

# Le mercure dans les sols d'Amazonie

## Origine et comportement du mercure dans les couvertures ferrallitiques du bassin amazonien et des Guayanes

Dans le cycle biogéochimique global du Hg, les sols sont assimilables à un réservoir et à un puits de Hg (MASON *et al.*, 1994). Dans les écosystèmes terrestres, la majeure partie du Hg se trouve dans les sols, complexé avec la matière organique et/ou adsorbé par les surfaces minérales (argiles et oxyhydroxydes) (ANDERSSON, 1979). Les sols jouent un rôle fondamental dans le cycle du Hg en contrôlant les flux échangés avec l'atmosphère et la biosphère.

En région amazonienne, plusieurs travaux récents ont montré que les sols ferrallitiques (oxisols) pouvaient contenir des quantités importantes de Hg et représentaient de ce fait le réservoir majeur de Hg pour les écosystèmes terrestres et aquatiques (ROULET *et al.*, 1998 ; ZEIDEMANN, 1998 ; FOSTIER *et al.*, 1999 ; GRIMALDI *et al.*, 2000). Ces résultats permettent de fournir une nouvelle interprétation du cycle du Hg en région amazonienne.

## L'ORIGINE DU MERCURE DANS LES SOLS AMAZONIENS

### LE MERCURE DES ROCHES MÈRES

La première source de Hg dans les sols est le Hg des minéraux constituant la roche mère. Ces minéraux, en plus de leurs éléments constitutifs majeurs, contiennent sous forme d'impuretés dans leurs structures cristallines des éléments traces comme le Hg (ANDERSSON, 1979). Au cours des processus de formation et d'évolution des sols, ces structures cristallines sont altérées et les éléments mineurs, en l'occurrence le Hg, sont libérés et deviennent disponibles pour participer à divers processus géochimiques et biologiques au sein des sols.

Dans certaines régions, on trouve des minéraux riches en Hg. Ce sont généralement des minéraux sulfureux. Mais le contenu en Hg des roches et des minéraux formant les sols est habituellement bas. Selon ANDERSSON (1979), des concentrations de 10 à 50 ng/g semblent correspondre à la normale pour la plupart des roches mères. Les sols à fortes teneurs en Hg sont souvent issus de roches mères riches en Hg, comme c'est le cas des ceintures mercurifères (JONASSON et BOYLE, 1972 ; ANDERSSON, 1979).

La région amazonienne se trouve en dehors de toute zone mercurifère (voir annexe 1). Le bassin amazonien est constitué de deux unités géotectoniques, à savoir deux socles constitués de roches cristallines précambriennes (boucliers guyanais et brésilien) et un bassin intercratonique depuis le cambrien. Jusqu'au miocène, les sédiments avaient pour origine les boucliers nord et sud seuls ; par la suite, les Andes du Nord ont constitué une source supplémentaire de sédiments. En périphérie du bassin (nord et sud), les roches en surface constituent les boucliers précambriens guyanais et brésilien. Elles sont prolongées, en allant vers l'Amazone, par des bandes de sédiments paléozoïques, tandis qu'au centre se trouvent les roches provenant des sédiments fluviaux du crétacé-tertiaire (formation Alter-do-Chão). Cette formation est le produit de l'érosion des boucliers (PUTZER, 1984 ; IRION, 1984). Dans les surfaces périphériques des basses terres de l'ouest, ce sont des sédiments du tertiaire et en partie du crétacé d'origine terrestre et marine qui prédominent. Les surfaces les plus à l'ouest des basses terres centrales de l'Amazone sont couvertes par une fine couche de sédiments alluviaux (PUTZER, 1984) d'âge tertiaire et pléistocène.

Le contenu normal en Hg des roches et minéraux ignés de la planète semble être inférieur à 50 ng/g et dans la plupart des cas inférieur à 10 ng/g (ANDERSSON, 1979). Les seules mesures dont nous disposons en Amazonie sont celles de roches ignées du bouclier brésilien (granites, syénites et monzonites) prélevées sur les chutes de Teotônio et Santo Antônio dans le bassin du Madeira (Rondônia, Amazonie brésilienne) (SILVEIRA *et al.*, à paraître). Les valeurs obtenues sont comprises entre 3,3 et 7,2 ng/g (moyenne de 4,4 ng/g) et elles se situent parmi les plus faibles niveaux rencontrés dans ce type de roches.

En Guyane française, des sondages profonds (jusqu'à 3 m) ont été réalisés dans des sols développés sur le bouclier guyanais pour atteindre différents faciès d'altération. Ces sondages ont permis d'analyser des matériaux de

moins en moins altérés dans différents horizons minéraux des sols, et de s'approcher ainsi de la concentration de la roche mère qui n'est présente qu'à partir de 20 à 30 m de profondeur. GRIMALDI *et al.* (2000) observent que plus les saprolites (altérites) sont riches en minéraux primaires, plus les concentrations en Hg sont faibles, c'est-à-dire qu'elles sont d'autant plus faibles que l'altération est moins poussée. Des concentrations de 20 ng/g seulement sont mesurées à la base des profils dans la saprolite. Lors de l'altération, le départ des éléments majeurs plus mobiles (Si et les cations Ca, Mg, K, Na) aurait pour effet d'accroître la concentration en Hg du matériau altéré, avec l'hypothèse que le Hg est moins mobile que les éléments majeurs. Le Hg libéré par dissolution ou transformation des minéraux primaires se fixe vraisemblablement très vite sur la fraction argileuse néoformée constituée de kaolinite et d'oxyhydroxydes métalliques (GRIMALDI *et al.*, 2000).

Au-dessus des saprolites, les horizons les plus argileux sont sensiblement plus riches en Hg et la relation entre le Hg et l'argile change. GRIMALDI *et al.* (2000) avancent deux hypothèses pour expliquer ces observations : l'effet de concentration relative du Hg au cours de l'altération se poursuit et se manifeste encore plus nettement dans les horizons les plus argileux du sol que dans les saprolites, car l'altération y est plus poussée ; l'autre hypothèse, non exclusive de la première, fait intervenir des apports de Hg à la surface du sol par voie atmosphérique directe ou après interception par la végétation, apports qui se redistribuent en profondeur dans ces sols microagrégés et donc perméables.

### **LES DÉPÔTS ATMOSPHÉRIQUES DE MERCURE À LA SURFACE DES SOLS AMAZONIENS**

La seconde source de Hg dans les sols est le Hg atmosphérique retombant à leur surface sous forme de précipitations sèches et humides. Les études réalisées dans la zone tempérée de l'hémisphère Nord ont identifié les dépôts atmosphériques comme la principale source de Hg dans la plupart des écosystèmes terrestres (MASON *et al.*, 1994 ; WATRAS *et al.*, 1995). Les dépôts se réalisent principalement sous la forme  $Hg^{2+}$  dissous dans les précipitations humides mais la présence de Hg sous forme élémentaire ou divalente, et sous des phases différentes (dissous, particulaire ou gazeux) dans l'atmosphère,

détermine la qualité et la quantité de ces dépôts. La forme du Hg et l'intensité des dépôts atmosphériques de Hg dépendent aussi des conditions météorologiques et de la taille des aérosols, ainsi que des nombreux facteurs environnementaux qui contrôlent la spéciation du Hg dans l'atmosphère (LINDBERG, 1986 ; PIRONNE *et al.*, 1995).

Dans l'atmosphère au-dessus de l'Amazonie, le mercure gazeux Hg<sup>0</sup> est supposé avoir un temps de séjour plus court que dans les milieux tempérés parce que les écosystèmes de la forêt tropicale émettent d'autres gaz réactifs et des aérosols en quantité importante et que les précipitations sont abondantes (MALM *et al.*, 1990 ; ARTAXO *et al.*, 1988). La conjugaison d'une oxydation rapide du Hg<sup>0</sup> en une forme plus soluble (Hg<sup>2+</sup>) et de précipitations abondantes abrégerait son temps de séjour dans l'air, mais il n'y a pas d'étude étayant ces hypothèses. Plusieurs travaux ont cependant tenté d'évaluer les dépôts humides directs de Hg au sol en région amazonienne (tabl. I). Les dépôts humides directs correspondent aux flux de Hg vers le sol dans des conditions ouvertes sans canopée (surface déboisée, plan d'eau...). En Amazonie, les dépôts sont plus élevés près des zones d'orpaillage (moins de 10 km) que dans les zones éloignées (plus de 100 km) et sont supposés décroître rapidement avec la distance (LACERDA et SALOMONS, 1991 ; MALM *et al.*, 1991 ; PFEIFFER *et al.*, 1993). Les dépôts dans les milieux éloignés des zones d'orpaillage varient entre 18 et 25 µg/m<sup>2</sup>/an. Ces valeurs sont très supérieures à ce qui est généralement observé (autour de 10 µg/m<sup>2</sup>/an) dans les milieux éloignés des sources directes de pollution en milieu tempéré de l'hémisphère Nord (VANDAL *et al.*, 1991 ; CHAZIN *et al.*, 1995 ; POISSANT et PILOTÉ, 1998).

Ces mesures des dépôts ne permettent cependant pas de distinguer l'origine ou l'importance relative des différentes sources de Hg, anthropiques (orpaillage, feux de forêt, érosion éolienne des sols déboisés, industries...) et naturelles (recyclage par le milieu forestier, aérosols, volcans...). MASON *et al.* (1994) estiment la contribution moyenne des dépôts atmosphériques à 13 µg/m<sup>2</sup>/an pour la région comprise entre les latitudes 10° N et 10° S. Des calculs théoriques ont évalué la contribution des activités d'orpaillage en Amazonie brésilienne entre 7 et 17 µg/m<sup>2</sup>/an (ROULET *et al.*, 1999).

Les dépôts humides sur les sols sont en général plus importants sous forêt qu'en champ ouvert (HULTBERG *et al.*, 1995). Le dépôt supplémentaire induit par le lessivage des feuilles et des litières peut provenir en partie du recyclage

Tableau I. Les dépôts de mercure sur les surfaces terrestres en Amazonie.

Méthode	Région	Dépôts ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{an}$ )	Remarques	Références
<b>Dépôts atmosphériques humides directs</b>				
	Pantanal, Brésil, 1-10 km des mines d'or	151	Mesures directes	VON TÜMPLING <i>et al.</i> , 1996
	Pantanal, Brésil, à plus de 110 km des mines d'or	25	Mesures directes pendant la saison des pluies et le début de la saison sèche (flux attribué à l'orpaillage)	VON TÜMPLING <i>et al.</i> , 1996
	Pantanal, Brésil, à plus de 110 km des mines d'or	40	Mesures directes pendant la saison sèche (flux attribué aux feux de biomasse végétale)	VON TÜMPLING <i>et al.</i> , 1996
	Amapá, Brésil, forêt non perturbée à plus de 200 km des mines d'or	18	Mesures directes loin des sites d'orpaillage	FOSTIER <i>et al.</i> , 1999 b
	Amazonas, Brésil, forêt non perturbée, Rio Negro	20	Mesures directes loin des sites d'orpaillage	FADINI et JARDIM, 1999
<b>Estimations</b>				
	Amazonie brésilienne, contribution de l'orpaillage aux dépôts à la surface des sols (plus de 50-100 km des mines)	7-17	Calculs théoriques fondés sur des estimations du Hg utilisé dans les activités d'orpaillage	ROULET <i>et al.</i> , 1998
	Continent entre 10° N et 10° S	13	Estimations à partir de mesures océaniques	MASON <i>et al.</i> , 1994

interne, mais l'assimilation par les racines et les tiges est généralement considérée comme négligeable (GODBOLD, 1994). Il résulte surtout des dépôts sous forme sèche à la surface de la végétation. Les dépôts secs ainsi lessivés peuvent provenir de l'adsorption de  $\text{Hg}^0$  gazeux (MUNTHER *et al.*, 1995), de l'assimilation de  $\text{Hg}^0$  par les stomates (LINDBERG *et al.*, 1992), de l'adsorption de  $\text{Hg}^{2+}$  dissous dans les pluies ou de l'adsorption de Hg sous forme particulaire associé aux aérosols (LINDBERG *et al.*, 1994). En milieu forestier, les dépôts sur la

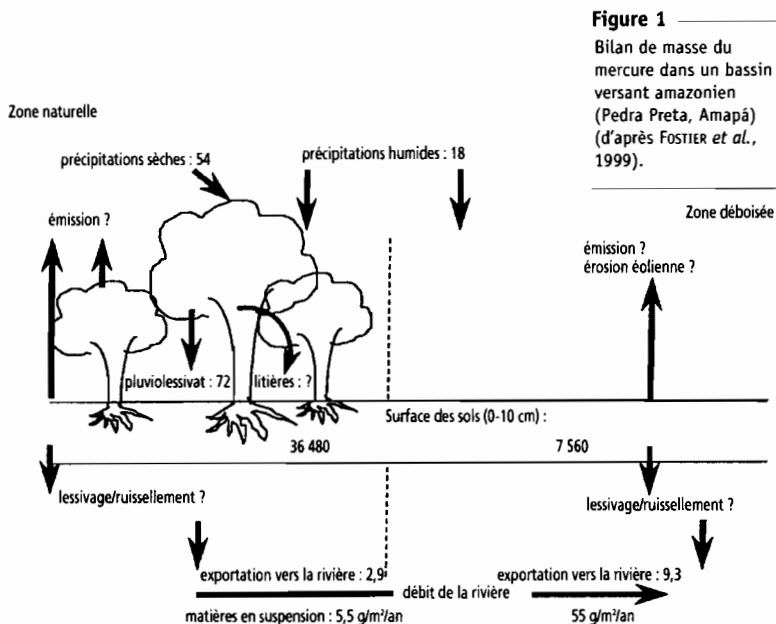
canopée et le recyclage interne du Hg se reflètent directement dans la composition des pluviollessivats, c'est-à-dire des précipitations qui atteignent le sol après avoir traversé la canopée (LINDBERG *et al.*, 1994).

