

Etude de la biodisponibilité de métaux lourds dans les sols agricoles de Settat

Tomgouani K.^{1*}, El Mejahed K.², Bouzidi A.¹ et El Gharous M.²

1. Faculté des Sciences et Techniques de Settat, Université Hassan I, BB 577 Settat, Maroc.
2. Institut National de la Recherche Agronomique (INRA) Settat, Maroc.

*Email : Kao-tomgouani@hotmail.com

Résumé:

Les quantités biodisponibles de métaux lourds ont été déterminées dans les échantillons de sols agricoles irrigués par les eaux usées tout au long de l'oued Boumoussa, drain naturel des eaux usées de la ville de Settat.

Parmi les éléments analysés, le Cadmium, le Cuivre, le Nickel, le Plomb et le Zinc présentent des concentrations élevées dans les parcelles irriguées par les eaux usées comparativement à celles irriguées par l'eau souterraine. Le plomb est le plus important polluant dans la solution du sol avec une concentration moyenne de 9 ppm dans la couche superficielle du sol (0-20cm). La biodisponibilité de ce métal est étroitement corrélée à sa teneur totale dans le sol. Le Cd, le Cu et le Ni contrairement au Pb et au Zn, sont des polluants naturels dans le sol. Leurs quantités biodisponibles excédentaires sont en effet dues au relatif déficit du pouvoir adsorbant des sols irrigués par les eaux usées. La biodisponibilité intrinsèque des polluants étudiés suit l'ordre décroissant : Cd > Pb > Ni > Cu > Zn. Par ailleurs, les concentrations biodisponibles de ces métaux lourds décroissent avec la profondeur du sol.

Mots-clés : Eaux usées, biodisponibilité, métaux lourds, sol

دراسة التوفر الحيوي للمعادن الثقيلة في الأراضي الفلاحية بسطات
تومكواني كاو، المجاهد خليل، بوزيدي عبد الحميد، الغروص محمد

ملخص

لقد تم تحديد كميات المعادن الثقيلة المتاحة حيويًا في عينات التربة المأخوذة من الأراضي المحاذية لواد أبو موسى والتي تسقى بالمياه العذبة المستخلصة من مدينة سطات. ومن بين المعادن التي تم تحليلها كيميائيًا نجد أن الكاديوم (Cd)، النحاس (Cu)، النيكل (Ni)، الرصاص (Pb) والزنك (Zn) توجد بتركيز عالي في هذه الأراضي مقارنة مع الأراضي التي تسقى بالمياه الجوفية.

الرصاص هو المعدن الملوث الأكثر في محلول التربة بتركيز يعادل 9 ملغ/ل في الطبقة العليا للتربة (0-20 سم). الإتاحة الحيوية لهذا المعدن لها علاقة وطيدة مع التركيز الكلي في التربة. التلوث الناتج عن الكاديوم، النحاس، والنيكل على نقيض الرصاص والزنك طبيعي، وأن الإتاحة الحيوية لهذه المعادن في التربة ناتجة على نقص قدرة التربة المسقية بالمياه العذبة على جذبهم وتشبيهم. إن الإتاحة الحيوية الذاتية للمعادن المدروسة تتبع الترتيب التناقصي التالي Cd > Pb > Ni > Cu > Zn وتقل مع عمق التربة.

الكلمات المفتاح : المياه العذبة، الإتاحة الحيوية، المعادن الثقيلة، التربة

Heavy metal bioavailability in agriculture soils near Settat

Summary

The quantities of bioavailable heavy metals were evaluated in samples from agricultural soils irrigated by wastewater from Boumoussa River, a natural drain of swage sludge of Settat.

Among the analyzed metal ions, Cadmium, Copper, Nickel, Lead and Zinc concentrations in irrigated plots with sewage sludge were higher than those irrigated with groundwater. Lead is the most important pollutant in the soil solution with an average concentration of 9 ppm in the top layer (0-20cm). The bio-availability of this metal in wastewater irrigated plots is closely correlated to its total content in the soil. Cd, Cu and Ni contrary to Pb and Zn, are natural pollutants in the soil. Their surplus available concentrations are indeed due to the relative deficit of the adsorption capacity of the soils irrigated by wastewater. The intrinsic bioavailability of the studied pollutants decreases in the following order: Cd > Pb > Ni > Cu > Zn. The concentration of these bioavailable heavy metals decreases with soil depth.

