

Pollution persistante des sols aux Antilles par des insecticides organochlorés : HCH et chlordécone encore pour des siècles ?

Yves-Marie Cabidoche⁽¹⁾, Philippe Cattan⁽²⁾, Claridge Clermont-Dauphin⁽³⁾, Sarra Gaspard⁽⁴⁾, Magalie Lesueur-Jannoyer⁽⁵⁾, Gladys Merciris-Loranger⁽⁶⁾

⁽¹⁾ INRA, UR135 Agropédoclimatique de la Zone Caraïbe, 97170 Petit-Bourg
cabidoch@antilles.inra.fr

⁽²⁾ CIRAD, Département PERSYST (Guadeloupe), 97130 Capesterre-Belle-Eau

⁽³⁾ INRA, UR135 Agropédoclimatique de la Zone Caraïbe, 97170 Petit-Bourg. Adresse actuelle : IRD, DRV-UR176 SOLUTIONS, Office of Science for Land Development, Bangkok 10900, Thailand

⁽⁴⁾ Université Antilles-Guyane, Equipe COVACHIMM, 97110 Pointe-à-Pitre

⁽⁵⁾ CIRAD, Département PERSYST (Martinique), 97285 Le Lamentin

⁽⁶⁾ Université Antilles-Guyane, Equipe DYNECAR, 97110 Pointe-à-Pitre

La lutte contre le charançon du bananier, *Cosmopolites sordidus*, s'est longuement appuyée sur des insecticides organochlorés aux Antilles françaises à la fin du siècle dernier :

- l'hexachlorocyclohexane (HCH), dont seul l'isomère γ est insecticide, a été appliqué à des doses massives, jusqu'à plus de 300 kg/ha/an d'HCH « technique » (mélange de 5 isomères dont 20% de γ), dans les années 60 à 70,

- la chlordécone (CLD), appliquée à 3 kg de matière active (MA)/ha/an, dans les insecticides étatsunien « Kepone » (1972-78) puis français « Curlone » (1982-93) titrant 5% de MA.

Au changement de siècle, plusieurs années après les derniers épandages, les eaux de sources, captées pour l'Adduction en Eau Potable dans les zones bananières se sont avérées contaminées, çà et là par l'HCH, et plus généralement par la CLD. Puis des contrôles douaniers ont révélé la présence de CLD dans des tubercules de patate douce ; une campagne de contrôle sur ignames et tarots a montré que plusieurs organes souterrains récoltés (OSR) étaient susceptibles d'être contaminés.

Des recherches ont été mises en œuvre d'urgence pour circonscrire les zones de sols pollués, et définir l'exposition et la contamination des organismes au fil des chaînes alimentaires, pendant que les médecins entamaient l'épidémiologie humaine et l'analyse de l'éventuelle toxicité pour l'homme des contaminations chroniques à dose moyenne.

Les premières questions auxquelles il a fallu répondre étaient : où et à quel degré les sols sont-ils pollués ? combien de temps va durer cette pollution ? le fonctionnement des sols est-il affecté ? peut-on accélérer la dépollution ?

1. OÙ ET A QUEL DEGRÉ LES SOLS SONT-ILS POLLUÉS ?

1.1. Un diagnostic « space for time »

Une collection de 45 parcelles agricoles, sélectionnées sur une gamme d'intensivité des systèmes de culture bananiers [1], a été renseignée en Guadeloupe et Martinique sur les apports passés d'organochlorés. Les épandages de CLD ont pu être reconstitués avec précision, en croisant les dires d'agriculteurs et les fichiers de fournisseurs. Ceux de HCH, souvent antérieurs à 1970, n'étaient plus qu'un vague souvenir dans la mémoire collective ; seules les importations globales peuvent attester que ces apports étaient massifs. Ces parcelles ont été lourdement échantillonnées en raison de la grande variabilité spatiale des résidus organochlorés. Quelques parcelles n'ayant jamais reçu d'organochlorés, situées en aval de parcelles contaminées, ont été prélevées. Les échantillons composites ont été soumis à un dosage du carbone organique (SOC), et des résidus d'organochlorés. En première approche, sur andosol, 90% de la variance des teneurs en CLD était expliquée par les chroniques d'apport, les teneurs en carbone, la profondeur des labours, et les pluviométries annuelles moyennes reçues par les parcelles, sans faire intervenir le temps.