En Amazonie, les seuls travaux disponibles sur les dépôts de Hg en milieu forestier ont été réalisés par FOSTIER *et al.* (2000) dans le bassin de la rivière Pedra Preta (Amapá, Brésil). L'étude concerne un bassin d'une surface totale de 164 ha dont 30 ha ont été déboisés suite au développement d'une mine de manganèse, le plus proche centre d'orpaillage se trouvant à plus de 200 km. (FOSTIER *et al.*, 2000). Dans ce bassin versant, les activités minières, bien que limitées dans l'espace, ont pour principal effet d'augmenter les dépôts secs sous forme d'aérosols qui proviennent de l'érosion éolienne des sols mis à nu (« poussières de sols ») (FORTI *et al.*, 2000). Ce phénomène s'observe particulièrement durant la saison sèche. Dans la partie forestière du bassin versant, la moyenne des concentrations des précipitations humides directes (représentant les précipitations au-dessus de la canopée) est de 9,2 ng/l, alors que les pluviollessivats (les précipitations en dessous de la canopée) ont des teneurs plus élevées avec une moyenne de 47,9 ng/l. Ces apports représentent des flux de 18  $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{an}$  et 42  $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{an}$  respectivement (FOSTIER *et al.*, 2000). Les différences notées entre les deux flux sont attribuées au pluviollessivage des dépôts secs des poussières de sols. La figure 1 illustre le bilan de masse effectué à l'échelle du bassin.

Dans une autre forêt tropicale, située aux Caraïbes, les dépôts secs sont au contraire faibles (LINDBERG et HARRIS, 1985). Les auteurs démontrent que, à l'inverse des résultats obtenus par FOSTIER *et al.* (2000), les dépôts humides sont plus faibles sous la canopée qu'au-dessus, suggérant une absorption du Hg dissous dans les précipitations par la végétation au niveau de la canopée.

Dans les deux cas, les dépôts de Hg avec les litières n'ont pas été évalués. Si nous utilisons les données des concentrations en Hg dans les feuilles (100 ng/g) de ROULET *et al.* (1999) et les données des retombées moyennes de litière (entre 4 et 6 t/ha/an en forêt amazonienne), les flux de Hg *via* le dépôt des litières peuvent atteindre 40 à 60  $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{an}$ . Ils doivent être additionnés aux dépôts humides sous forêt mesurés par FOSTIER *et al.* (2000) (fig. 1).

Il s'avère que le cycle biogéochimique du Hg en forêt amazonienne mérite des études plus approfondies afin de mieux évaluer les échanges entre les différents compartiments de l'environnement forestier.



## DISTRIBUTION ET ACCUMULATION DU MERCURE DANS LES SOLS AMAZONIENS

### RÉTENTION DU Hg DANS LES SOLS

Le Hg libéré dans la solution du sol par l'altération des minéraux ou déposé à la surface des sols peut être adsorbé sur des minéraux argileux, sur des oxyhydroxydes métalliques et sur la matière organique, qui possèdent de nombreux sites d'adsorption. La rétention du Hg peut être le résultat d'échanges ioniques avec les surfaces chargées négativement des minéraux argileux mais elle peut aussi provenir de liens plus énergétiques par des ponts hydroxyles avec les différents oxyhydroxydes (FORBES *et al.*, 1974). Des chélation et des complexations (notamment avec les groupes S<sup>2-</sup>) ainsi que des

coprécipitations peuvent se réaliser entre le Hg et la matière organique des sols (ANDERSSON, 1979 ; SCHUSTER, 1991). La capacité de chacun des constituants à fixer le Hg dépend des conditions pédogéochimiques dans les différents types de sols mais aussi dans les différents horizons d'un même sol. ANDERSSON (1970) démontre que le seul adsorbant effectif du Hg dans les sols acides (pH < 4,5-5) est la matière organique, alors que dans les sols plus neutres (pH > 5,5-6) ce sont les oxyhydroxydes et les minéraux argileux qui deviennent plus effectifs. Dans les horizons pauvres en matière organique, la mobilité du Hg augmente lorsque le pH décroît, rendant plus probable dans les sols acides la translocation dans les profils et/ou l'exportation (ANDERSSON, 1979).

### Rétention par les surfaces minérales

On observe généralement une augmentation de l'adsorption des ions  $\text{Hg}^{2+}$  avec la réduction de la taille des particules des sols et donc l'augmentation de leur surface spécifique (DUDAS et PAWLUK, 1976 ; ANDERSSON, 1979). La texture des sols est un facteur clé déterminant des concentrations de Hg dans les sols d'Amazonie (ROULET *et al.*, 1998 ; GRIMALDI et GRIMALDI, 1999). Dans les oxisols et les ultisols de la vallée du Tapajós, la fraction fine (< 63  $\mu\text{m}$ ) est de deux à sept fois plus concentrée en Hg (170-360 ng/g) et en oxyhydroxydes de Fe (250-700  $\mu\text{mol/g}$ ) que les fractions plus grossières (Hg : 20-120 ng/g ;  $\text{Fe}_{\text{cdb}}^1$  : 10-200  $\mu\text{mol/g}$ ) (fig. 2). La fraction fine correspond dans ces sols à la kaolinite associée aux oxyhydroxydes. Parmi les minéraux argileux, la kaolinite possède la plus faible capacité d'adsorption (kaolinite < montmorillonite < illite ; TROST et BISQUE, 1972 ; ANDERSSON, 1970). La kaolinite n'est de ce fait généralement pas impliquée dans l'adsorption du Hg dans les sols (FEICK *et al.*, 1972 ; TROST et BISQUE, 1972 ; SEMU *et al.*, 1986). Les oxyhydroxydes cristallisés associés aux minéraux argileux dans la fraction fine semblent plus importants dans le contrôle de l'adsorption du Hg (ROULET *et al.*, 1998).

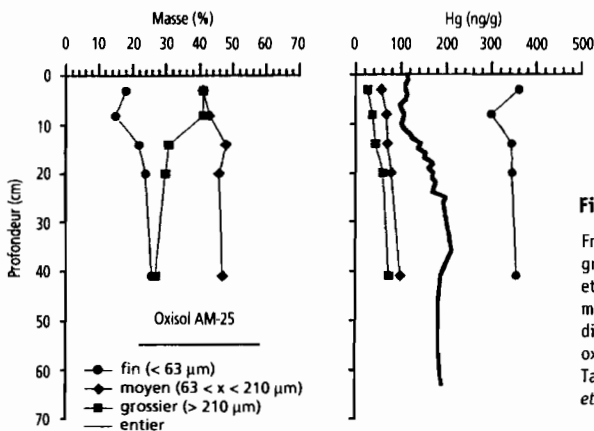
Les oxyhydroxydes sont les principaux minéraux adsorbants des oxisols kaolinitiques et pauvres en matière organique qu'on trouve en Amazonie. Ils contrôlent l'adsorption des éléments nutritifs (BIGHAM *et al.*, 1978), des substances humiques (PARFITT *et al.*, 1977) et celle des métaux lourds (MCKENZIE, 1980). Les ions  $\text{Hg}^{2+}$  libres ou complexés par les anions  $\text{OH}^-$  et les substances

1 Le tampon cdb (citrate-dithionate-bicarbonate) permet d'extraire sélectivement les oxyhydroxydes de fer cristallisés et amorphes, l'aluminium substitué dans les oxyhydroxydes de fer cristallisés ainsi que les oxydes d'aluminium amorphes.



humiques peuvent s'adsorber à leur surface (XU et ALLARD, 1991 ; COLLINS *et al.*, 1999). Dans les sols de la vallée du Tapajós, tous développés sur la formation Alter-do-Chão, une très bonne relation de proportionnalité entre le Hg et l' $Al_{cdb}$  est observée (fig. 3 a). La relation avec le  $Fe_{cdb}$  est moins bonne et montre de nombreuses déviations (fig. 3 b). En fait, l'adsorption du Hg semble être augmentée quand la substitution alumineuse des hydroxydes de Fe (ici la goëthite) croît, comme semble l'indiquer la relation obtenue entre les rapports  $Hg/Fe_{cdb}$  et  $Al/(Fe + Al)_{cdb}$  (fig. 3 c).

Plusieurs formes d'oxyhydroxydes de Fe se rencontrent dans les sols. Leur surface spécifique augmente alors que leur cristallinité décroît et, en dépit de leur quantité limitée, les oxydes de Fe amorphes et peu cristallisés peuvent néanmoins fortement influencer les propriétés d'un sol (BORGAARD, 1982). La substitution alumineuse dans les oxyhydroxydes cristallisés réduit la taille des cristaux : les surfaces spécifiques et donc la capacité d'adsorption en sont augmentées d'autant. L'hématite (oxyde de fer,  $Fe_2O_3$ ) est souvent moins substituée en Al dans sa structure cristalline que la goëthite (hydroxyde de fer,  $FeO_2H$ ), sa surface spécifique est inférieure à celle de la goëthite. Ainsi, même si, pour chaque profil pris individuellement, dans les oxisols et les ultisols amazoniens, la corrélation entre les concentrations de Hg et les concentra-



**Figure 2**  
Fractions granulométriques et concentrations de mercure dans les différentes fractions d'un oxisol de la vallée du Tapajós (d'après ROULET *et al.*, 1998).

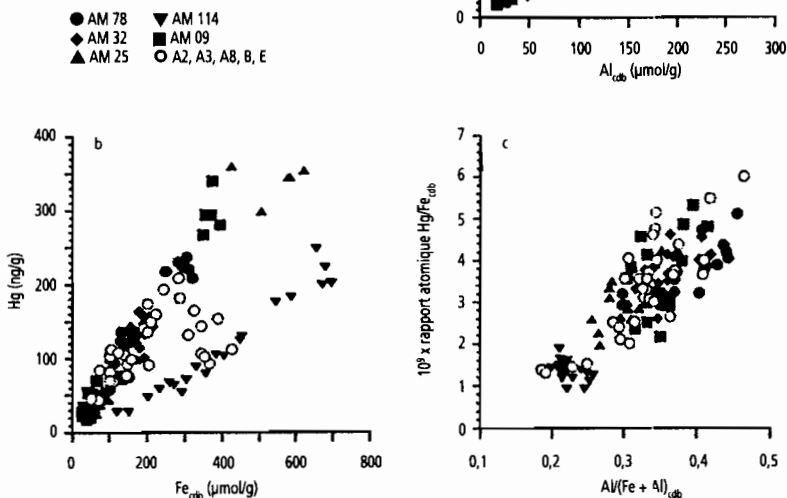
tions en oxyhydroxydes de Fe ( $Fe_{cdb}$ ) montre que la rétention du Hg est principalement contrôlée par ces oxyhydroxydes, une relation de proportionnalité entre ces teneurs n'est pas toujours observée entre les différents sols.

### Rétention par la matière organique

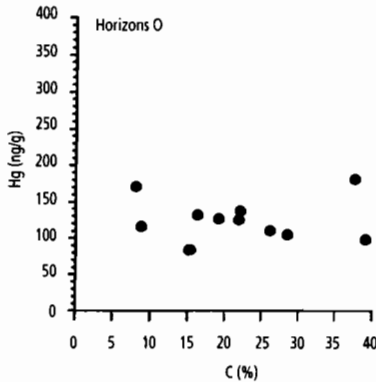
Dans les sols amazoniens, dans le bassin du Rio Negro et du Rio Tapajós au Brésil, ainsi qu'en Guyane dans le bassin de la Comté, aucune relation entre les concentrations de Hg et les quantités de matière organique n'a pu

Figure 3

Relations entre le mercure et les oxyhydroxydes de fer et d'aluminium dans différents sols et fractions granulométriques des sols de la vallée du Tapajós (d'après ROULET *et al.*, 1998).



être montrée. La figure 4 illustre les différentes relations obtenues dans les horizons des sols de la vallée du Tapajós (ROULET *et al.*, 1998). L'absence de relation quantitative n'exclut cependant pas un rôle non négligeable de la matière organique dans ces sols. En raison de la très forte affinité du Hg pour la matière organique par rapport à la matière minérale, la dynamique des différents composés organiques est très importante pour le comportement du Hg dans les sols (SCHUSTER, 1991). Cela explique généralement les niveaux élevés observés dans les horizons organiques des sols tempérés et boréaux (GRIGAL *et*



**Figure 4**

Relations entre le mercure et la matière organique dans les différents horizons des sols de la vallée du Tapajós (d'après ROULET *et al.*, 1998).

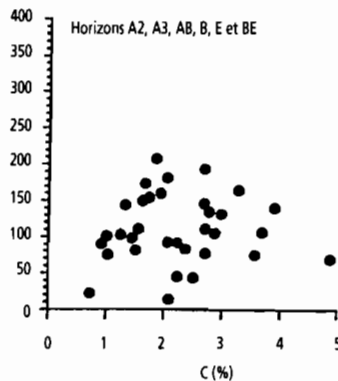
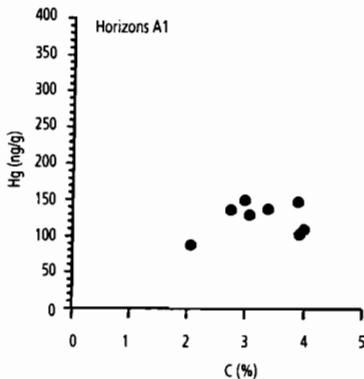
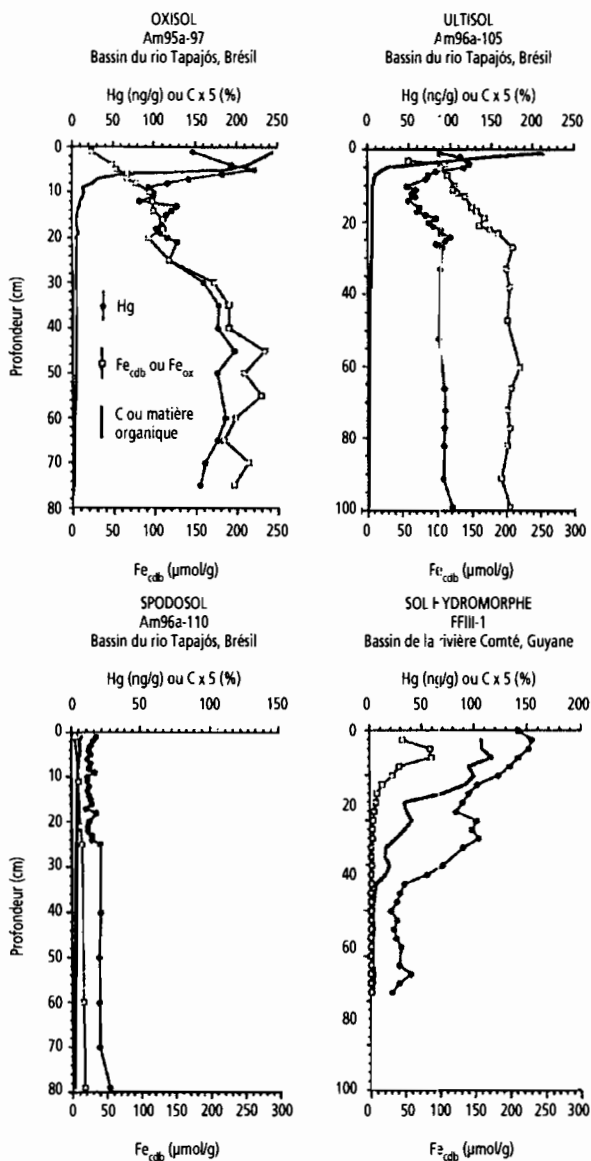
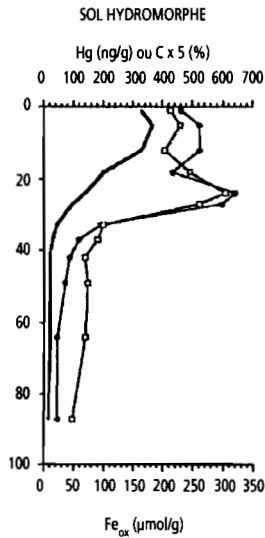
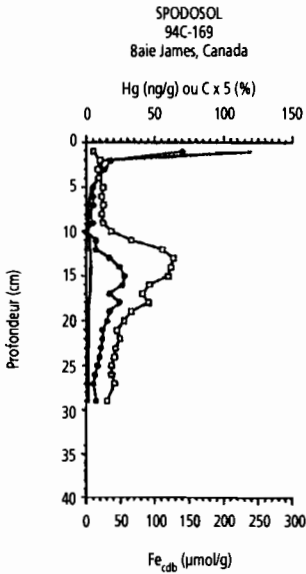
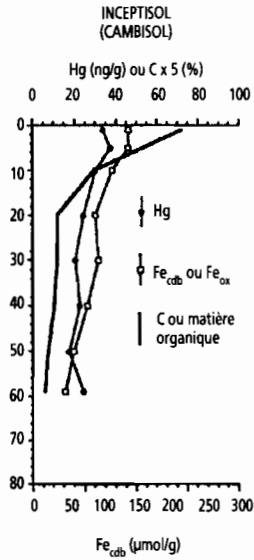
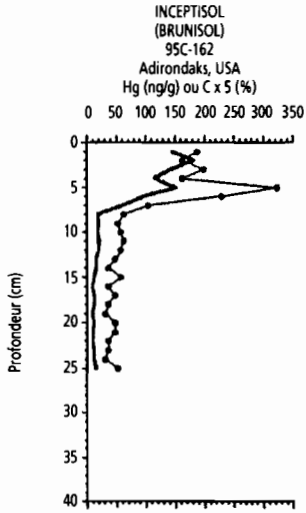


