucau, 1972, (1)	12,0		

TABLEAU III. - Teneur en plomb soluble des eaux de surface du mois de mars 1971 au mois de juin 1972
(Les lacs sont situés dans la région Midi-Pyrénées).

La teneur des eaux de surface varie entre 1,6 et $24,5 \cdot 10^{-6} \text{ gL}^{-1}$. Celle des cours d'eau de la région Midi-Pyrénées (Garonne, Ariège, Hers) est comprise en moyenne entre 6,7 et $10,4 \cdot 10^{-6} \text{ gL}^{-1}$ et pourrait s'expliquer par l'apport atmosphérique $13,9 \cdot 10^{-6} \text{ gL}^{-1}$ dans cette région.

En fait, le plomb soluble contenu dans les eaux de pluie est retenu fortement par la couche superficielle des sols. Une colonne de terre d'un volume égal à $5,5 \text{ cm}^3$ ($L = 11 \text{ cm}$, $S = 0,5 \text{ cm}^2$) retient à 90% le plomb soluble d'une solution de $\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$ versée lentement sur cette colonne, la quantité de plomb de la solution variant de 114 à $1256 \cdot 10^{-6} \text{ g}$. Ce dernier chiffre correspond à la retombée totale de plomb pendant 2000 ans au rythme actuel.

En outre, ce plomb soluble des eaux fluviales est accompagné d'une fraction insoluble très riche en plomb que l'on trouve aussi en agitant de la terre arable dans de l'eau déionisée, tableau IV.

Cours d'eau : Garonne, Ariège Hers () Nbre prélèv.	Poids de matière (10^{-3} g^{-1})		Teneur en Pb (ppm)		Teneur en Pg (10^{-6} gL^{-1})	
	Soluble	Insol.	Soluble	Insol.	Soluble	Insol.
Moyenne (6)	174	36	43	183	7,5	6,6
Terre arable Surface - 20cm () Nbre échantil.						
Moyenne (3)	300	284	558	488	127	155

TABLEAU IV : Teneur en plomb, région Midi-Pyrénées, des fractions solubles ($\phi < 0,45 \mu$) et insoluble des eaux fluviales superficielles et des solutions de terre de surface (100 g de terre, 1000 cc d'eau, agitation 16h, décantation 2 jours).

L'expérience de laboratoire montre que la fraction de plomb soluble est accompagnée d'une fraction insoluble équivalente portée par les particules les plus fines des minéraux argileux. Cette fraction insoluble est 20 fois plus riche en plomb que les sols et sa présence est indéniable dans les trois cours d'eau que nous avons analysés. MARTIN et al. (1970) notent des teneurs comparables en Pb, 113, 381 et 105 ppm dans la

matière en suspension dans du Mékong, du Congo et de l'Amazone, fleuves peu pollués à priori.

Il apparaît donc très probable, dans une région où par ailleurs l'industrie chimique est peu développée que le plomb présent dans les eaux de surface est en majeure partie d'origine naturelle.

IV. VEGETAUX

La teneur en plomb d'échantillons de bois, d'âges récents prélevés par l'auteur et de bois vieux de plusieurs siècles sont donnés dans le tableau V.

		Age (ans)	Teneur (10^{-6} g^{-1})
Bois récents (région toulousaine)	Saulé	0 - 5	0,47
		15 - 20	0,57
		30 - 35	0,81
		45 - 50	1,6
		60 - 63	1,8
	Pin	0 - 5	0,71
		15 - 20	1,1
		25 - 30	2,2
		35 - 40	0,63
		45 - 50	1,2
		55 - 60	4,1
		63 - 67	0,85
	Platane Orme Saulé Chêne Noyer	0 - 3	0,18
			0,58
			0,42
			0,58
			0,73
Bois anciens (Normandie)	Nature non identifiée	13e siècle	< 0,07
		10e siècle	0,24
		16e siècle	0,73
		13e siècle	14,3
		13e siècle	0,22

TABLEAU V : Teneur en plomb de bois sec (poids des échantillons 10 à 30 grammes).