1.2. WISORCH, un modèle de lessivage de la chlordécone

Cette persistance laissait présumer une absence de dégradation physico-chimique ou biologique de la molécule. Un modèle de dispersion par le seul lessivage des eaux de drainage, WISORCH (West-Indies ORganoCHlorides), a donc été construit [2]. Ce modèle calcule, selon une cinétique de premier ordre, le stock résiduel S_j (la teneur), en année j , d'une couche de sol d'épaisseur z , résultant des apports annuels S_i passés, progressivement lessivés par les eaux de drainage. Les premières années a suivant un apport de pesticide, au pied du bananier, le drainage est fortement amplifié par l'effet concentrateur de la pluie de la plante [3] : ce drainage D_{fn} est appliqué pendant 3 ans pour les bananeraies labourées, 5 ans pour les bananeraies pérennes. Ensuite, le drainage est calculé par bilan hydrique (D_{bn}) incorporant la pluviométrie annuelle interpolée à partir d'un réseau de pluviomètres et les déductions du ruissellement calculé à partir d'un coefficient moyen annuel [4] et de l'évapotranspiration réelle prise égale à l'évapotranspiration potentielle [5]. La chlordécone est supposée adsorbée sur le stock organique des sols S_{soc} , et comporte une fraction soluble régie par un coefficient de partage (K_{oc}). Sous les bananeraies pérennes, 95% du stock de CLD est encore situé dans le premier décimètre de sol. Dans les bananeraies labourées, les travaux du sol ont pu diluer le stock sur l'ensemble de la couche travaillée de profondeur z_{til} . L'équation du modèle est :

$$S_j = \sum_{i=1971}^j \left[S_i \times (z / z_{til}) \times \exp \left(\frac{-10}{K_{oc} \times S_{soc}} \left(\sum_{n=i}^{i+a} D_{fn} + \sum_{n=i+a+1}^j D_{bn} \right) \right) \right]$$

WISORCH permet par ailleurs le calcul d'une concentration moyenne annuelle dans les eaux de drainage. La validité de ce modèle avec un K_{oc} de $17.5 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ [6] est bonne pour les andosols (Fig. 1). Malgré l'absence de dégradation, la persistance quantitative de la chlordécone est inégale selon les sols : l'inversion du modèle d'éluion a permis de montrer que le K_{oc} décroît des andosols (25 à $12 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$), aux ferralsols (12 à 7.5) puis aux nitisols (3 à 2). Les teneurs des eaux de drainage corroborent ces valeurs : un nitisol 10 fois moins pollué montre une teneur en CLD dans les eaux de drainage 4 fois plus élevée qu'un andosol. Un nitisol est ainsi potentiellement plus contaminant qu'un andosol.

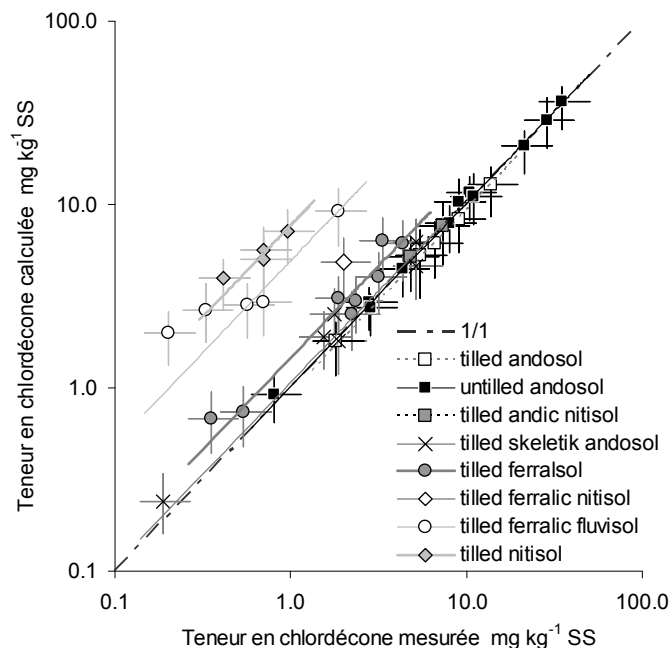


Figure 1 : Comparaison des teneurs en chlordécone de la couche 0-30 cm des sols, mesurées et calculées par WISORCH sur le réseau de parcelles « space for time » d'apports renseignés. $K_{oc} = 17.5 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$

La validité du modèle WISORCH d'éluion de la chlordécone par les eaux de drainage montre indirectement que la dispersion par le ruissellement est faible : c'est confirmé par l'absence de contamination des parcelles d'aval, autrement que sur quelques mètres d'un éventuel talweg commun.