Figure 5

Comparaison des profils de surface du mercure, de la matière organique et des oxyhydroxydes de fer en fonction de la profondeur dans différents sols amazoniens, tempérés et boréaux (ANDERSSON, 1979 ; ROULET et LUCOTTE, 1995 ; CARON, 1997 ; ROULET *et al.*, 1998).

Sols amazoniens





Soils tempérés et boréaux

*al.*, 1994 ; GRONDIN *et al.*, 1995). Dans les sols amazoniens, lorsque l'horizon organique est suffisamment développé, une accumulation de Hg est également observée (fig. 5) sous la litière dans l'horizon le plus riche en humus brut (ROULET *et al.*, 1998). Cependant, les conditions pédoclimatiques (température, humidité) dans les sols tropicaux sont généralement favorables à une activité biologique élevée en permanence. Les litières forestières sont alors rapidement minéralisées (1 à 2 ans) et les horizons organiques généralement peu développés, ce qui limite l'accumulation du Hg en surface des sols.

Pour des oxisols de Guyane française, ROULET et LUCOTTE (1995) suggèrent que la pénétration du Hg en profondeur est en partie contrôlée par la mobilité des complexes du Hg avec les substances humiques provenant de la minéralisation de la matière organique des sols. En solution, le Hg a une plus grande affinité pour les acides humiques et fulviques que pour les ions inorganiques  $\text{Cl}^-$  et  $\text{OH}^-$ . Sous certaines conditions, ces substances humiques montrent une forte affinité pour les surfaces des oxyhydroxydes (TIPPING, 1981 ; XU et ALLARD, 1991 ; SCHUSTER, 1991). Ainsi, les complexes organiques solubles du Hg qui pénètrent les sols peuvent être réadsorbés par les oxyhydroxydes de Fe plus abondants en profondeur.

La matière organique semble jouer un double rôle dans le comportement du Hg dans les sols. Le Hg complexé par les composés organiques peut être retenu dans le sol aussi longtemps que la matière organique reste dans un état floclé, précipité ou adsorbé. Si les conditions changent, les composés organiques, y compris ceux complexant le Hg, peuvent passer en solution dans le sol et reprécipiter dans des horizons plus profonds où les conditions physico-chimiques favorisent cette précipitation, ou encore ils peuvent être lessivés à la surface des sols par les eaux de drainage. Les molécules organiques dissoutes augmentent la solubilité et la mobilité du Hg (TOST et BISQUE, 1972 ; MACLEAN, 1974). Cela est particulièrement vrai dans les environnements acides où les acides organiques des solutions percolantes peuvent ainsi littéralement lessiver le Hg qui est adsorbé sur les surfaces minérales. Seulement dans certaines conditions (surtout des horizons pauvres en matière organique ou des sols alcalins), l'adsorption du Hg est principalement contrôlée par l'interaction directe des surfaces inorganiques (SCHUSTER, 1991). Comme cela a été mentionné pour les oxyhydroxydes, ce n'est pas seulement la quantité mais aussi la qualité de la matière organique qui détermine sa capacité à retenir le Hg dans les sols.

Dans les sols amazoniens, la dynamique du Hg est dominée par les processus de complexation par les surfaces des oxyhydroxydes. S'il existe une relation avec la matière organique, elle n'est pas apparente en raison de la grande diversité des formes de matière organique mais aussi parce que le Hg semble à la fois adsorbé à la surface des oxyhydroxydes et à la surface de la matière organique, ces deux adsorbants pouvant être aussi liés eux-mêmes par complexation.

## *DISTRIBUTION DU Hg DANS LES SOLS*

Les conditions physico-chimiques varient fortement entre les différents types de sols et entre les différents horizons d'un même sol. La distribution du Hg est affectée par ces variations, et des patrons de distribution différents sont attendus entre les différents types de sols et horizons. Dans la plupart des sols, les concentrations de Hg varient avec la profondeur. En conséquence, la profondeur d'échantillonnage est de la plus haute importance, particulièrement pour les sols forestiers non remaniés. Dans le cas de comparaisons entre différents sols en conditions naturelles, les mêmes horizons mais aussi l'allure des patrons de distribution sont intéressants à comparer car, connaissant les processus de formation et d'évolution qui diffèrent d'un sol à l'autre, on peut comprendre aussi les différences de distribution du Hg. Des profils de distribution des concentrations de Hg en fonction de la profondeur dans les horizons de surface (< 1 m) de sols tropicaux d'Amazonie sont comparés à différents sols forestiers tempérés et boréaux dans la figure 5.

En surface des oxisols et des ultisols (fig. 5), la fraction argileuse disparaît car les conditions géochimiques (eaux diluées, acides organiques) y sont agressives et propices aux réactions de dissolution. Cet appauvrissement est compensé ici par la matière organique qui fixe le Hg en surface des profils. L'accumulation est maximale sous la litière (fig. 5). Cela n'est pas toujours aussi visible car cette adsorption dépend du développement de l'horizon organique et en particulier de l'épaisseur de l'humus brut (ROULET *et al.*, 1998). Dans les sols tropicaux, les horizons s'appauvrissent très vite en matière organique en profondeur. Les oxyhydroxydes métalliques prennent alors le relais de la matière organique pour la rétention du Hg, qui s'accumule en profondeur en suivant l'abondance de ces oxyhydroxydes. Dans les ultisols, sous l'influence du drainage latéral, l'appauvrissement en surface de la matrice argileuse, des oxyhydroxydes et du Hg s'accroît par rapport aux oxisols.

Les profils de distribution du Hg dans les oxisols et les ultisols se distinguent de ceux observés dans des sols argileux tempérés où la distribution du Hg semble dépendre de l'acidité (ANDERSSON, 1979). Dans les brunisols, inceptisols acides, le Hg s'accumule en surface dans l'horizon organique, avec une valeur maximale sous la surface au niveau de l'humus, puis décroît fortement en profondeur dans les horizons minéraux en accompagnant la décroissance de la matière organique. Dans les cambisols, inceptisols riches en argiles, calcaires, avec un pH autour de la neutralité (pH 6-8), la distribution verticale du Hg est plus régulière et suit davantage celle des oxyhydroxydes de Fe que celle de la matière organique. Les teneurs en Hg et en oxyhydroxydes de Fe dans les horizons minéraux de ces sols décroissent avec la profondeur et restent faibles en comparaison de celles mesurées dans les oxisols et les ultisols.

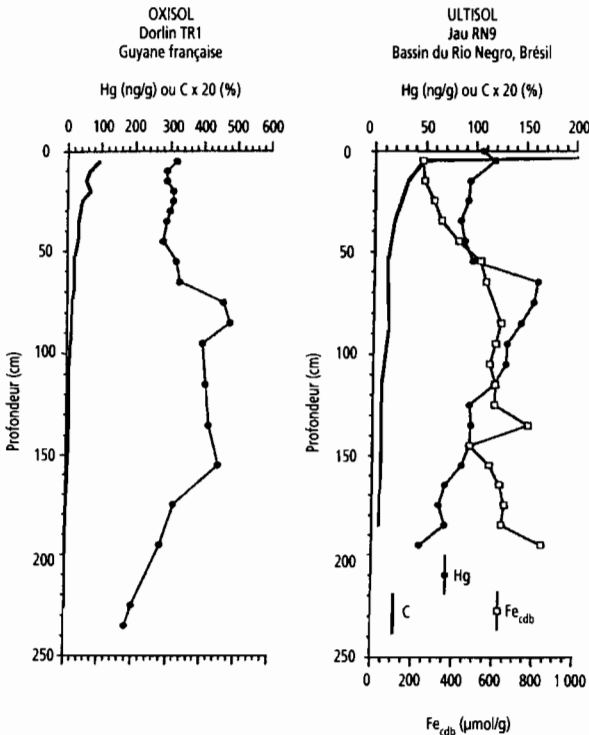
Dans les spodosols (podzols) tempérés et boréaux, avec un pH acide (pH 4-5), le Hg présente une première accumulation importante dans l'horizon organique de surface et une seconde accumulation en profondeur. La matière humique et le Hg associé sont lessivés dans l'horizon éluvié, et s'accumulent dans l'horizon spodique (ensemble des horizons illuviés  $B_h$  et  $B_{fe}$ ) où précipitent aussi les oxyhydroxydes de Fe. Dans les spodosols tropicaux, l'horizon spodique est souvent à plusieurs mètres en profondeur : parfois même absent (dans ce dernier cas, ce ne sont pas des spodosols au sens strict). L'exemple illustré dans la figure 5 correspond à un spodosol de la région de Santarém (bassin du Tapajós). L'horizon organique de surface y est quasi inexistant (région de savane arbustive), l'horizon éluvié très sableux est composé en grande partie de quartz résiduel et est fortement appauvri en oxyhydroxydes de Fe et en matière organique susceptibles d'adsorber le Hg, et l'horizon spodique n'est pas atteint à 1 m de profondeur.

Lorsque l'hydromorphie atteint les sols en surface, on observe généralement une accumulation de matière organique à cause de l'anaérobiose qui ralentit sa décomposition. L'anaérobiose entraîne également des conditions réductrices pour lesquelles les oxyhydroxydes de Fe sont instables. La plupart du Fe libéré reprécipite rapidement sous la surface. Dans les sols hydromorphes tempérés (pH 5,5-6) et amazoniens (pH 4,5-6,5), cette reprécipitation s'accompagne d'une accumulation de Hg. Le Fe et le Hg sont probablement transportés avec les eaux du sol à ce niveau, puis en partie adsorbés par l'abondante matière organique. Il y a précipitation des oxyhydroxydes de Fe dans un horizon distinct dans lequel le Hg s'accumule aussi.



L'horizon minéral est complètement éluvié et contient bien moins de Hg et de Fe que l'horizon organique.

Dans les profils de sols décrits précédemment, les horizons organiques accumulent tous plus ou moins du Hg. Ces profils illustrent le fait que l'horizon organique de la plupart des sols, quand il est suffisamment développé, joue le rôle d'un filtre adsorbant pour le Hg provenant des dépôts humides et de la chute des litières en surface. Cependant, les teneurs en Hg des horizons organiques ne peuvent en aucun cas être comparées directement avec celles des horizons minéraux (BRINGMARK, 1997), du fait de la densité très différente



**Figure 6**

Profils du mercure et de la matière organique en fonction de la profondeur (ZEIDEMANN, 1998 ; GRIMALDI et GRIMALDI, 1999).

des deux types de matériaux. La densité du sol étant différente, on peut avoir des teneurs très élevées par gramme de sol organique mais un stock de Hg finalement pas si élevé au total dans ces horizons (voir ci-après).

Les profils d'accumulation du Hg des sols très appauvris en argiles, par des processus de podzolisation ou de réduction (spodosols et sols hydromorphes), présentent les mêmes caractéristiques en milieu tempéré et tropical. En revanche, d'importantes différences entre les deux milieux sont notées dans le cas des sols plus argileux. Les oxisols et les ultisols amazoniens se distinguent nettement des inceptisols tempérés et boréaux par une accumulation importante d'oxyhydroxydes métalliques qui retiennent le Hg jusqu'en profondeur. Dans des sondages profonds (jusqu'à 2,5-3 m) en Guyane française et dans le bassin du Rio Negro (fig. 6), les teneurs en Hg atteignent des valeurs maximales entre 0,7 m et 1,5 m dans les horizons très argileux, les plus riches en oxyhydroxydes de Fe (GRIMALDI et GRIMALDI, 1999 ; GRIMALDI *et al.*, 2000). Les teneurs en Hg décroissent ensuite jusqu'à la saprolite où les valeurs sont minimales (GRIMALDI *et al.*, 2000). Les sols amazoniens sont beaucoup plus épais que les sols tempérés et boréaux, qui ne dépassent guère 2 m de profondeur au-dessus de la roche mère. Les oxisols des plateaux d'Amazonie centrale peuvent avoir une vingtaine de mètres de profondeur (LUCAS *et al.*, 1996). Pour ces sols, les bilans de matière montrent qu'il a fallu au moins 40 à 60 m de sédiments (formation sédimentaire Alter-do-Chão) pour former les profils actuels (LUCAS *et al.*, 1996). Ce sont des sols qui ont entre 15 et 30 millions d'années, ils sont donc très vieux en comparaison des sols qui se sont formés en milieu boréal après la dernière glaciation, il y a 5 000 à 8 000 ans.