Key-words: Swage sludge, availability, heavy metal, soil

I. Introduction

Les eaux usées utilisées en agriculture contiennent des éléments fertilisants, mais aussi des éléments polluants métalliques. Les métaux lourds disponibles représentent la fraction de la concentration totale de ces métaux dans le sol, soluble dans la solution du sol ou facilement échangeable à la surface du sol. Ces éléments sont ainsi susceptibles d'être absorbés par les plantes lesquelles sont consommées par les herbivores et l'homme. Ainsi, chaque maillon de la chaîne alimentaire peut subir l'effet néfaste de ces fractions métalliques. Le Zn est en effet phytotoxique et sa forte concentration dans le sol a des effets défavorables sur les cultures, le bétail et l'homme (Kiekens, 1995). Le Pb est par contre, à l'origine entre autres, des troubles reproductifs, métaboliques, hématologiques, rénaux chez l'homme ; néanmoins son effet le plus sérieux chez les adultes semble être l'hypertension (Peerebom-Stegeman, 1987 ; Hutton, 1987 ; WHO, 1996). L'irrigation des sols agricoles de Settat par les eaux usées brutes, a suscité des inquiétudes majeures concernant leur impact sanitaire. Ainsi, des études antérieures ont mis en évidence la contamination des eaux souterraines par le Pb et le Zn et de certaines cultures par le Pb et le Cd (Kholtei, 2002 et Ouakki et Fekher-eddine, 2001). L'intérêt était alors important d'évaluer les teneurs des fractions solubles de métaux lourds dans le sol afin de mieux appréhender le processus de contamination métallique et son ampleur.

II. Matériel et méthode

Durant la culture printanière du maïs (2004), onze terrains agricoles irrigués par les eaux usées (terrains affectés) ont été sélectionnés de part et d'autre de l'oued Boumoussa dans la région de Sidi El Aïdi (7 Km au nord de la ville de Settat). Deux autres terrains situés à environ 2 Km de l'oued et habituellement irrigués par les eaux souterraines (terrains témoins 1 & 2) ont été intégrés à l'étude en guise de témoins (Fig.1). Chaque terrain d'étude a été subdivisé en trois petites zones perpendiculaires au sens d'irrigation des eaux usées. Sur chacune de ces zones, le sol est prélevé en zigzag (six points en moyenne) à l'aide d'une tarière hélicoïdale à deux profondeurs : 0 – 20 cm et 20 – 40 cm. Les sols de la même profondeur et de la même zone sont mélangés, mis dans un sachet en plastique et transportés au laboratoire. Les sols sont séchés à 40° pendant trois jours, écrasés au mortier en porcelaine puis tamisés à 2 mm et ensachés pour les différentes analyses. Lesdits échantillons de sol ont été en effet, soumis à l'analyse des métaux lourds biodisponibles (As, Cd, Co, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn) et de certains paramètres physico-chimiques susceptibles d'influencer la solubilisation des métaux dans le sol (pH, phosphore, matière organique, capacité d'échange cationique, texture). Les métaux lourds biodisponibles ont été extraits du sol en utilisant une solution de DTPA (Acide Diéthylène Triamino – Pentaacétique) comme réactif et ce, dans un rapport 1 :2

(sol : solution d'extraction), pendant deux heures d'agitation. Le mélange obtenu a été filtré et les cations de la solution ont été déterminés à l'ICP-AES (Inductively Coupled Plasma – Atomic Emission Spectrometry) Ultima 2 au Centre National de la Recherche Scientifique et Technique de Rabat.

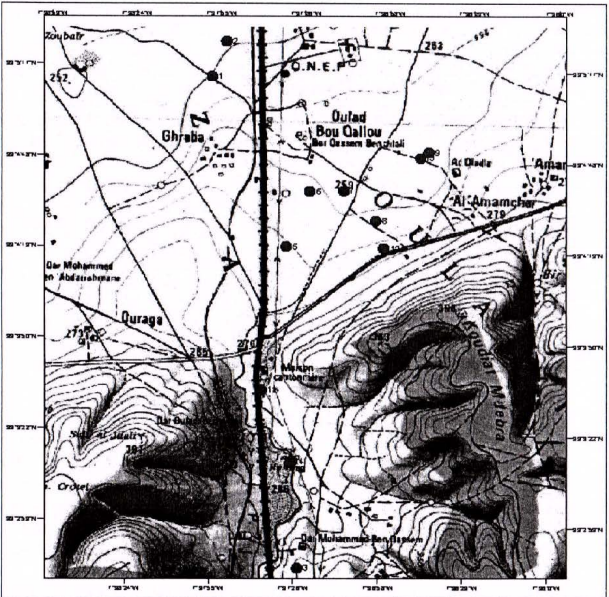


Figure 1 : Localisation des terrains échantillonnés

III. Résultats et discussion

III.1. L'influence des constituants du sol sur la biodisponibilité des métaux lourds

Le sol peut jouer un rôle tampon majeur dans le transfert de polluant métallique à la solution du sol et à la plante. En effet, plusieurs paramètres physico-chimiques du sol tels que le pH, la matière organique (MO), la capacité d'échange cationique (CEC), la texture du sol ou encore le phosphore peuvent œuvrer en faveur de la rétention des particules métalliques dans la phase solide. Le pH est de loin le plus important (Brallier et al., 1996). La plupart des processus d'adsorption de métaux lourds dans le sol sont en effet coordonnés par le pH. La solubilité du métal tend à accroître à pH faible et à baisser à pH élevé (Tills et Alloway, 1983 ; Garcia – Miragaya, 1984 ; Ram et al., 1985, Sanchez-camazano et al., 1994 ; Chuan et al., 1996 ; Thornton, 1996). Dans les conditions alcalines, les charges négatives de la MO ou des argiles, fixent les cations métalliques et les soustraient ainsi de la solution du sol. En général, plus le pH, la CEC, la teneur en MO, en argile et en limon sont élevés dans le sol, plus les métaux lourds sont adsorbés.