1.3. La chlordécone ne 'bave' pas : application à la cartographie du risque de pollution

La cartographie du risque de pollution des sols par la chlordécone à la Guadeloupe a été réalisée entre 2004 et 2005 par le Service de la Protection des Végétaux [7] selon les hypothèses suivantes :

- la chlordécone a été appliquée dans toutes les bananeraies, au moins dans la période « Curlone » de 1982 à 1993, suivant ainsi les recommandations techniques des groupements de producteurs.
- conformément à l'autorisation de mise en marché du Curlone en 1982, elle n'a été utilisée que dans les bananeraies.

Il a donc suffi de cartographier les surfaces en bananeraies encadrant et recouvrant les périodes Képone et Curlone. La Guadeloupe a eu la chance de disposer de photos aériennes en 1969, 1984, et 1996 et d'une carte de la sole bananière levée en 1974-75. Cette cartographie (Fig. 2) est progressivement validée par les analyses de sol obtenues dans le cadre des intentions de culture vivrières, *a priori* dédiées à des parcelles présumées peu contaminées : en 2007, plus de 95% d'analyses sont positives dans la zone à risque fort à très fort, contre moins de 1% dans la zone de risque nul ou négligeable. Ces dernières semblent associées à la dégradation du Mirex (perchlordécone), utilisé en dehors des bananeraies contre la fourmi – manioc dans les années 90. La cartographie de risque reste cependant un outil binaire, à affiner pour exprimer la capacité contaminante des sols pour les eaux et les cultures, et les niveaux réels de pollution.

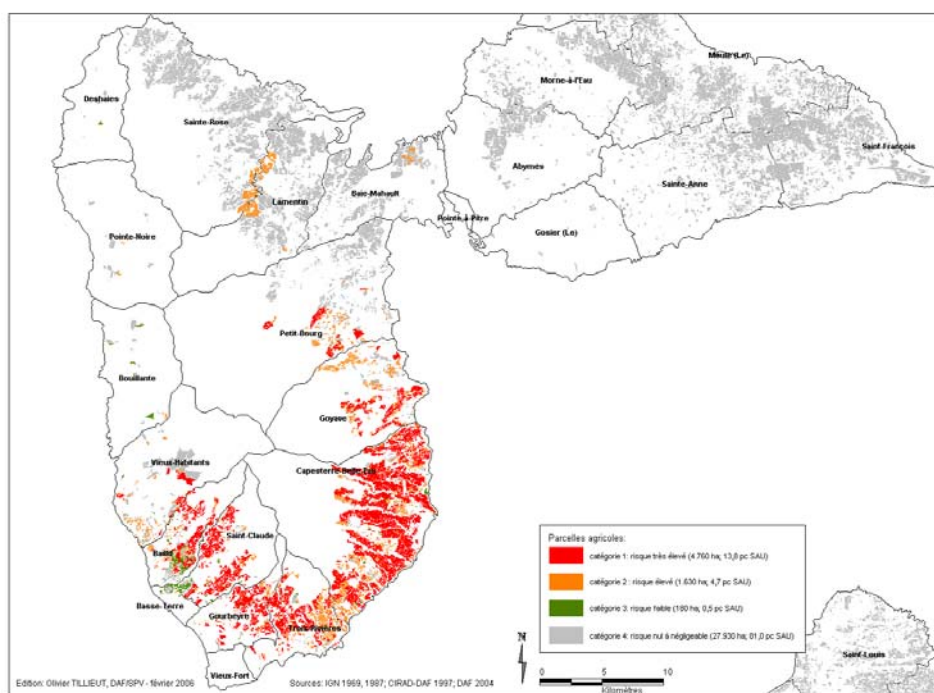


Figure 2 : Cartographie du risque de pollution des sols de la Guadeloupe par la chlordécone [7].