## CONCENTRATIONS ET CHARGES DE Hg DANS LES SOLS

Dans le but de comparer les concentrations et les stocks de Hg des sols d'Amazonie entre eux et avec les sols tempérés et boréaux, différents horizons de sols forestiers non perturbés situés en dehors des ceintures mercurifères ont été regroupés dans le tableau II.

Dans les horizons organiques (O), les concentrations observées en Amazonie (60-220 ng/g) sont du même ordre de grandeur que celles rencontrées généralement en milieu tempéré et boréal (40-325 ng/g). Dans les horizons minéraux (C < 10 % ; horizons A et B), les concentrations de Hg

**Tableau II.** Concentrations et charges de mercure dans les sols amazoniens, tempérés et boréaux.

Type de sol	Région	Concentration de Hg (ng/g, poids sec)			$\Sigma$ QHg (mg/m <sup>2</sup> )		Références
		0	A	B	0-20	0-100 cm <sup>5</sup>	
<b>Sols tempérés et boréaux</b>							
Luvisol	Canada	5-34	23-66				GRACEY et STEWART, 1974 ; DUDAS et PAWLUCK, 1976 ; McKEAGUE et KLOSTERMAN, 1974
Chernozen (gris foncé)	Canada	1-25	5-30				DUDAS et PAWLUCK, 1976 ; McKEAGUE et KLOSTERMAN, 1974
Chernozen (noir et brun foncé)	Canada	19-35	13-71				DUDAS et PAWLUCK, 1976 ; McKEAGUE et KLOSTERMAN, 1974
Brunisol (inceptisol)	Canada, USA	80-325	26-80	20-60			McKEAGUE et KLOSTERMAN, 1974 ; CARON, 1997
Sols	Minnesota, USA	143	36	11	5,3	16	GRIGAL <i>et al.</i> , 1994
Spodosol	Canada <sup>1</sup> , Suède	40-330	10-50 <sup>2</sup>	10-124 <sup>4</sup>	3,2-6	10-34	AASTRUP <i>et al.</i> , 1991 ; McKEAGUE et KLOSTERMAN, 1974 ; CARON, 1997 ; LEE <i>et al.</i> , 1997 ; GRONDIN <i>et al.</i> , 1995
Histosol	Québec	50-250	10-30 <sup>2</sup>				GRONDIN <i>et al.</i> , 1995

**Tableau II (suite).** Concentrations et charges de mercure dans les sols amazoniens, tempérés et boréaux.

Type de sol	Région	Concentration de Hg (ng/g, poids sec)			∑ QHg (mg/m <sup>2</sup> )			Références
		0	A	B	0-20	0-100	cm*	
<b>Sols tropicaux d'Amazonie</b>								
Oxisol (Haplorthox)	Bassin de la Comté, Guyane française	180-219	240-320		63-69	320-350	ROULET et LUCOTTE, 1995	
Oxisol	Dorlin, Guyane française		250-300	300-500			GRIMALDI et GRIMALDI, 1998	
Oxisol (Acrorthox)	Bassin du Tapajós, Pará, Brésil	93-180	106-194	102-209	19-34	140-330	ROULET <i>et al.</i> , 1998 a	
Oxisol (Haplorthox)	Bassin du Negro, Amazonas, Brésil	68-75	50-95	110-160		110	ZEIDEMANN, 1998	
Oxisol	Bassin du Madeira, Amazonas, Brésil		232-439				LECHLER <i>et al.</i> , 1997	
Oxisol/ultisol	Bassin du Pedra Preta, Amapá, Brésil		100-430	150-300	39-73	170-390	FOSTIER <i>et al.</i> , 1999	
Ultisol	Bassin du Tocantins, Pará, Brésil	71	94	130	24	143	AULA <i>et al.</i> , 1994	
Ultisol (Tropodult, Paleodult)	Bassin du Tapajós, Pará, Brésil	84-111	44-103	99-112	10-26	72-179	ROULET <i>et al.</i> , 1998 a	
Ultisol (Paleodult, Plinthudult)	Bassin du Negro, Amazonas, Brésil	65-201	66-193	100-188		90-145	ZEIDEMANN, 1998	
Ultisol	Bassin du Jau/Negro, Amazonas, Brésil	106-109	46-118	9-170		85-270	ZEIDEMANN, 1998	
Spodosol (Trophumod)	Bassin du Tapajós, Pará, Brésil		14 <sup>2</sup>	23 <sup>3</sup>	4	35	ROULET <i>et al.</i> , 1998 a	

**Tableau II** (suite). Concentrations et charges de mercure dans les sols amazoniens, tempérés et boréaux.

Type de sol	Région	Concentration de Hg (ng/g, poids sec)			Σ QHg (mg/m <sup>2</sup> )		Références
		0	A	B	0-20	0-100 cm*	
Sols hydromorphes	Bassin de la Comté, Guyane française	60	67 <sup>2</sup>		13		ROULET et LUCOTTE, 1995
Sols hydromorphes	Dorlin, Guyane française		150-240				GRIMALDI et GRIMALDI, 1998
Sols alluviaux (Fluvent)	Bassin du Tapajós, Pará, Brésil	109-224	81-194**		11-26	57-119	ROULET <i>et al.</i> , 2001

<sup>1</sup> Sont exclus les sols atypiques comme définis par l'auteur.

<sup>2</sup> Horizons E.

<sup>3</sup> Horizons BE.

\*\* Sont inclus les horizons Bh.

\* Extrapolé à 1 m si nécessaire.

mesurées dans les oxisols et les ultisols d'Amazonie sont en revanche relativement élevées (40-500 ng/g) en comparaison des valeurs normalement trouvées dans ces horizons des sols tempérés et boréaux (10-80 ng/g). Les concentrations sont plus fortes dans les oxisols que dans les ultisols moins riches en oxyhydroxydes métalliques (ROULET *et al.*, 1998). Les valeurs maximales, de 300 à 500 ng/g, sont obtenues dans les horizons minéraux argileux d'oxisols microagrégés de la Guyane française, situés vers 1,5 m de profondeur (GRIMALDI et GRIMALDI, 1999). Des valeurs minimales sont enregistrées dans les horizons éluviés des spodosols (E), qu'ils soient tropicaux (10-20 ng/g) ou boréaux (10-50 ng/g).

Dans tous les horizons organiques, les stocks de Hg par centimètre d'épaisseur (50-300 µg/m<sup>2</sup>) sont similaires entre les différents types de sols, qu'ils soient tropicaux, tempérés ou boréaux (ROULET *et al.*, 1998). Les horizons

organiques ne sont généralement pas très développés dans les sols tropicaux (1-3 cm) et le stock de Hg y est par conséquent généralement négligeable en comparaison du stock dans les horizons minéraux sous-jacents, d'autant plus que la densité des horizons organiques est faible en comparaison de celle des horizons minéraux. Ces derniers représentent des quantités considérables de Hg par unité de surface, dans les oxisols et les ultisols, où le premier mètre sous l'horizon organique contient de 70 à 400 mg de Hg par mètre carré, soit jusqu'à dix fois plus que les charges cumulées sur la même profondeur dans les sols tempérés et boréaux ( $\Sigma$  QHg ; tabl. II).

### *INFLUENCE DES DÉPÔTS ATMOSPHÉRIQUES MODERNES SUR LES STOCKS DE Hg*

Dans un bassin versant non perturbé d'Amapá (Amazonie brésilienne), FOSTIER *et al.* (2000) observent que la majeure partie du Hg déposé sur les surfaces terrestres est retenue dans les sols. Ce Hg est déposé sur les horizons organiques où il peut s'accumuler plus ou moins temporairement en fonction du temps de séjour de la matière organique. Sa pénétration dans les sols est contrôlée par la dynamique de la matière organique (humification, minéralisation, solubilisation, lessivage...) (ROULET et LUCOTTE, 1995). En région amazonienne, la dégradation rapide de la matière organique en surface limite son accumulation. Dans les oxisols amazoniens, la majeure partie de la matière organique pénètre le sol sur 20 cm pour une période de 10 à 15 ans (TRUMBORE, 1993).

Dans les régions éloignées des sources directes de Hg, les dépôts actuels sur les surfaces terrestres, incluant la contribution des émissions de l'orpaillage et de la combustion de la biomasse forestière (déforestation) ainsi que toutes les autres sources régionales ou globales, sont annuellement de l'ordre de 10-25  $\mu\text{g}/\text{m}^2$  (tabl. I). Avec des dépôts au sol de cet ordre de grandeur, la charge cumulée sur les trente dernières années représente 300 à 750  $\mu\text{g}/\text{m}^2$ . Si nous considérons la dernière ruée vers l'or et la déforestation récente (période 1970-2000), responsables toutes deux de la totalité des dépôts atmosphériques modernes, ces deux activités représentent au plus 5 % du Hg accumulé dans les vingt premiers centimètres de la surface des oxisols forestiers (20 à 70  $\text{mg}/\text{m}^2$  ; tabl. II). Ce qui semble démontrer que la plupart du Hg rencontré dans les sols en région amazonienne est d'origine naturelle.

Plusieurs raisons peuvent expliquer la richesse relative des sols amazoniens en Hg dans une région où les roches ne sont pas particulièrement riches en ce métal. Les sols anciens de cette région ont pu accumuler du Hg provenant de l'atmosphère pendant plusieurs millions d'années en comparaison des sols relativement jeunes des régions tempérées et boréales (moins de 10 000 ans). Ce sont aussi des sols très riches en oxyhydroxydes métalliques où le Hg est adsorbé de manière très efficace. Enfin, ce sont des sols très altérés où le Hg peut être concentré relativement, par départ préférentiel des éléments plus solubles.

Un bilan de masse à l'échelle du bassin versant de Pedra Preta démontre que plus de 80 % du Hg déposé par les précipitations est accumulé dans les sols forestiers, le reste étant exporté par le drainage (FOSTIER *et al.*, 2000). Ce qui correspond aux observations faites en milieu tempéré et boréal où les sols retiennent généralement jusqu'à 90 % du Hg qui se dépose sur le milieu terrestre (AASTRUP *et al.*, 1991 ; MIERLE et INGRAM, 1991). Mais cette proportion de Hg apporté par les précipitations et se fixant dans le sol dépend aussi du fonctionnement hydrodynamique du sol, lui-même fonction du climat. Sur le bouclier guyanais, le ruissellement sous forêt est très variable, entre 4 et 26 % de la pluie par exemple sur les bassins versants du dispositif ECEREX (ROCHE, 1990), faisant varier en conséquence la part de l'eau qui s'infiltre dans le sol.

### ***EFFET DES POINTS SOURCES D'ÉMISSION SUR LES CHARGES ET LES CONCENTRATIONS DE Hg DANS LES SOLS***

Il est suggéré que les vapeurs de Hg<sup>0</sup> émises par le brûlage des amalgames devraient être facilement oxydées en Hg<sup>2+</sup>, puis dissoutes ou adsorbées et finalement déposées par les précipitations sèches et humides dans les forêts environnantes (MALM *et al.*, 1990). À partir de travaux sur l'atmosphère et les sols autour des commerces d'or de la ville de Pocone (MARINS *et al.*, 1991) et de Porto Velho (MALM *et al.*, 1991 ; PFEIFFER *et al.*, 1991), il semble que la majeure partie du Hg émis par la purification de l'or est déposée près des sources (PFEIFFER *et al.*, 1993), à l'exemple de la dispersion des vapeurs de Hg à partir de leurs sources industrielles (LINDQVIST et RHODE, 1985 ; FERRARA *et al.*, 1982). ROULET *et al.* (1999) ont observé que, de 50 à 350 km en aval des zones d'orpaillage, aucun gradient de concentration de Hg ne peut être mesuré dans les feuilles, les litières et les horizons organiques des forêts le long de la val-

lée du Tapajós. La plupart du Hg anthropique émis dans l'atmosphère par les activités d'orpaillage est déposée très près des sources (moins de 50 km) où de très fortes concentrations peuvent être trouvées dans les sols. Près des sites où les amalgames sont brûlés, en ville ou dans les camps d'orpailleurs, des valeurs aussi élevées que 500 à 65 000 ng/g peuvent être mesurées à la surface des sols (MALM *et al.*, 1991).

En Guyane française, près du camp de Dorlin, GRIMALDI *et al.* (2000) observent des concentrations allant jusqu'à 500 ng/g dans les soixante premiers centimètres d'un sol développé sur des alluvions des berges de la rivière Petit Inini. Ce sol alluvial, situé à l'aval d'une zone très « orpaillée », est caractérisé par des apports récents de sédiments. Dans le cas des sols alluviaux, les apports aquatiques peuvent être une source importante de Hg pendant les hautes eaux.

## **DEVENIR DU Hg ACCUMULÉ DANS LES SOLS AMAZONIENS**

### *ÉVOLUTION PÉDOGÉOCHIMIQUE DES COUVERTURES FERRALLITIQUES*

Deux études de cas, en Amazonie centrale sur formation sédimentaire (ROULET *et al.*, 1998) et en Guyane française sur le bouclier (GRIMALDI *et al.*, 2000), permettent de préciser le comportement du Hg du sol en fonction de l'évolution géochimique des couvertures pédologiques.

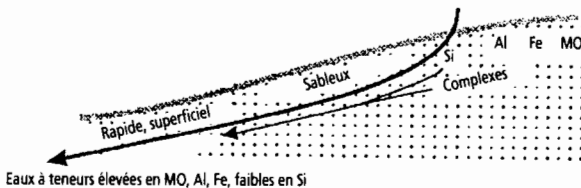
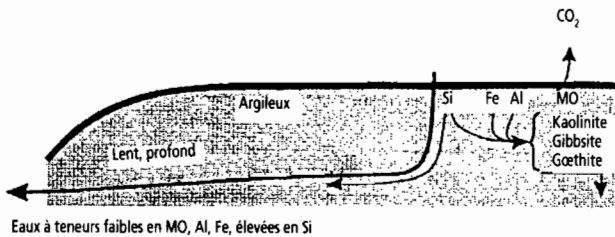
#### **Distribution spatiale du Hg dans les sols d'Amazonie centrale : sols de la vallée du Tapajós**

Dans cette étude, la distribution spatiale du Hg dans les sols est étudiée le long de la vallée du Tapajós (ROULET *et al.*, 1998), où on retrouve à l'échelle du paysage la même succession de sols que celle décrite le long de toposéquences sur la formation Alter-do-Chão par LUCAS *et al.* (1987). Les sols des plateaux sont formés d'épais horizons microagrégés constitués essentiellement de kaolinite. Ce sont des oxisols. Les sols deviennent de plus en plus sableux le long de la pente et rajeunis par le lessivage de surface (ultisols). Dans le bas des pentes assez longues, les sols sont constitués d'un épais horizon de quartz blanc, surmontant une saprolite quartzo-kaolinique. La



matière organique s'accumule en profondeur dans un horizon spodique noir au niveau de la transition entre l'horizon de sable blanc et la saprolite. Les sols ainsi formés sont des spodosols (podzols).