L'ensemble des résultats pour les bois récents montre qu'il n'y a apparemment pas d'enrichissement notable ces toutes dernières années. La teneur moyenne est 1,1 ppm.

On remarque que pour un arbre donné (saule ou pin), la teneur en plomb est variable d'un facteur 6 au cours d'une période de soixante ans. Le bois formé dans les années 1900 est parfois plus riche que le bois de l'année 1970. On mesure ainsi l'importance des variations dues à des causes naturelles.

La comparaison à des échantillons historiques est délicate puisqu'on observe pour des bois anciens des teneurs ou très faibles $< 0,07$ ppm ou très fortes 14 ppm. Dans ce dernier cas, s'il y a contamination, nous avons vérifié qu'elle n'était pas en surface mais au sein même de la masse de l'échantillon.

V. BILAN DE LA CIRCULATION DU PLOMB (région Midi-Pyrénées).

L'ensemble des données mentionnées aux paragraphes précédents permet de dresser un bilan pour l'année 1971-1972.

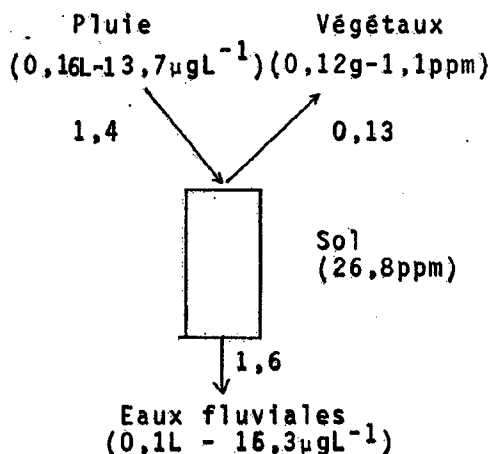


FIGURE : Bilan annuel (1971-1972) des apports et pertes de plomb d'une colonne de sol, d'une surface égale à 1 cm². (Unité : 10⁻⁶ g an⁻¹).

La teneur des eaux fluviales tient compte de la partie insoluble des eaux de surface. Cette partie riche en Pb paraît donc fine et très probablement perdue pour les continents et gagnée par les océans. Les végétaux sont considérés être du bois et la valeur de production, 0,12 gcm⁻²an⁻¹, est tirée de BOWEN (1966).

Ce bilan fait apparaître que :

- l'apport atmosphérique équilibre la perte par les eaux fluviales. Cette perte, par exemple, correspond à l'épuisement du plomb d'une colonne de 30 centimètres de hauteur (50g-26,8ppm) en mille ans ;

- l'apport atmosphérique est dix fois supérieur à la quantité fixée par les végétaux. Si le plomb d'origine atmosphérique se dépose sur le sol, le risque de pollution des végétaux est faible puisque les racines plongent dans un milieu riche en plomb. Par contre, s'il est fixé directement sur les parties aériennes des plantes, le risque est plus important et pour un dépôt total, mais c'est là une hypothèse peu probable, la teneur moyenne de 1,1 ppm serait portée à 11 ppm. Ce phénomène a été constaté auprès des autoroutes, BOVAY (1970).

CONCLUSION

Au-dessus de la France, loin des centres urbains, la teneur en plomb de l'air près du sol et des eaux de précipitation est supérieure d'un facteur 100 à la teneur naturelle. La fraction éliminée par les pluies est vraisemblablement fixée par les sols. Ce dépôt augmentera lentement, 1 % par an, la teneur de la couche superficielle des sols (0-30 ans).

La contamination des végétaux se ferait donc préférentiellement par voie aérienne et pourrait atteindre un facteur 10. Le dépôt sur la végétation par voie aérienne est par ailleurs pratiquement et théoriquement difficile à évaluer.