1.4. Pollution par le HCH

1.4.1. Devenir du β -HCH

Le réseau de parcelles n'a fourni que quelques situations où le β -HCH était quantifiable. Fin 2005, sur près de 1700 analyses effectuées dans le cadre des intentions de mise en culture vivrière, 711 étaient positives pour la chlordécone ($> 0.01 \text{ mg kg}^{-1}$), seulement 50 pour le β -HCH, 43 pour les deux. Sur la sous-population d'andosol de cette dernière collection, nous avons appliqué WISORCH à la fois à la chlordécone et au β -HCH, en supposant les apports maximaux des deux molécules : 19 kg/ha/an de β -HCH (320 kg/ha/an de HCH technique) de 1966 à 1972, puis 3 kg/ha/an de CLD de 1972 à 1978 puis de 1982 à 1993. Le modèle a été calé sur les teneurs d'un andosol mesurées en 1975 [8], peu après la fin d'application de HCH. Les K_{oc} obtenus ont été respectivement de 22.5 et $1.6 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$. Les distributions des teneurs en 2004 sont analogues pour CLD et β -HCH (Fig. 3) : les maximums sont bien décrits par chacun des deux modèles, les 3^{es} quartiles sont 3 à 5 fois plus faibles et les médianes 15 à 20 fois plus faibles. On peut en conclure que l'éluion du β -HCH est analogue à celle de la CLD, mais beaucoup plus rapide en relation avec un K_{oc} 10 à 15 fois plus faible. La valeur retenue de $1.6 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ est compatible avec celles de la littérature : entre 0.65 et $2.6 \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ [9].

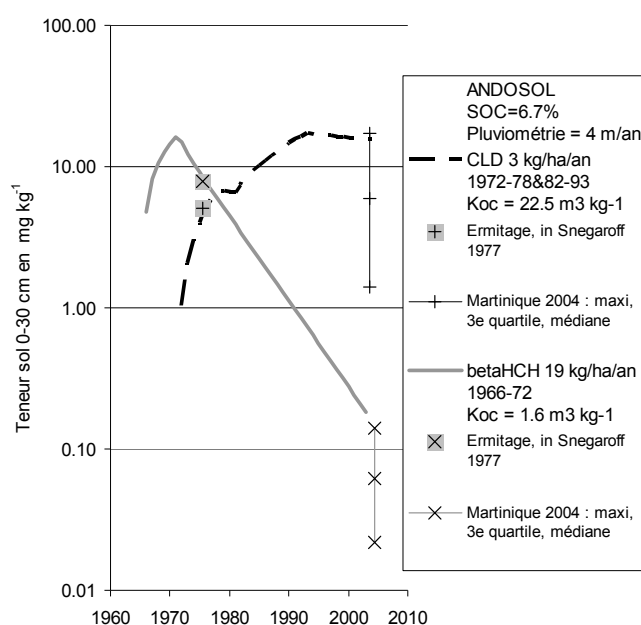


Figure 3 : Illustration des devenirs en parallèle de la chlordécone et du β -HCH par le modèle WISORCH, calé sur les données de 1975 [8], validé par les bornes supérieures des analyses de 2004 en Martinique.

1.4.2. Devenir du γ -HCH

La détection de cet isomère encore appelé « lindane », le seul à effet insecticide, est désormais très rare et en faible teneur. Des essais de dégradation du γ -HCH dans quatre échantillons d'andosols inoculés dans deux types de milieu de culture, l'un possédant le γ -HCH comme seule source de carbone (milieu SM2) et l'autre contenant des co-substrats, le glucose et la peptone (milieu SM2, GP), ont été réalisés. Les cinétiques de dégradation du lindane obtenues présentaient des vitesses de réaction similaires dans les deux conditions de culture précédemment définies : entre 30 et 50% après deux semaines d'incubation, y compris pour un andosol n'ayant jamais reçu de γ -HCH. Afin de déterminer si les échantillons de sols contenaient des bactéries capables de dégrader le γ -HCH, le gène *linA* codant pour une déchlorinase, détectée chez toutes les bactéries dégradant le HCH, a été recherché. Les séquences des amorces utilisées pour l'amplification par PCR étaient basées sur la séquence du gène de *Sphingobium japonicum* UT26. Les résultats obtenus ont permis de conclure que l'ADN des trois sols autrefois confrontés au lindane possédait le gène *linA*. Par contre ceci n'a pas été observé pour le sol initialement indemne de HCH. La dégradation

du γ -HCH pourrait alors être due à l'action d'autres microorganismes. Une étude sur la détection du gène *lin B* codant pour la halidohydrolase dans ces sols est en cours.

S'il y a bien eu adaptation de la flore bactérienne à la dégradation aérobie du γ -HCH, aucune évidence de dégradation bactérienne aérobie de la chlordécone n'est ressortie de l'étude des parcelles ayant reçu Képone ou Curlone ; les seules pistes de dégradation microbienne concernent les milieux anaérobies.