Les oxisols du plateau sont formés en place par la dissolution des minéraux primaires et la néoformation de kaolinite, de gœthite et de gibbsite (IRION, 1984 ; LUCAS *et al.*, 1987, 1996 ; fig. 7). Les minéraux secondaires sont en équilibre géochimique entre la dissolution et la précipitation. Ces processus sont principalement contrôlés par l'activité biologique de la forêt tropicale et par la dynamique de l'eau dans le sol (EYROLLE *et al.*, 1993 ; LUCAS *et al.*, 1993, 1996). L'activité de la forêt intervient à travers le recyclage de la silice en particulier (LUCAS *et al.*, 1993) et l'acidité organique qu'elle produit (GRIMALDI et PEDRO, 1996). La dynamique de l'eau influence les conditions géochimiques qui contrôlent les équilibres minéraux. Quand la solution s'infiltre lentement en profondeur dans le sol, le Si est en grande partie lessivé alors que l'Al est piégé sous forme de kaolinite ou de gibbsite, et le Fe sous forme d'oxyhydroxydes, le bilan étant donc une perte nette de Si (fig. 7). Les oxisols sont des sols microagrégés où la percolation de la solution du sol est principalement verticale à travers tout le profil jusqu'à la nappe phréa-



**Figure 7**  
Fonctionnement biogéochimique des oxisols et des spodosols (d'après Lucas *et al.*, 1996).

tique en profondeur (20-30 m) (LUCAS *et al.*, 1996). L'eau provenant de la nappe alimente des cours d'eau dite claire. Elle est riche en Si, pauvre en Al et Fe et en matière organique dissoute (fig. 7).

Sur les versants, les flux d'eau latéraux, plus rapides et chargés en composés organiques, exportent le Si, l'Al et le Fe sous forme de composés organométalliques et de microparticules (fig. 7) (EYROLLE *et al.*, 1993 ; LUCAS *et al.*, 1996). Il en résulte une érosion sélective (chimique ou particulaire) des argiles, conduisant à une arénisation du sol, c'est-à-dire une perte nette d'Al et un enrichissement relatif en Si sous la forme de quartz résiduel. À partir du bord du plateau et le long de la pente, les sols deviennent de plus en plus sableux.

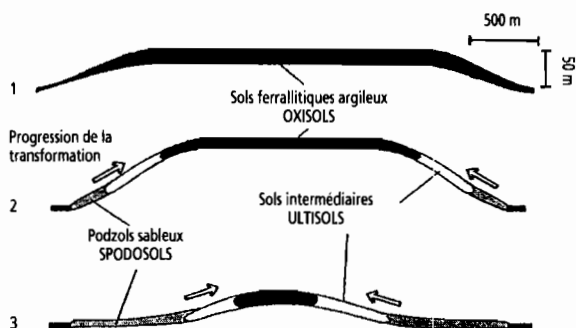
La podzolisation se développe en bas de la pente. L'horizon spodique peu perméable retient temporairement une nappe perchée à quelques mètres en profondeur. Cette nappe, indépendante de la nappe phréatique, alimente des cours d'eau dite noire à cause de sa forte charge en substances humiques dissoutes (voir annexe 3).

La dissolution de la kaolinite et des oxyhydroxydes de Fe est un processus clé qui explique la transformation progressive des oxisols des plateaux en ultisols puis en spodosols le long des pentes, tous ces sols étant formés à partir de la même roche mère (fig. 8). La cause de cette transformation est interne au système et liée à la circulation latérale des eaux de nappe dans la pente. À la surface des oxisols, le Hg est efficacement retenu par les oxyhydroxydes

Figure 8

Stades d'évolution des systèmes transformants oxisols-ultisols-spodosols du bassin de l'Amazonie.

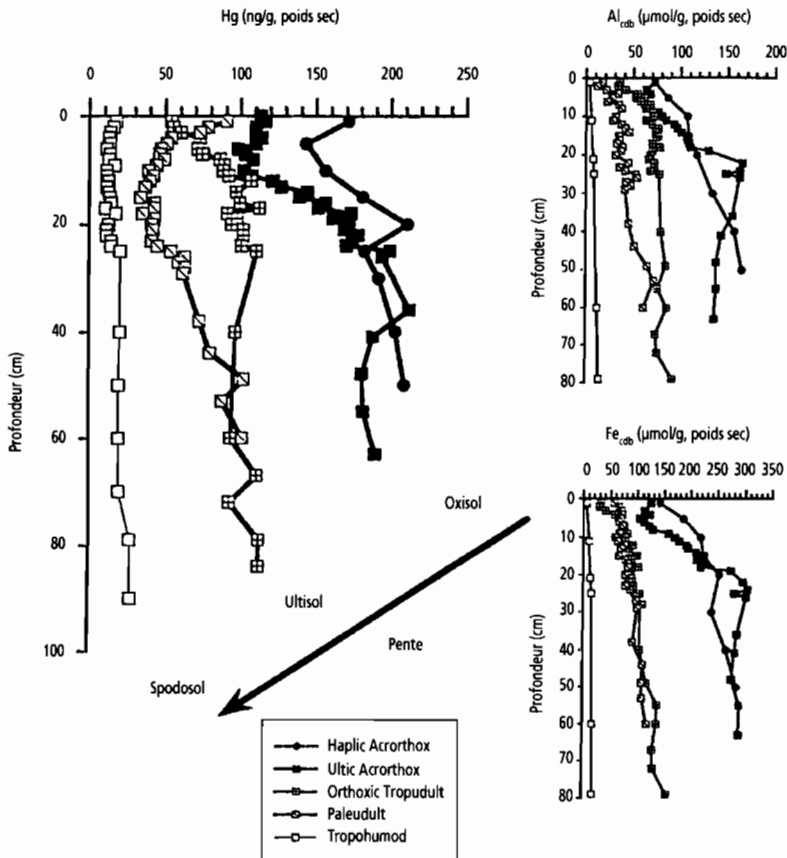
1. Plateau argileux, vallées peu incisées.
2. Développement de sols sablonneux au bas des versants.
3. Plaines sableuses à buttes témoins argileuses. D'après LUCAS *et al.*, 1996.



de Fe (gœthite plus ou moins substituée en Al) de la matrice argileuse (ROULET *et al.*, 1998). L'exportation du Fe et de l'Al le long des pentes s'accompagne d'une diminution progressive des teneurs en oxyhydroxydes métalliques dans les sols et par conséquent de la rétention du Hg (fig. 9). Des expériences *in situ* ont démontré que cette exportation était un

**Figure 9**

Profils du mercure et des oxyhydroxydes de fer et d'aluminium en fonction de la profondeur dans les différents sols le long des versants de la vallée du Tapajós (d'après ROULET *et al.*, 1998).



processus actuellement actif, en particulier durant la saison des pluies (RIGHI *et al.*, 1990). Il y a donc actuellement aussi exportation progressive le long des pentes vers les axes de drainage du Hg initialement accumulé dans les oxisols (fig. 9).

### **Distribution spatiale du Hg dans les sols sur le bouclier guyanais : étude d'une toposéquence (bassin de la Sinnamary, Guyane française)**

Dans cette étude, réalisée dans le cadre du programme « Mercure en Guyane » du CNRS-PEVS, la distribution spatiale du Hg est considérée le long d'une toposéquence (toposéquence de la crique Leblond), sur un granite Caraïbe, reliant un point haut du paysage à la rivière (GRIMALDI *et al.*, 2000). Cette toposéquence présente la diversité des sols observée sur le bouclier guyanais, qui est due à la transformation actuelle de la couverture pédologique par deux processus : rajeunissement par érosion (transformation des oxisols en ultisols) et hydromorphie (transformation des ultisols en sols hydromorphes) (FRITSCH *et al.*, 1986 ; BOULET *et al.*, 1993).

Le premier processus se développe le long des pentes, où l'érosion chimique et particulaire entraîne l'amincissement de l'horizon supérieur argileux, microagrégé et perméable, des oxisols, et le rapprochement de la surface, à moins d'un mètre de profondeur, d'un horizon d'altération de la roche (saprolite) peu perméable (BOULET *et al.*, 1993). Il se forme en conséquence, au-dessus de cet horizon, et au cours des averses, une nappe perchée (GUEHL, 1984 ; GRIMALDI et BOULET, 1990), qui s'écoule latéralement alors que le drainage est vertical, profond et rarement en conditions saturantes dans l'oxisol. L'amincissement de l'oxisol résulte des exportations de Si, Al et Fe, sous forme dissoute et particulaire, qui s'accroissent lorsque apparaissent les conditions favorables à l'écoulement latéral de la nappe (GRIMALDI *et al.*, 1992).

Le second processus se développe sur des replats sommitaux, dans des dépressions fermées où l'eau stagne durablement, ou bien à l'aval des versants en présence d'une nappe plus ou moins permanente. Dans les deux cas, la saturation en eau entraîne des conditions réductrices qui favorisent la dissolution de la fraction argileuse (oxyhydroxydes de fer et kaolinite). Sur les replats sommitaux, les produits de la dissolution se redistribuent en profondeur, tandis qu'à l'aval ils sont exportés par la nappe qui s'écoule vers les axes de drainage.

Ainsi, sur la toposéquence de la crique Leblond (GRIMALDI *et al.*, 2000), des sols argileux, finement structurés sur plusieurs mètres d'épaisseur et à drainage vertical profond (oxisols), coexistent avec des sols rajeunis (ultisols) où la saprolite apparaît à faible profondeur, induisant un drainage latéral superficiel. Les deux types de sols hydromorphes sont également représentés : sur un replat à mi-versant, un sol hydromorphe associé à des petites dépressions où l'eau s'accumule ; en bas de versant, un sol hydromorphe de bas-fond proche de la crique Leblond.

Les ultisols des versants, affectés par le processus d'érosion qui entraîne ou dissout la fraction argileuse (kaolinite et oxyhydroxydes de Fe), retiennent le Hg sur une moindre épaisseur que les oxisols. Il a été montré par ailleurs que ce processus d'érosion est toujours actif dans les conditions climatiques actuelles de la Guyane française. La nappe perchée qui se forme au cours des averses dans la couche superficielle du sol exporte les éléments mis en solution ou en suspension, donc aussi le Hg (GRIMALDI *et al.*, 2000).

Dans les sols hydromorphes des replats sommitaux, les conditions réductrices sont responsables de la dissolution des oxyhydroxydes de Fe et de la dégradation lente de la matière organique qui produit des molécules organiques très acides et complexantes. La fraction sableuse augmente relativement en surface du sol tandis que les complexes organométalliques migrent en profondeur, où ils précipitent à nouveau dans un horizon riche en Fe et en matière organique. Le Hg suit cette migration et s'accumule également en profondeur.

Les sols hydromorphes aval subissent ce même appauvrissement en argile (kaolinite et oxyhydroxydes de Fe) du fait de l'acidité et des conditions réductrices. Mais, dans ce cas, les éléments mis en solution sont exportés par la nappe qui s'écoule vers le réseau hydrographique. Les profils de sol sont donc également appauvris en Hg, y compris cette fois en profondeur. Les sols du bas-fond sont les moins concentrés en Hg de la séquence.

Les études sur différentes couvertures pédologiques d'Amazonie ont montré que l'évolution des sols sur les versants par le lessivage (érosion sélective), la podzolisation et l'hydromorphie conduit à une perte nette des constituants organiques et minéraux susceptibles de retenir le Hg (LUCAS *et al.*, 1984 ; CHAUVEL *et al.*, 1987 ; VEILLON, 1990 ; BOULET *et al.*, 1993 ; DUBROEUCCO et VOLKOFF, 1998). Ces processus sont responsables de la transformation d'oxisols en ultisols puis en podzols ou sols hydromorphes. Cette transformation

s'accompagne d'une exportation vers les axes de drainage du Hg initialement accumulé dans les oxisols. Le transport de Hg sous forme de matière dissoute, colloïdale et particulaire, provenant naturellement des sols, est à relier aux types d'eaux (claires et noires) rencontrés dans les bassins versants à travers le paysage amazonien (voir annexe 3).

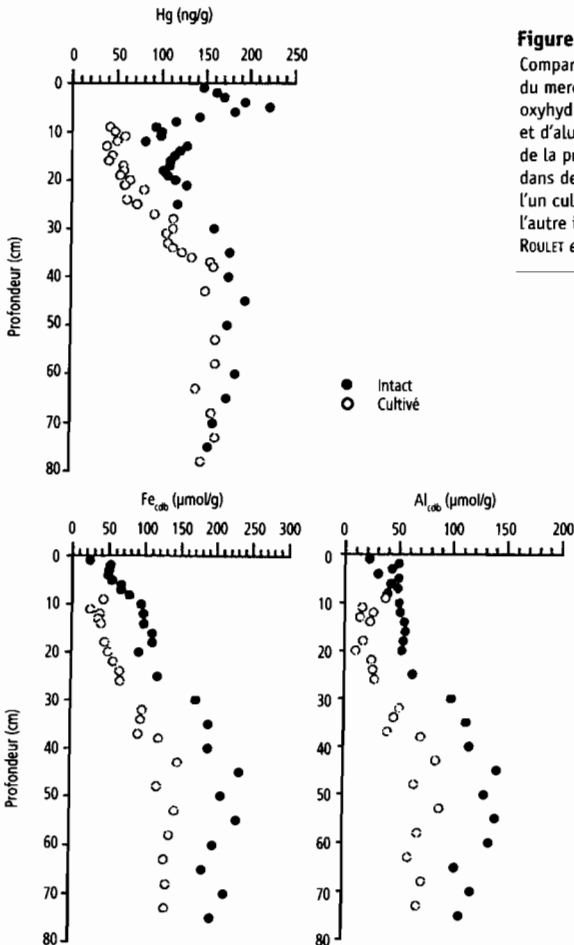
### ÉROSION D'ORIGINE ANTHROPIQUE

La principale conséquence de la déforestation est l'érosion des litières et des horizons organiques et minéraux les plus superficiels. Dans les oxisols et ultisols déboisés et cultivés de la vallée du Tapajós, le décapage de la surface organique et minérale des sols a lieu sous l'action des fortes pluies pendant la saison humide (ROULET *et al.*, 1998). Sur les fortes pentes, le ravinement peut représenter des pertes de 30 à 50 cm de la surface des sols. Dans les horizons qui restent en place, l'érosion sélective de la fraction argileuse est aussi favorisée par la déforestation le long des pentes. La figure 10 donne l'exemple d'un oxisol de haut de pente, déboisé et cultivé pendant six ans environ, comparé à un oxisol sous forêt sur le même site et dans la même position topographique (ROULET *et al.*, 1998). La perte des horizons de surface par érosion totale du sol et l'érosion sélective dans les horizons minéraux sous-jacents correspondent à un départ des oxyhydroxydes de Fe de la matrice argileuse et du Hg qui leur était associé.