Dans la région midi-pyrénées, une quantité de plomb sensiblement équivalente au dépôt atmosphérique est transportée par les fleuves mais ce plomb serait d'origine naturelle. Ce transport fluvial vers les grands fonds océaniques est cependant 30 fois supérieur à ce qu'il fût au cours du pleistocène dans l'hémisphère nord. Ainsi, le problème se pose de savoir si ce phénomène est limité au plomb, ou s'étend à d'autres métaux traces ou à l'ensemble des éléments et quelles en sont les causes profondes. Les travaux remarquables de PATTERSON laissent supposer que ce changement intéresse l'ensemble de l'hémisphère nord.

NOTE :

Les échantillons d'eau de pluie sont recueillis dans des pluviomètres en matière plastique pour éviter les contaminations de métaux.

Les déterminations de plomb sont effectuées par colorimétrie à la dithizone suivant les recommandations de CHARLOT (1966) et GILBERT (1964). Blanc = $0,25 \cdot 10^{-6}$ g (Pb), précision : $\pm 0,3 \cdot 10^{-6}$ g (Pb).

Les échantillons d'eau (1 litre) sont évaporés en 16 heures par reflux, contamination $\leq 0,8 \cdot 10^{-6}$ g (Pb).

Les échantillons de matière organique (bois) sont calcinés lentement à 450°C, par bond de 100°C par jour, avant tout traitement chimique.

REMERCIEMENTS :

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur FONTAN pour ses conseils et l'aide technique que j'ai trouvée dans son laboratoire au Centre de Physique Atomique de Toulouse, la Météorologie Nationale et MM. POITRAT et AURIOL, chefs de station à R o s t r e n e n e t M i l l a u , le Commissariat à l'Energie Atomique et M. NONET au Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay ; M. ANDRIEUX du Laboratoire souterrain, CNRS à Noulis ; Mme LEBOUTET du Centre de recherches archéologiques médiévales de l'Université de Caen et Madame DELAPART qui a effectué le travail de chimie analytique.

BIBLIOGRAPHIE

BOVAY E., 1970

"Les dépôts de Plomb sur la végétation le long des autoroutes"

"Essai d'affouragement de vaches laitières avec du foin souillé par le plomb"

Mitt. Lebensmitt. Hyg., 61, 303-321.

BOWEN H.J.M., 1966

"Trace elements in Biochemistry"

Ac. Press Inc. (London)

CHARLOT G., 1966

"Les méthodes de la chimie analytique"

5e Ed. Masson et Cie (Paris)

Mesures effectuées par CROZAT G., 1969

"Contribution à l'étude de la répartition verticale des éléments radioactifs à vie longue dans l'atmosphère"

Thèse de spécialité n° 819, Toulouse

GILBERT, T.W., 1964

in "Treatise on Analytical chemistry"

I.M. KOLTHOFF and P.J. ELVING (Eds) - Inters. Pu., New York,

II, Vol. 6, 69-175

MARTIN, J.M., KULBICKI G. and DE GROOT A.J., 1970

"Terrigenous supply of radioactive and stable elements"

Int. Symp. on Hydro. and Bio. Tokyo, 6-12 Septembre

MUROZUMI M., CHOW T.J. and PATTERSON C., 1969

"Chemical concentrations of pollutant lead aerosols, terrestrial dusts and sea salts in Greenland and Antarctic snow strata"

Geo. and Cosm. Acta, 33, 1247-1294

PATTERSON C., 1965

"Contaminated and natural lead environments of man"

Arch. Environ. Health, II, 344-360, Sept.

TATSUMOTO M. and PATTERSON C.C., 1963

"The concentration of common lead in sea water"

In Earth Sc. and Meteo. - J. Geiss and E.D. Goldberg (eds)

North Holland Pu. Co. Amsterdam, 4, 74-89.

TRUFFERT L., 1972

"La pollution saturnine"

Ann. Fal. Exp. Chim., n° 698, 51-104, Fév.-Mars.