2. COMBIEN DE TEMPS VA DURER CETTE POLLUTION ?

Concernant le HCH, les quantifications sporadiques, la vitesse d'éluion du β -HCH et l'évidence d'une biodégradation du γ -HCH permettent de considérer la pollution résiduelle comme en voie d'achèvement. Il n'en est pas de même pour la chlordécone : l'extrapolation du modèle d'éluion (à pluviométrie interannuelle constante) permet d'estimer la persistance de la pollution, au-dessus d'un seuil de concentration de $10 \mu\text{g kg}^{-1}$ SS, à plusieurs décennies pour les nitisols, plusieurs siècles pour les ferralsols, plus d'un demi-millénaire pour les andosols (Fig. 4). Il est à l'évidence légitime d'avoir récemment ajouté la chlordécone à la liste des POPs de la Convention de Stockholm.

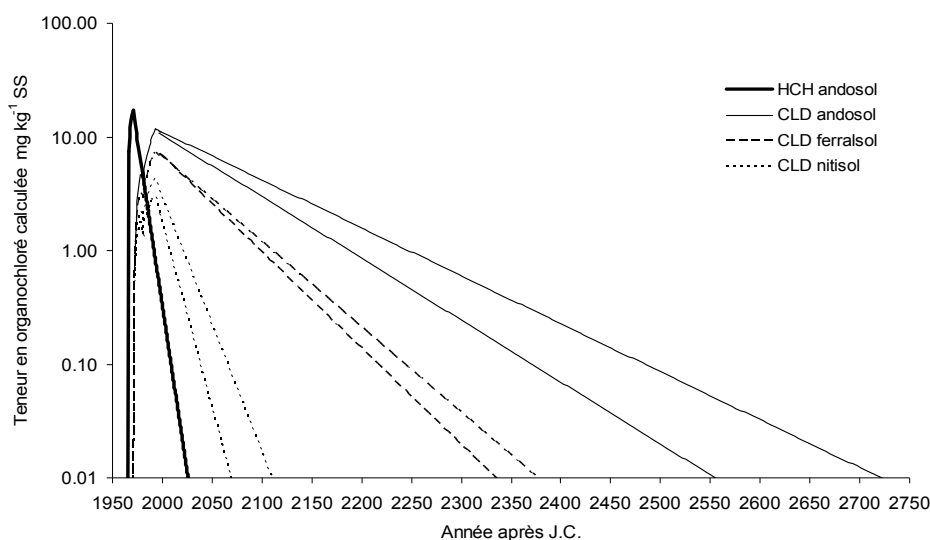


Figure 4 : Utilisation de WISORCH pour estimer la dissipation de la pollution des sols les plus contaminés des Antilles, après apport de 19 kg HCH /ha/an entre 1966 et 72, 3 kg/ha/an de chlordécone entre 1972 et 78, puis 1982 et 93. Les intervalles d'incertitude sont donnés pour la chlordécone.

3. LE FONCTIONNEMENT DES SOLS EST-IL AFFECTÉ ?

Aucune modification des variables physico-chimiques n'a été constatée. Leurs niveaux sont directement reliés aux chroniques d'intrants et de rendements récentes. Les rendements des bananeraies atteignent des valeurs très élevées, que les parcelles soient contaminées ou non. Les aspects biologiques n'ont été qu'explorés. La respirométrie après ajouts de glucose et d'antibiotiques sélectifs a montré que ni l'activité microbienne, ni l'activité fongique globales n'ont été affectées [1]. Les valeurs élevées de « séquestration » du carbone, de 70 jusqu'à 180 tC/ha sur 30 cm de profondeur dans des andosols sous bananeraies pérennes, sont liées aux niveaux élevés de productivité et de restitutions organiques au sol des bananeraies fertilisées ; la valeur la plus élevée a été obtenue sous le sol le plus contaminé, à 36 mgCLD/kgSS, mais aucune anomalie de respiration fongique laissant soupçonner une inhibition des cellulolytiques n'a été relevée. Seule une approche métagénomique permettrait d'identifier une perturbation éventuelle de la microbiocénose.

La survie et la multiplication du ver de terre *Pontoscolex corethrurus* ne sont pas non plus affectées par cette pollution organochlorée, alors qu'une mortalité totale est observée en moins de 30 jours sous l'impact d'un nématicide organophosphoré récemment utilisé (Fig. 5).