BRAVARD et RIGHI (1988) ont observé dans le même type de sol que les argiles des horizons minéraux de surface A sont plus facilement dispersables par l'eau que celles des horizons minéraux B plus profonds. BOTSCHICK *et al.* (1996) notent que les sols en haut de pente sont plus sensibles à l'érosion que les sols plus ou moins podzolisés du bas de la pente. En fait, la mise en culture des sols augmente l'érosion sélective de la matrice argileuse et du Hg de l'horizon A qui avait lieu naturellement le long des pentes, sous l'influence de la percolation latérale (système de transformation des oxisols en ultisols). Les oxisols des plateaux sont moins affectés par ce type d'érosion mais une érosion totale du Hg de la surface est observée (ROULET *et al.*, 1998).

L'érosion des sols cultivés peut conduire à une exportation de quantités considérables de Hg des sols vers les axes de drainage. Les données de ROULET *et al.* (1998, 1999) montrent que l'érosion totale de surface peut remobiliser

de 200 à 4 600  $\mu\text{g}$  de Hg par mètre carré. L'érosion sélective devrait mobiliser en moyenne 500  $\mu\text{g}/\text{m}^2$  par centimètre d'épaisseur de sol ainsi érodé. Le ravinement des horizons minéraux dans les fortes pentes correspond à des pertes de 500 à 3 000  $\mu\text{g}/\text{m}^2$ .



Les activités minières elles-mêmes sont responsables d'une forte érosion des sols quand les sous-sols sont exploités pour l'or ou d'autres métaux (Cu, Mn, Al, Fe...). Les effets d'une mine de manganèse à ciel ouvert sont suivis dans le bassin versant de l'Amapá, étudié par FOSTIER *et al.* (2000). Les dépôts de Hg atmosphérique (*input*) représentent 80 % du Hg exporté (*output*) pour l'ensemble du bassin versant, et seulement 51 % à l'échelle du sous-bassin versant en partie déboisé et exploité par la mine. Les activités minières aurifères dans les sols d'Amazonie ont les mêmes effets importants sur l'érosion, observés en particulier dans les sédiments des lacs de la plaine d'inondation du bassin de la rivière Tartarugalzinho, en Amapá, par GUIMARÃES *et al.* (1999).

Bien que les transformations naturelles des couvertures pédologiques d'Amazonie soient lentes à l'échelle humaine, ces études montrent que les couvertures pédologiques sont fragiles et peuvent rapidement se dégrader lorsqu'elles sont exploitées sans tenir compte de leurs particularités (TRICART, 1975 ; FRITSCH et SARRAILH, 1986 ; CHAUVEL *et al.*, 1987). La forêt est la seule protection des surfaces des couvertures pédologiques contre les forts ruissellements dus aux précipitations en région amazonienne (TRICART, 1975). La déforestation, en mettant les sols à nu, cause une altération inévitable des horizons de surface des sols les plus fragiles et est responsable de l'érosion du Hg accumulé dans les couvertures pédologiques. Pour conclure, toute activité anthropique qui accroît l'érosion des couvertures pédologiques en Amazonie (routes, mines, agriculture...) est susceptible d'augmenter considérablement l'exportation vers les axes de drainage du Hg accumulé dans les sols.

## INONDATIONS

Lorsqu'on considère les effets de l'inondation des sols en Amazonie, il est nécessaire de distinguer les inondations naturelles et saisonnières des sols alluviaux dans les vallées et les inondations permanentes des sols de terre ferme par la mise en eau des réservoirs. Dans les deux cas, cependant, l'inondation modifie les conditions physico-chimiques du milieu, avec en particulier la mise en place de conditions réductrices favorisées par la biodégradation de la matière organique fraîchement inondée.



## Réduction

Dans la plaine d'inondation du Tapajós, malgré la mise en place de conditions réductrices ( $-150 \text{ mV} < E_h < -180 \text{ mV}$ ), les profils du  $\text{Fe}_{\text{cdb}}$  et du Hg des sols des forêts d'*igapó* (sols alluviaux argilo-sableux) ne semblent pas varier entre les zones exondées et inondées (ROULET *et al.*, 2001 ; fig. 11). Le  $\text{Fe}_{\text{cdb}}$  ne suit pas non plus le gradient d'oxydoréduction (ROULET *et al.*, 2001). En fait, ces sols contiennent au départ relativement peu d'oxyhydroxydes de Fe et de Hg car ce sont des sols d'environnement semi-aquatique réduit presque six mois par an. Le Hg tend à s'accumuler préférentiellement en surface, au niveau des horizons organiques. Les concentrations y sont élevées mais ne représentent pas des stocks élevés (ROULET *et al.*, 2001).

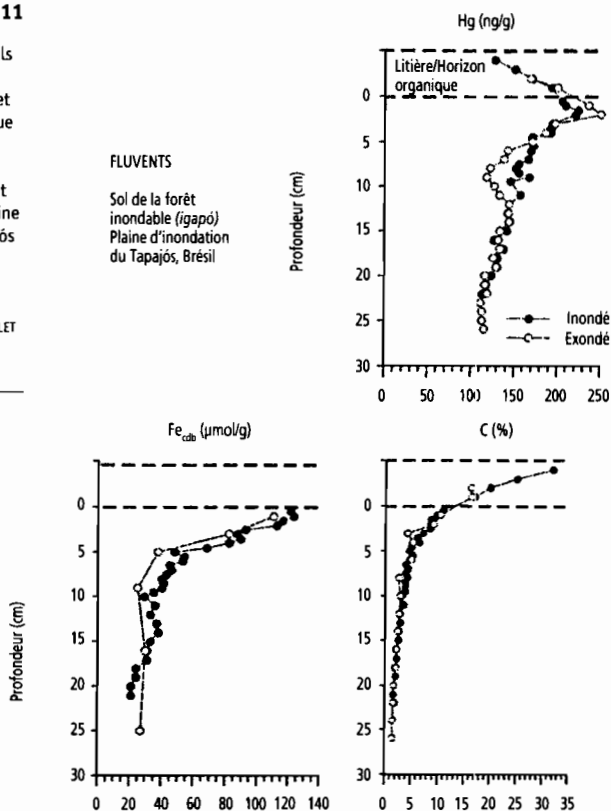
Dans le petit réservoir de la SAOR, en Guyane française, outre les sols réduits hydromorphes des bas-fonds, des sols normalement oxydés (oxisols et ultisols), relativement riches en oxyhydroxydes de Fe, ont été inondés à la suite de la mise en eau. La mise en place de conditions réductrices a entraîné une dissolution des oxyhydroxydes de Fe de la surface de ces sols (ROULET et LUCOTTE, 1995). Après huit ans d'inondation, les oxisols de terre ferme ont perdu 20 % environ de leur Hg du fait de la dissolution de 25 à 40 % des oxyhydroxydes de Fe et de la migration hors des sols de substances humiques mobiles (fig. 11) (ROULET et LUCOTTE, 1995). Les horizons organiques contiennent peu de Hg par rapport aux horizons minéraux. Le relargage de Hg dû à la décomposition de la matière organique est négligeable au regard du relargage dû à la destruction des oxyhydroxydes par réduction dans les horizons minéraux riches en Hg. De tels processus sont probablement aussi actifs au fond des réservoirs de Tucurui en Amazonie brésilienne et de Petit-Saut en Guyane française (DUMESTRE *et al.*, 1997).

## Transformation en méthylmercure

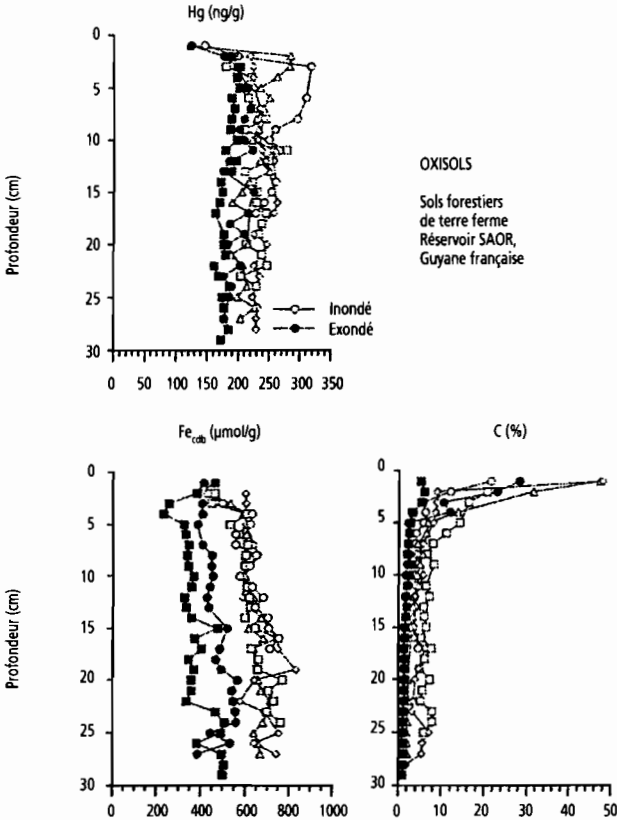
Plusieurs travaux ont montré que des bactéries (BECKERT *et al.*, 1974), des champignons (FISCHER *et al.*, 1995) et même les acides humiques et fulviques (ROGERS, 1977) des sols forestiers étaient capables de méthyler le Hg (voir annexe 5). Dans les forêts tempérées, la concentration en MeHg atteint un maximum au niveau de l'humus, sous les litières en surface des sols (inceptisols et spodosols). Ce MeHg peut provenir du dépôt des litières ou de la méthylation dans le sol lors de la décomposition des litières. Les niveaux de

Figure 11

Comparaison des profils du mercure, des oxyhydroxides de fer et de la matière organique en fonction de la profondeur, en conditions inondées et exondées, dans la plaine d'inondation du Tapajós (d'après ROULET *et al.*, 2001) et dans un réservoir en Guyane française (d'après ROULET et LUCOTTE, 1995).



MeHg restent cependant faibles ( $< 1$  ng/g). Le MeHg stocké au niveau des humus forestiers de type mor représente généralement moins de 1 % du Hg total (LEE *et al.*, 1994 ; SCHWESIG *et al.*, 1999). En revanche, dans les sols de bas-fond couverts de tourbières (histosols) près des ruisseaux, on trouve de plus fortes concentrations et quantités de MeHg accumulées. Ces exemples illustrent le fait que la méthylation du Hg dans les sols prend normalement place lorsque les conditions en oxygène sont faibles et semble favorisée par la

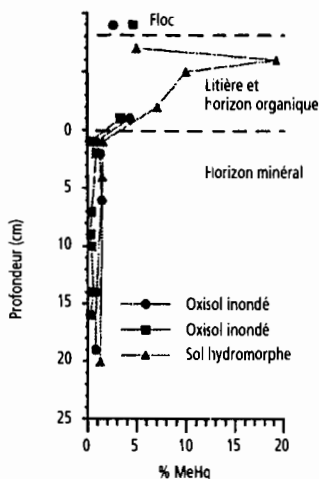


présence de bactéries sulfatoréductrices (GILMOUR *et al.*, 1992 ; KERRY *et al.*, 1991). Plusieurs études récentes montrent l'importance de la formation du MeHg, particulièrement au niveau des horizons organiques des zones ripariennes (LEE *et al.*, 1994 ; ST. LOUIS *et al.*, 1994 ; BISHOP *et al.*, 1995). Les processus de décomposition de la matière organique inondée et le relargage des sous-produits de cette décomposition (éléments nutritifs, par exemple) semblent promouvoir la méthylation du Hg (BODALY *et al.*, 1997). Les taux de

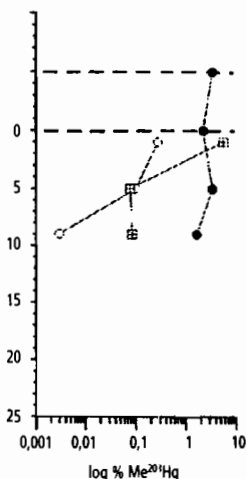
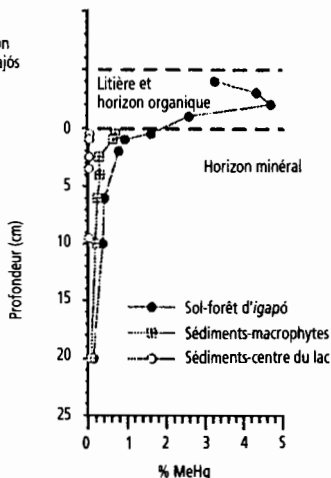
Figure 12

Profils du méthylmercure et des taux de méthylation en fonction de la profondeur dans la plaine d'inondation du Tapajós (d'après ROULET *et al.*, 2001) et dans un réservoir en Guyane française (d'après ROULET et LUCOTTE, 1995).

Guyane française  
Réservoir SAOR  
Bassin de la Comté



Brésil  
Plaine d'inondation  
Bassin du Rio Tapajós



méthylation sont aussi beaucoup plus rapides en milieu anaérobie que dans les environnements aérobie, l'oxygène étant consommé lors de la décomposition de la matière organique de la surface des sols inondés.

Dans la plaine d'inondation du Tapajós, l'inondation stimule la méthylation nette du Hg (GUIMARÃES *et al.*, 2000) et l'accumulation du MeHg (Roulet *et al.*, 2001) à la surface des sols d'*igapó* (forêt inondable). L'inondation saisonnière a pour effet de tripler les concentrations de MeHg mesurées en surface des sols. Les litières et les horizons organiques inondés contiennent 10 à 20 fois plus de MeHg que les sédiments au centre des lacs, les taux nets de méthylation y étant également plus importants (fig. 12). La décomposition de matière organique fraîche et labile, en conditions d'anaérobiose, à la surface des sols d'*igapó* après l'inondation saisonnière semble être le principal facteur conduisant à la production de MeHg (ROULET *et al.*, 2001).

La même accumulation de MeHg est observée dans les oxisols inondés depuis huit ans du réservoir de la SAOR (fig. 12). La plus forte accumulation de MeHg (5-20 % du Hg total) est enregistrée à la surface des sols hydro-morphes inondés qui présentent aussi une plus importante accumulation de matière organique (ROULET et LUCOTTE, 1995).

## VOLATILISATION

Comme la surface des plans d'eau, les sols et la végétation sont des sources de Hg<sup>0</sup> dans l'atmosphère. Des travaux récents ont montré que la température, la lumière, les mouvements d'air étaient des paramètres importants pour les échanges gazeux entre les surfaces terrestres et l'atmosphère (POISSANT et CASIMIR, 1998). Les conditions météorologiques jouent donc un rôle majeur dans la volatilisation du Hg<sup>0</sup>.

Les résultats obtenus par AMOUREUX *et al.* (1999) en Guyane française indiquent que ces facteurs jouent un rôle similaire en forêt tropicale. Dans cette étude, des échantillons d'air ont été collectés au camp d'orpailleurs de Dorlin, en hauteur, au-dessus d'une surface déforestée et ouverte, et sous forêt en aval du camp sur les berges de la rivière Petit Inini. Les mesures de Hg<sup>0</sup> indiquent que le Hg peut non seulement provenir des sources locales anthropiques (orpaillage) mais aussi de sources naturelles. Le Hg<sup>0</sup> peut être émis par la végétation et la surface de la rivière, comme le mentionnent ces auteurs, mais aussi probablement par la surface des sols. Les échantillons collectés en hauteur et en milieu déboisé représentent la couche bien mélangée qu'on retrouve au-dessus de la canopée de la forêt et qui peut être considérée comme le

niveau de base des concentrations en  $Hg^0$  dans le bassin pour la période étudiée (AMOUROUX *et al.*, 1999). D'un autre côté, les plus fortes concentrations observées au-dessus du sol dans la forêt peuvent être le résultat d'une sorte d'effet de serre retenant le  $Hg^0$  sous la canopée.

Il apparaît que le cycle atmosphérique dans la forêt tropicale est probablement plus dynamique que dans les environnements tempérés déjà bien étudiés, et qu'il nécessite des études plus approfondies (AMOUROUX *et al.*, 1999). Finalement, la part des émissions des sols, comparée aux dépôts de Hg, ainsi que leur rôle dans le cycle interne sous forêt du  $Hg^0$  doivent être quantifiés afin de développer des bilans de masse plus précis du Hg dans les bassins versants forestiers (LINDBERG *et al.*, 1992).

## CONCLUSION

Les sols amazoniens sont relativement riches en Hg par rapport aux sols des régions tempérées et boréales. Il y est en majeure partie retenu par les oxyhydroxydes de Fe, soit directement, soit indirectement par l'intermédiaire des substances humiques complexantes adsorbées sur les surfaces minérales. Le Hg présent dans les sols d'Amazonie est essentiellement d'origine naturelle, sauf très localement à proximité de sources anthropiques modernes (mines ou orpaillage). Les sols constituent donc un réservoir majeur de Hg d'origine naturelle en région amazonienne, susceptible d'être remobilisé par différents processus.

L'évolution pédogéochimique des surfaces terrestres d'Amazonie conduit à une exportation du Hg initialement présent dans les sols vers les axes de drainage. Les systèmes transformants oxisols-ultisols-spodosols et oxisols-ultisols-sols hydromorphes, caractéristiques de nombreuses formations en Amazonie, sont en effet responsables de l'exportation lente du Hg accumulé naturellement sur plusieurs milliers, voire plusieurs millions, d'années dans les sols. L'érosion de ces derniers, suite à la déforestation et à leur exploitation agricole ou minière, conduit en revanche à une forte augmentation de l'exportation du Hg sous forme particulière vers les axes de drainage. L'inondation des sols, après la mise en place d'un réservoir, peut augmenter la production et l'accumulation du MeHg dans les horizons organiques. Elle peut aussi per-

mettre le relargage du Hg vers la colonne d'eau du fait de la réduction et de la dissolution des oxyhydroxydes de Fe.

Enfin, il faut noter que la volatilisation et le cycle sol-atmosphère-végétation du Hg sous forêt sont complètement inconnus, ce qui empêche une interprétation complète du cycle du Hg en milieu terrestre amazonien.

## [ Références bibliographiques ]

- AASTRUP M., JOHNSON J., BRINGMARK E., BRINGMARK I., IVERFELDT Å., 1991. Occurrence and transport of mercury within a small catchment area. *Water Air Soil Pollut.*, 56 : 155-167.
- AMOUREUX D., WASSERMAN J.C., TESSIER E., DONARD O.F.X., 1999. Elemental mercury in the atmosphere of a tropical amazonian forest (French Guiana). *Environ. Sci. Technol.*, 33 : 3044-3048.
- ANDERSSON A., 1970. On the geochemical of mercury. *Grundförbättring*, 20 : 95-105.
- ANDERSSON A., 1979. « Mercury in soils ». In NRIAGU J. (éd.) : *The biogeochemistry of mercury in the environment*, Amsterdam, Elsevier/North-Holland Biomedical Press : 79-112.
- ARTAXO P., STORMS H., BRUYNSEELS F., VAN GRIEKEN R., MAENHAUT A.W., 1988. Composition and sources of aerosols from the Amazon basin. *J. Geophys. Res.*, 93 : 1605-1615.
- AULA I., BRAUNSCHEWELER H., LAINO T., MALIN I., PORVARI P., HATANAKA T., LODENIUS M., JURAS A., 1994. « Levels of mercury in the Tucuruí Reservoir and its surrounding area in Pará, Brazil ». In WATRAS C.J., HUCKABEE J.W. (éd.) : 21-40.
- BARBOSA J.P., MELAMED R., VILLAS-BOAS R. (éd.), 1999. *Proceedings of the Fifth International Conference on Mercury as a global pollutant (May 23-27 1999, Rio de Janeiro, Brasil)*, Book of abstracts, Rio de Janeiro, Centro de Tecnologia Mineral, 592 p.
- BECKERT W.F., MOGHISSI W.F., AU F.H.F., BRETTHAUER E.W., MCFARLANE J.C., 1974. Formation of methylmercury in terrestrial environment. *Nature*, 249 : 674-675.
- BIGHAM J.M., GOLDEN D.C., BUOL S.W., WEED S.B., BOWEN L.H., 1978. Iron oxide mineralogy of well-drained Ultisols and Oxisols. II. Influence on color, surface area, and phosphate retention. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 42 : 825-830.
- BISHOP K., LEE Y.H., PETTERSEN C., ALLARD B., 1995. Methylmercury in runoff from the Svartberget Catchment in Northern Sweden during a stormflow episode. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 221-224.
- BODALY R.A., ST. LOUIS V.L., PATERSON M.J., FUDGE R.J.P., HALL B.D., ROSENBERG D.M., RUDD J.W.M., 1997. « Bioaccumulation of mercury in the aquatic food chain in newly flooded areas ». In SIGEL A.,

- SIGEL H. (éd.) : *Metal ions in biological systems*, New York, Marcel Dekker : 259-287.
- BORGAARD O.K., 1982. The influence of iron oxides on the surface areas of soils. *J. Soil Sci.*, 33 : 443-449.
- BOTSCHKE J., FERRAZ J., JAHNEL M., SKOWRONEK A., 1996. Soil chemical properties of a toposequence under primary rain forest in the Itacoatiara vicinity (Amazonas, Brasil). *Geoderma*, 72 : 119-132.
- BOULET R., LUCAS Y., FRITSCH E., PAQUET H., 1993. « Géochimie des paysages : le rôle des couvertures pédologiques ». In : *Sédimentologie et géochimie de la surface*, à la mémoire de Georges Millot, Paris, Académie des sciences : 55-76.
- BRAVARD S., RIGHI D., 1988. Characteristics of clays in an oxisol-spodosol toposequence in Amazonia (Brazil). *Clay Miner.*, 23 : 279-289.
- BRINGMARK L., 1997. « Accumulation of mercury in soil and effects on soil biota ». In SIGEL A., SIGEL H. (éd.) : *Metals ions in biological systems. Vol. 34 : Mercury and its effects on environment and biology*, New York, Marcel Dekker : 161-184.
- CARON B., 1997. Origine, ampleur et devenir des dépôts atmosphériques de mercure et de plomb du Moyen-Nord québécois, M.Sc. dissertation, univ. Québec, Montréal.
- CHAUVEL A., LUCAS Y., BOULET R., 1987. On the genesis of soil mantle of the region of Manaus, Central Amazonia, Brazil. *Experientia*, 43 : 234-241.
- CHAZIN J.D., ALLEN M.K., RODGER B.C., 1995. Measurement of mercury deposition using passive samplers based swedish (IVL)-design. *Atmos. Environ.*, 29 : 1201-1209.
- COLLINS C.R., SHERMAN D.M., RAGNARSDOTTIR K.V., 1999. Surface complexation of Hg<sup>2+</sup> on goethite : mechanism from EXAFS spectroscopy and density functional calculations. *J. Colloid Interface Sci.*, 219 : 345-350.
- DUBROEUQ D., VOLKOFF B., 1998. From oxisols to spodosols and histosols : evolution of the soil mantles in the Rio Negro basin. *Catena*, 32 : 245-280.
- DUDAS M.J., PAWLUK S., 1976. The nature of mercury in Chernozemic and Luvisolic soils in Alberta. *Can. J. Soil Sci.*, 56 : 413-423.
- DUMESTRE J.F., LABROUE L., GALY-LACAUX C., REYNOUARD C., RICHARD S., 1997. Biomasse et activités bactériennes dans la retenue et à l'aval du barrage de Petit-Saut (Guyane) : influence sur les émissions de méthane et la consommation d'oxygène. *Hydroécol. Appl.*, 9 : 139-167.
- EYROLLE F., FÉVRIER D., BENAÏM J.-Y., 1993. Etude par DPASV de l'aptitude de la matière organique colloïdale à fixer et à transporter les métaux : exemples de bassins versants en zone tropicale. *Environ. Technol.*, 14 : 701-717.
- FADINI P.S., JARDIM W.F., 1999. « Levels of mercury in Negro River basin in Amazon, Brazil ». In BARBOSA J.P., MELAMED R., VILLAS-BOAS R. (éd.) : 160.
- FEICK G., JOHANSON E.E., YEAPLE D.S., 1972. *Control of mercury contamination in fresh water sediments*. Washington, Office of Research and Monitoring, Environ. Prot. Technol Ser. EPA-R2-72-077.
- FELLER C., FRANCOIS C., VILLEMIN G., PORTAL J.-M., TOUTAIN F., MOREL J.-L., 1991. Nature des matières organiques asso-



- ciées aux fractions argileuses d'un sol ferrallitique. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 312 : 1491-1497.
- FERRARA F., PETRODINO A., MASERTI E., SERITTI A., BARGHIGIANI C., 1982. The biogeochemical cycle of mercury in the Mediterranean. Part II. Mercury in the atmosphere, aerosol and in rain of a northern Tyrrhenian area. *Environ. Technol. Lett.*, 3 : 449-456.
- FISCHER R.G., RAPSOMANIKIS S., ANDRAE M.O., 1995. Bioaccumulation of methylmercury and transformation of inorganic mercury by macrofungi. *Environ. Sci. Technol.*, 29 : 993-999.
- FORBES E.A., POSNER A.M., QUIRK J.P., 1974. The specific adsorption of inorganic Hg(II) species and Co(III) complex ions on goethite. *J. Colloid Interface Sci.*, 49 : 403-409.
- FORTI M.C., BOULET R., MELFI A.J., NEAL C., 2000. Hydrogeochemistry of a small catchment in Northeastern Amazonia : a comparison between natural with deforested parts of the catchment (Serra do Navio, Amapá State, Brazil). *Water Air Soil Pollut.*, 118 : 263-279.
- FOSTIER A.-H., OLIVEIRA S.M.B., GUIMARÃES J.R.D., FORTI M.C., MELFI A.J., BOULET R., FAVARO D.I.T., 1999. « Mercury accumulation in natural forested Amazonian soils ». In BARBOSA J.P., MELAMED R., VILLAS-BOAS R. (éd.) : 557.
- FOSTIER A.-H., FORTI M.C., GUIMARÃES J.R.D., MELFI A.J., BOULET R., ESPÍRITO SANTO C.M., KRUG F.J., 2000. Mercury fluxes in a natural forested Amazonian catchment (Serra do Navio, Amapá State, Brazil). *Sci. Total Environ.*, 260 : 201-211.
- FRITSCH E., BOULET R., BOCQUIER G., DOSSO M., HUMBEL F.X., 1986. Les systèmes transformants d'une formation supergène de Guyane française et leurs modes de représentation. *Cah. Orstom, sér. Pédol.*, 22 : 361-395.
- FRITSCH J.-M., SARRAILH J.-M., 1986. Les transports solides dans l'écosystème forestier tropical humide guyanais : effet du défrichement et de l'aménagement de pâturage. *Cah. Orstom, sér. Pédol.*, 22 : 209-222.
- GILMOUR C.C., HENTY E.A., MITCHELL R., 1992. Sulfate stimulation of mercury methylation in freshwater sediments. *Environ. Sci. Technol.*, 26 : 2281-2287.
- GRACEY H.I., STEWART J.W.B., 1974. Distribution of mercury in Saskatchewan soils and crops. *Can. J. Soil Sci.*, 54 : 105-108.
- GRIGAL D.F., NATER E.A., HOMANN P.S., 1994. « Spatial distribution patterns of mercury in an East-Central Minnesota landscape ». In WATRAS C.J., HUCKABEE J.W. (éd.) : 305-312.
- GRIMALDI M., BOULET R., 1990. Relation entre l'espace poral et le fonctionnement hydrodynamique d'une couverture pédologique sur socle en Guyane française. *Cah. Orstom, sér. Pédol.*, 25 : 263-275.
- GRIMALDI C., GRIMALDI M., BOULET R., 1992. « Etude d'un système de transformation sur schiste en Guyane française. Approches morphologique, géochimique et hydrodynamique ». In : *Organisation et fonctionnement des altérites et des sols (Bondy, France, 5-9 février 1990)*, Paris, Orstom : 81-98.
- GRIMALDI C., FRITSCH E., BOULET R., 1994. Composition chimique des eaux de nappe et évolution d'un matériau ferrallitique en présence du système muscovite-kaolinite-quartz. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 319, sér. IIa : 1383-1389.