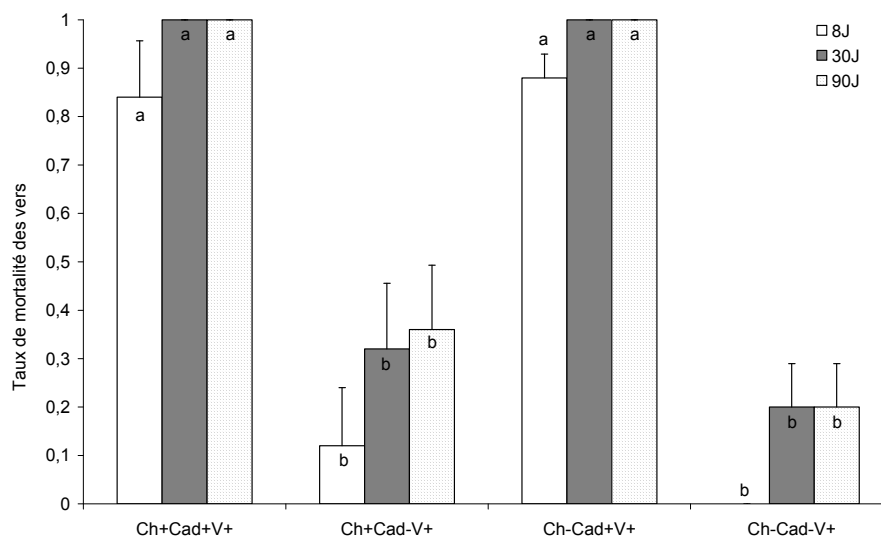


Figure 5 : Taux de mortalité des vers de terre (*Pontoscolex corethrurus*) 8, 30 et 90 jours après introduction du cadusafos (Cad+) sur des conteneurs d'andosols pollués par de la chlordécone à 36 mg kg⁻¹SS (Ch+) ou non (Ch-).

Les lettres différentes indiquent des différences significatives (ANOVA, P < 0,001).

Tests a posteriori (LSD) : [(Ch+Cad+) = (Ch-Cad+)] ≠ [(Ch+Cad-) = (Ch-Cad-)]

Ceci explique que les biomasses de vers rencontrées dans les parcelles sont actuellement plus contraintes par les composantes de l'intensivité récente : travaux du sol répétés, nématicides et fertilisations régulières à très haut niveau [1]. Enfin, les fortes teneurs en résidu de chlordécone n'ont plus aucun effet contre le charançon.

Aucun indice de dégradation des sols n'est relevé, qui puisse être imputé à la pollution par les organochlorés. En revanche, la dégradation de la vocation culturale de ces sols est implacable : la plupart des cultures vivrières y sont devenues brutalement impossibles en 2003. Tous les OSR des « légumes-racines » sont susceptibles d'une contamination significative, qui suit une relation monotone croissante avec la pollution des sols (Fig. 6). Cette contamination se fait essentiellement par diffusion au contact du sol pollué, comme l'ont montré des expérimentations où des OSR poussant dans du sol sain alors que les racines explorent un sol contaminé demeurent indemnes de chlordécone [10]. Elle est d'autant plus forte que la durée de formation et le rapport surface / volume de l'OSR sont élevés, sans caractère spécifique.

La contamination relative est plafonnée par une relation empirique, atteinte seulement par les cortex, qui correspond à un équilibre de sorption massique entre les matières sèches du sol et du végétal [10]. Cette relation permet de transformer la limite maximale de résidu (LMR), définie à 20 µg kg⁻¹ PF en 2007, en limite de pollution du sol (LM_{sol}) en deçà de laquelle les cultures demeurent possibles. Cet outil de gestion sera progressivement affiné en fonction des types de sol, et des espèces cultivées.