- GRIMALDI C., PEDRO G., 1996. Importance de l'hydrolyse acide dans les systèmes pédologiques des régions tropicales humides. Rôle de la forêt et conséquences sur la genèse des sables blancs tropicaux. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 323, sér. IIa : 483-492.
- GRIMALDI C., GRIMALDI M., 1999. *Programme Mercure en Guyane du CNRS-PEVS, volet Sols. Distribution spatiale du mercure dans les sols. Rapport de mission de juin 1998 à Dordin*. Paris, CNRS-PEVS.
- GRIMALDI M., GRIMALDI C., DUTIN G., 2000. *Programme Mercure en Guyane du CNRS-PEVS, volet Sols. Distribution spatiale du mercure dans les sols. Rapport de mission de juin 1999 à Petit-Saut*. Paris, CNRS-PEVS.
- GRONDIN A., LUCOTTE M., MUCCI A., FORTIN B., 1995. Mercury and lead profiles and burdens in soils of Quebec (Canada) before and after flooding. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 52 : 2493-2506.
- GUEHL J.-M., 1984. Dynamique de l'eau dans le sol en forêt tropicale humide guyanaise. Influence de la couverture pédologique. *Ann. Sci. For.*, 41 : 195-236.
- GUIMARÃES J.R.D., FOSTIER A.H., FORTI M.C., MELFI J.A., KEHRIG H., MAURO J.B.N., MALM O., KRUG J.F., 1999. Mercury in human and environmental samples from two lakes in Amapá, Brazilian Amazon. *Ambio*, 28 : 296-301.
- GUIMARÃES J.R.D., ROULET M., LUCOTTE M., MERGLER D., 2000. Mercury methylation potentials along a lake-forest transect in the Tapajós river floodplain, Brazilian Amazon : seasonal and vertical variations. *Sci. Total Environ.*, 261 (1-3) : 91-98.
- HULTBERG H., MUNTHE J., IVERFELDT Å., 1995. Cycling of methyl mercury and mercury. Responses in the forest roof catchment to three years of decreased atmospheric deposition. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 415-424.
- IRION G., 1984. Sedimentation and sediments of Amazonian rivers and evolution of the Amazonian landscape since Pliocene times. In SOLI H. (éd.) : *The Amazon. Limnology and landscape ecology of a mighty tropical river and its basin*, Dordrecht, W. Junk Publishers.
- JONASSON I.R., BOYLE R.W., 1972. Geochemistry of mercury and origins of natural contamination of the environment. *Can. Min. Metall. Bull.*, 65 : 32-39.
- KERRY A., WELBOURN P.M., PRUCHA B., MIERLE G., 1991. Mercury methylation by sulphate-reducing bacteria from sediments of an acid stressed lake. *Water Air Soil Pollut.*, 56 : 565-575.
- LACERDA L.D., SALOMONS W., 1991. *Mercury in the Amazon. A chemical time bomb ? Harem*, Dutch Ministry of Housing, Physical Planning and the Environment, 46 p.
- LECHLER P.J., MILLER J.R., LACERDA L.D., VINSON D., BONZONGO J.-C., LYONS W.B., WARWICK J.J., 2000. Elevated mercury concentrations in soils, sediments, water, and fish of the Madeira River basin, Brazilian Amazon : a function of natural enrichments ? *Sci. Total Environ.*, 260 : 87-96.
- LEE Y.-H., BORG G.C., IVERFELDT Å., HULTBERG H., 1994. « Fluxes and turnover of methylmercury : mercury pools in forest soils ». In WATRAS C.J., HUCKABEE J.W. (éd.) : 329-341.
- LINDBERG S.E., 1986. « Mercury vapor in the atmosphere : three case studies on emission, deposition, and plant uptake ». In NRIAGU J.O., DAVIDSON C.I. (éd.) : *Toxic metals in the atmosphere*,

- New York, John Wiley and Sons : 535-560.
- LINDBERG S.E., HARRIS R.C., 1985. « Mercury in rain and throughfall in a tropical rain forest ». In : *Proceedings of the Fifth International Conference on Heavy metals in the environment*, Edinburg, CEP Consultants Publishers, I : 527-529.
- LINDBERG S.E., MEYERS T.P., TAYLOR G.E., TURNER R.R., SCHROEDER W.H., 1992. Atmosphere-surface exchange of mercury in a forest : results of modeling and gradient approaches. *J. Geophys. Res.*, 97 : 2519-2528.
- LINDQVIST O., RHODES H., 1985. Atmospheric mercury. A review. *Tellus*, 37B : 136-159.
- LUCAS Y., CHAUVEL A., BOULET R., RANZANI G., SCATOLINI F., 1984. Transição Latossolos-podzóis sobre a formação barreiras na região de Manaus, Amazônia. *R. Brasil. Ci. Solo*, 8 : 325-335.
- LUCAS Y., BOULET R., CHAUVEL A., VEILLON L., 1987. « Systèmes sols ferrallitiques-podzols en région amazonienne ». In RIGHT D., CHAUVEL A. (éd.) : *Podzols et podzolization*, AFES/INRA : 53-65.
- LUCAS Y., CHAUVEL A., 1992. « Soil formation in tropically weathered terrains ». In BUTT C.R.M., ZEEGERS H. (éd.) : *Handbook of exploration of tropically weathered terrain. Soil, laterite, and saprolite geochemistry in mineral exploration of tropically weathered terrains*, Amsterdam, Elsevier : 57-76.
- LUCAS Y., LUIZÃO F.J., CHAUVEL A., ROUILLER J., NAHON D., 1993. The relation between biological activity of the rain forest and mineral composition of soils. *Science*, 260 : 521-523.
- LUCAS Y., NAHON D., CORNU S., EYROLLE F., 1996. Genèse et fonctionnement des sols en milieu équatorial. *C.R. Acad. Sci. Paris*, 322 : 1-16.
- MACLEAN A.J., 1974. Mercury in plants and retention of mercury by soils in relation to properties and added sulfur. *Can. J. Soil Sci.*, 54 : 287-292.
- MALM O., PFEIFFER W.C., SOUZA C.M.M., REUTHER R., 1990. Mercury pollution due to gold mining in the Madeira River basin, Brazil. *Ambio*, 19 : 11-15.
- MALM O., PFEIFFER W.C., SOUZA C.M.M., 1991. « Main pathways of mercury in the Madeira river area, Rondônia, Brazil ». In : *Proceedings of the Eighth International Conference on Heavy metals in the environment*, Edinburg, CEP Consultants Publishers, I : 515-518.
- MARINS R.V., IMBASSAY J.A., PFEIFFER W.C., BASTOS W.R., 1991. « Contaminação atmosférica de mercúrio em área produtora de ouro no distrito de Poconé, MT ». In : *Proceedings of the First International Symposium on Environmental Studies, Tropical Humid Forests*, Rio de Janeiro, Biosfera Edition : 209-213.
- MASON R.P., FITZGERALD W.F., MOREL F.M.M., 1994. The biogeochemical cycling of elemental mercury : anthropogenic influences. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 58 : 3191-3198.
- MCKEAGUE J.A., KLOSTERMAN B., 1974. Mercury in horizons of some soil profiles in Canada. *Can. J. Soil Sci.*, 54 : 503-507.
- McKENZIE R.M., 1980. The adsorption of lead and other heavy metals on oxides of manganese and iron. *Austr. J. Soil Res.*, 18 : 61-73.
- MIERLE G., INGRAM R., 1991. The role of humic substances in the mobilization of mercury from watersheds. *Water Air Soil Pollut.*, 56 : 349-357.

- MUNTHE J., HULTBERG H., IVERFELDT Å., 1995. Mechanisms of deposition of mercury and methylmercury to coniferous forest. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 363-371.
- PARFITT R.L., FRASER A.R., FARMER V.C., 1977. Adsorption on hydrous oxides. III. Fulvic acid and humic acid on goethite, gibbsite and imogolite. *J. Soil Sci.*, 28 : 289-296.
- PFEIFFER W.C., MALM O., SOUZA C.M.M., LACERDA L.D., SILVEIRA E.G., BASTOS W.R., 1991. Mercury in the Madeira River ecosystem, Rondônia, Brazil. *For. Ecol. Mgmt.*, 38 : 239-245.
- PFEIFFER W.C., LACERDA L.D., SALOMONS W., MALM O., 1993. Environmental fate of mercury from gold mining in the Brazilian Amazon. *Environ. Rev.*, 1 : 26-37.
- PIRONNE N., GLINSORN G., KEELER G.J., 1995. Ambient levels and dry deposition fluxes of mercury to lakes Huron, Erie and St. Clair. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 179-188.
- POISSANT L., CASIMIR A., 1998. Water-air and soil-air exchange rate of total gaseous mercury measured at background sites. *Atmos. Environ.*, 32 : 883-893.
- POISSANT L., PILOTE M., 1998. Mercury concentrations in single event precipitation in Southern Quebec. *Sci. Total Environ.*, 213 : 65-72.
- PUTZER H., 1984. « The geological evolution of the Amazon basin and its mineral resources ». In SIOLI H. (éd.) : *The Amazon. Limnology and landscape ecology of a mighty tropical river and its basin*, Dordrecht, W. Junk Publishers : 15-46.
- RIGHI D., BRAVARD S., CHAUVEL A., RANGER J., ROBERT M., 1990. In situ study of soil processes in an oxisol-sodosol sequence of Amazonia (Brazil). *Soil Sci.*, 150 : 438-445.
- ROCHE M.A., 1990. « Hydrologie et érosion de l'écosystème forestier guyanais ». In SARRAILH J.-M. (éd.) : *Mise en valeur de l'écosystème forestier guyanais*, INRA/CTFT : 47-64.
- ROGERS R.D., 1977. Abiological methylation of mercury in soil. *J. Environ. Qual.*, 6 : 463-467.
- ROULET M., LUCOTTE M., 1995. Geochemistry of mercury in pristine and flooded feralitic soils of a tropical rain forest in French Guiana, South America. *Water Air Soil Pollut.*, 80 : 1079-1088.
- ROULET M., LUCOTTE M., SAINT-AUBIN A., TRAN S., RHÉAULT I., FARELLA N., DE JESUS DA SILVA E., DEZENCOURT J., SOUSA PASSOS C.J., SANTOS SOARES G., GUIMARÃES J.R.D., MERGLER D., AMORIM M., 1998. The geochemistry of Hg in Central Amazonian soils developed on the Alter-do-Chão formation of the lower Tapajós river valley, Pará state, Brazil. *Sci. Total Environ.*, 223 : 1-24.
- ROULET M., LUCOTTE M., FARELLA N., SERIQUE G., COELHO H., SOUSA PASSOS C.J., DE JESUS DA SILVA E., SCAVONE DE ANDRADE P., MERGLER D., GUIMARÃES J.R.D., AMORIM M., 1999. Effects of recent human colonization on the presence of mercury in Amazonian ecosystems. *Water Air Soil Pollut.*, 112 : 297-313.
- ROULET M., GUIMARÃES J.R.D., LUCOTTE M., 2001. Methylmercury production and accumulation in sediments and soils of an Amazonian floodplain. Effects of seasonal inundation. *Water Air Soil Pollut.*, 128 (1-2) : 41-60.
- SCHUSTER E., 1991. The behavior of mercury in the soil with special emphasis on complexation and adsorption pro-

- cesses. A review of the literature. *Water Air Soil Pollut.*, 56 : 667-680.
- SCHWESIG D., ILGEN G., MATZNER E., 1999. Mercury and methylmercury in upland and wetland acid forest soils of a watershed in NE-Bavaria, Germany. *Water Air Soil Pollut.*, 113 : 141-154.
- SEMU E.B., SINGH R., SELMER-OLSEN A.R., 1986. Adsorption of mercury compounds by tropical soils. I. Adsorption in soil profiles in relation to their physical, chemical, and mineralogical properties. *Water Air Soil Pollut.*, 27 : 19-27.
- SILVEIRA E.G., BASTOS W.R., MALM O., BONOTTO D.M., à paraître. Characterization of mercury in bottom sediments and rocks in Madeira river, Brazil, between Teotônio and Santo Antônio waterfalls. *Environ. Res.*
- ST. LOUIS V.L., RUDD J.W.M., KELLY C.A., BEATY K.G., BLOOM N.S., FLETT R.J., 1994. Importance of wetlands as sources of methyl mercury to boreal forest ecosystems. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, 51 : 1065-1076.
- TIPPING E., 1981. The adsorption of aquatic humic substances by iron oxides. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 45 : 191-199.
- TRICART J., 1975. Influence des oscillations climatiques récentes sur le modèle en Amazonie orientale (Région de Santarém) d'après les images de radar latéral. *Z. Geomorph. N. F.*, 19 : 140-163.
- TROST P.B., BISQUE R.E., 1972. « Distribution of mercury in residual soils ». In HARTUNG R., DINMAN D.B. (éd.) : *Environmental mercury contamination*, Ann Arbor Sci. Publ. Inc. : 178-196.
- TRUMBORE S.E., 1993. Comparison of carbon dynamics in tropical and temperate soil using radiocarbon measurements. *Global Biogeochem. Cycles*, 7 : 275-290.
- TÜMPLING W.V., WILKEN R.D., EINAX J., 1996. « Mercury deposition resulting from the setting on fire grasslands. Estimation of the annual mercury deposition of the tropical northern Pantanal Region, Central Brazil ». In BARBOSA J.P., MELAMED R., VILLAS-BOAS R. (éd.) : 478.
- VANDAL G.M., MASON R.P., FITZGERALD F., 1991. Cycling of volatile mercury in temperate lakes. *Water Air Soil Pollut.*, 56 : 791-803.
- VEILLON L., 1990. *Sols ferrallitiques et podzols en Guyane septentrionale. Relations entre systèmes de transformations pédologiques et évolution historique d'un milieu tropical humide et forestier*. Thèse, univ. Paris-VI, 195 p.
- WATRAS C.J., HUCKABEE J.W. (éd.), 1994. *Mercury pollution : integration and synthesis*. Boca Raton, Lewis Publishers, 727 p.
- WATRAS C.J., MORRISON K.A., HOSTE J.S., 1995. Concentration of mercury species in relationship to other site-specific factors in the surface waters of northern Wisconsin lakes. *Limnol. Oceanogr.*, 40 : 556-565.
- XU H., ALLARD B., 1991. Effects of a fulvic acid on the speciation and the mobility of mercury in aqueous solutions. *Water Air Soil Pollut.*, 56 : 709-717.
- ZEIDEMANN V.K., 1998. *A geoquímica de mercúrio em solos da bacia do rio Negro e sua influência no ciclo regional do mercúrio*. Dissertação de Mestre em Ciências Biológicas, INPA-UA, Manaus, 75 p.