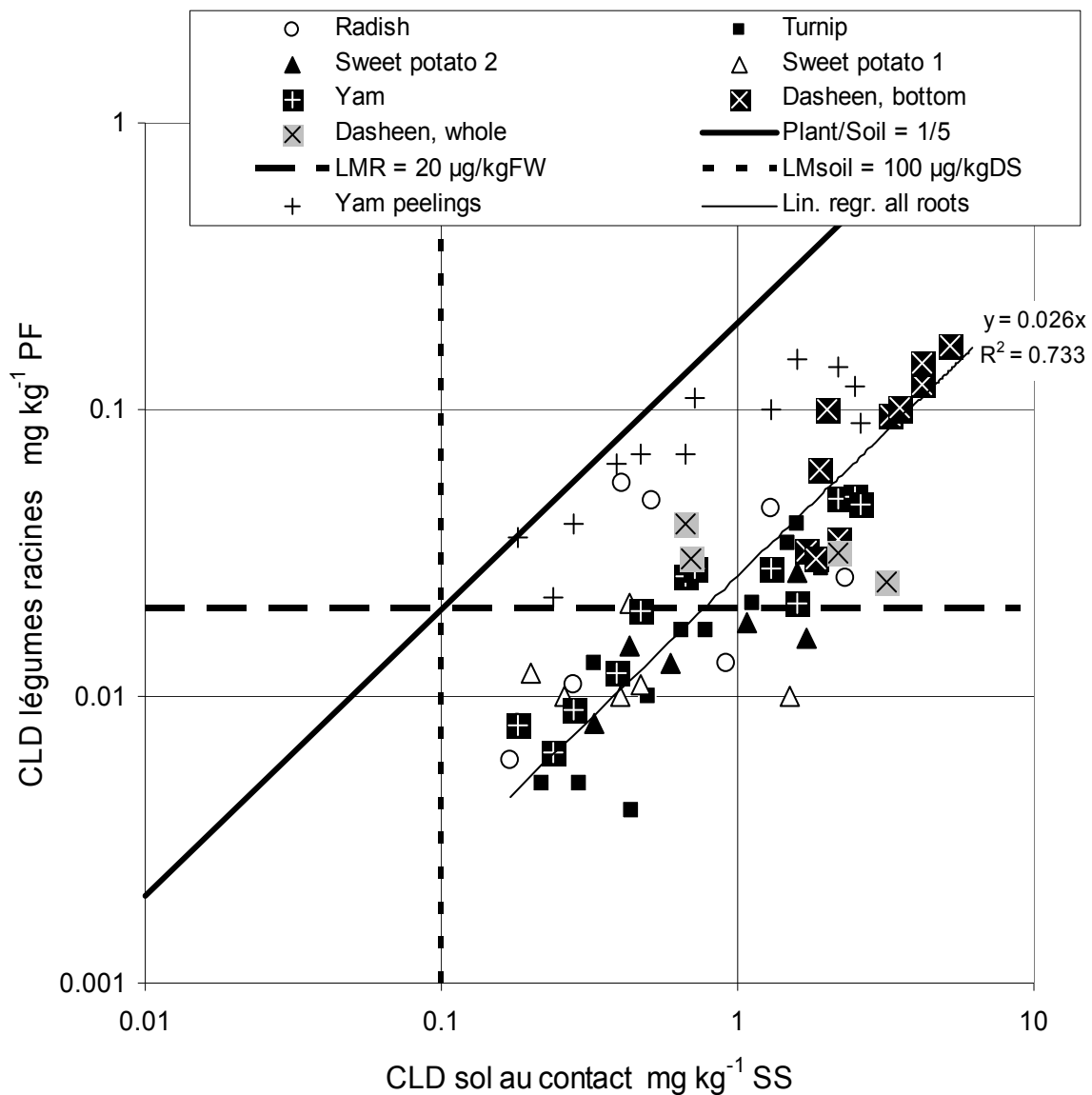


Figure 6 : Contamination par diffusion des organes souterrains récoltés de légumes-racines, au contact de ferralsols et andosols pollués par la chlordécone (CLD)

4. PEUT-ON ACCELERER LA DEPOLLUTION ?

Un traitement par bio-augmentation microbienne pourrait être envisagé pour dégrader le γ -HCH, mais les situations encore significativement contaminées par cette molécule sont sporadiques.

S'agissant de la chlordécone, aucune solution plausible n'a encore été dégagée :

- si la biodégradation anaérobie offre une perspective pour une remédiation en conditions contrôlées locales, installer des conditions anaérobies pour le traitement de 10 000 ha de sols contaminés nécessite une réflexion approfondie et vraisemblablement des coûts de traitements prohibitifs.

- les décapages mécaniques seraient possibles sur les andosols d'anciennes bananeraies pérennes, jamais labourés depuis le premier apport de chlordécone ; si leur surface cumulée est seulement d'environ 500 ha, le volume de décapage sur 10 cm représenterait cependant un demi-million de mètres cubes. L'incinération, l'oxydation chimique, ou la microbioremédiation dans des conditions anoxiques, selon des process à inventer qui seraient handicapés par les contenus organiques très élevés des andosols, représenteraient un énorme chantier. De plus, les conditions de relief interdisent l'usage de scrapers. Enfin, des

décapages rendraient immédiatement ces sols érodibles, alors qu'en l'état, grâce leur stabilité structurale, ils sont peu susceptibles d'érosion en nappe. Pour tous les sols anciennement labourés, souvent à une profondeur supérieure à 50 cm, le décapage représenterait un chantier pharaonique : le volume minimal de 10 000 ha sur 0.5 m de profondeur représente 50 Mm³, que ferait-on de ces déblais ? Une certitude, ces sols décapés seraient immédiatement ravagés par l'érosion hydrique.

- la phytoremédiation n'offre pour l'instant aucune piste de résorption de la pollution : les teneurs maximales rapportées à la matière sèche des OSR testés sont majorées par les valeurs des teneurs du sol environnant ; les tubercules capturant ainsi moins d'1/5^e du CLD du volume de sol qu'ils déplacent, et ce volume représentant moins de 1% de la couche arable, chaque cycle exporterait moins de 2‰ du stock de CLD.

CONCLUSION

La pollution des sols des Antilles par le HCH, malgré l'importance des apports anciens, est en voie de résorption sous les effets couplés d'un lessivage relativement rapide du β -HCH et d'une biodégradabilité microbienne acquise du γ -HCH. La chlordécone pose au contraire un problème de persistance pour des décennies ou des siècles. La priorité est actuellement de comprendre et d'affiner les relations entre la pollution des sols et la contamination des eaux et des cultures, et au-delà la toxicité sur les organismes, afin de fournir des règles d'usage des sols et des milieux, sous une contrainte phytopharmaceutique malheureusement durable. Enfin, le modèle WISORCH permet de reconstituer des teneurs passées, notamment dans les eaux, et donc d'établir des niveaux d'exposition rétrospectifs qui ont été bien supérieurs dans les années 1980 et 1990.

Références :

- [1] Clermont-Dauphin, C., Cabidoche, Y.-M., Meynard, J.-M., 2004. Effects of intensive mono-cropping of bananas on properties of volcanic soils in the uplands of the French West Indies. *Soil Use and Management* 20, 105-113.
- [2] Cabidoche, Y.-M., Achard, R., Cattan, P., Clermont-Dauphin, C., Massat, F., Sansoulet, J., 2009. Long-term pollution by chlordécone of tropical volcanic soils in the French West Indies.: A simple model accounts for current residues. *Environmental Pollution*, 157, 1697-1705.
- [3] Cattan, P., Voltz, M., Cabidoche, Y.-M., Lacas, J.-G., Sansoulet, J., 2007. Spatial and temporal variations in percolation fluxes in a tropical Andosol influenced by banana cropping patterns. *Journal of Hydrology* 335, 157-169.
- [4] Cattan, P., Cabidoche, Y.-M., Lacas, J.-G., Voltz, M., 2006. Occurrence of runoff on high infiltrability andosol under two banana cropping systems. *Soil Tillage Research* 86, 38-51.
- [5] Robin, P., 1990. Bilan hydrique des sols: quantification de la variabilité spatiale et de l'incertitude. Thèse de Docteur de l'Institut National Agronomique Paris-Grignon et de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 21 mai 1990, Paris, France.
- [6] Kenaga, E. E., 1980. Predicted Bioconcentration Factors and Soil Sorption Coefficients of Pesticides and Other Chemicals. *Ecotoxicology and Environmental Safety* 4, 26-38.
- [7] Tillieux, O., 2005. Cartographie du risque de pollution des sols de la Guadeloupe par la chlordécone. DAF-SPV, Abymes, 1 carte.
- [8] Snegaroff, J., 1977. Les résidus d'insecticides organochlorés dans les sols et les rivières de la région bananière de Guadeloupe. *Phytiatrie-Phytopharmacie* 26, 251-268.
- [9] Mackay, D., Shiu, W.Y., Ma, K.C., 1992. Illustrated handbook of physical-chemical properties and environmental fate for organic chemicals. Volume 1, 2, 4 Boca Raton Inc. London.
- [10] Cabidoche, Y.-M., Clermont-Dauphin, C., Lafont, A., Sansoulet, J., Cattan, P., Achard, R., Caron, A., Chabrier, C., 2006. Stockage dans les sols à charges variables et dissipation dans les eaux de zoocides organochlorés autrefois appliqués en bananeraies aux Antilles : relation avec les systèmes de culture. Rapport final de contrat de recherche, AP « Pesticides » 2002 MEDD. APC INRA Antilles-Guyane, 99p.