Les terrains étudiés montrent des textures relativement différentes. En effet, les terrains affectés (irrigués par les eaux usées) comparativement aux terrains témoins, se caractérisent par des teneurs en argile et en sables grossiers relativement faibles (Tableau 1). Les argiles sont des adsorbants d'ions métalliques par l'échange d'ions et l'adsorption spécifique (Farrah et Pickering, 1977). Ce paramètre confère ainsi aux sols témoins une meilleure capacité d'adsorption de certains métaux par rapport aux terrains affectés. La Capacité d'Echange Cationique qui dépend en partie de l'argile suit d'ailleurs cet ordre comparatif. Le limon et le sable fin, quoique excédentaires dans les sols affectés, possèdent généralement un pouvoir adsorbant plus faible que celui de l'argile (Anderson, 1979).

Malgré l'usage des eaux usées (mélange des eaux domestiques et industrielles), les teneurs en matière organique et en phosphore ne diffèrent guère entre les deux types d'irrigation (Tableau 2). Cela s'explique par l'emploi sur les terrains témoins de déjections animale par les agriculteurs en addition aux engrais.

Tableau I. Caractéristiques physico-chimiques des terrains étudiés et analyse statistique.

Prof : profondeur; MO : matière organique ; CEC : capacité d'échange cationique ; S. gro : sable grossier ; S. fin : sable fin ; a : en cm ; b : dans l'eau (1 :2) ; c : en mg/kg ; d : en % ; e : en meq/100g de sol

	Prof ^a .	pH ^b	P ₂ O ₅ ^c	MO ^d	CEC ^e	Argile ^d	Limond ^d	S.gro ^d	S.fin ^d
<i>Terrains témoins</i>									
1	0-20	8.53	41.23	2.86	35.70	53.33	8.9	7.63	29.47
	20-40	8.59	23.66	2.26	32.71	58.33	7.13	7.60	26.73
2	0-20	8.36	54.72	2.90	30.24	50	5.9	9.93	34.17
	20-40	8.43	25.35	2.10	29.27	51.67	8.57	7.73	31.93
<i>Terrains affectés</i>									
3	0-20	8.40	36.05	2.75	23.66	40.67	12	7.23	39.83
	20-40	8.39	24.39	2.15	22.84	43.33	14.53	6.30	35.80
4	0-20	8.29	47.10	2.16	27.63	35.33	6.33	6	51.63
	20-40	8.57	25.17	1.70	27.63	37.67	8.33	7.07	46.70
5	0-20	8.53	74.70	3.24	32.48	53	11.33	6.40	29.27
	20-40	8.70	36.10	3.06	30.69	51	9.67	7.53	31.53
6	0-20	8.53	28.37	3.09	31.06	50.50	10.25	7.15	31.80
	20-40	8.73	23.68	2.83	30.69	49.33	9.33	7.30	31.17
7	0-20	8.5	89.31	3.67	37.87	60.33	10.67	4.83	23.90
	20-40	8.68	40.15	2.72	37.04	57.67	8.5	5.47	28.23
8	0-20	8.38	88.20	3.45	30.69	56	8.33	4.07	31.27
	20-40	8.56	47.45	2.80	30.02	56	5.33	4.77	33.77
9	0-20	8.54	43.26	2.53	30.84	50	6.33	5.30	38.40
	20-40	8.79	24	1.87	29.50	55	4.33	7.33	33.37
10	0-20	8.58	64.69	1.98	28.97	39.67	7.67	6.60	46.10
	20-40	8.84	32.77	1.36	26.32	46.33	6.67	6.13	40.67
11	0-20	8.57	81.23	2.71	23.52	43.33	9.33	7.77	39.40
	20-40	8.85	53.07	1.96	29.04	42	8.33	6.43	43
12	0-20	8.68	36.42	2.11	31.51	48	6.67	4.80	39.93
	20-40	8.72	21.85	1.96	30.54	51	8	5.30	35.60
13	0-20	8.58	45.15	3.2	32.78	48.67	12.67	5.30	33.43
	20-40	8.73	30.60	2.32	32.86	50.33	11.67	5.10	33.03
<i>Moyenne</i>									
T. témoins	0-20	8.44	47.98	2.88	32.97	51.67	7.40	8.78	31.82
	20-40	8.51	24.51	2.18	30.99	55.00	7.85	7.67	29.33
T. Affectés	0-20	8.51	57.68	2.81	30.09	47.77	9.23	5.95	36.82
	20-40	8.69	32.66	2.25	29.74	49.06	8.61	6.25	35.72

Tableau 2. Analyse de la variance à un facteur.

Paramètre	Comparaison terrains témoins et irrigués	P-value	Interprétation ($\alpha = 5\%$)
pH	Irrigués > Témoins	0.008	Significatif
P ₂ O ₅	Irrigués > Témoins	0.070	Non significatif
MO	Irrigué > Témoins	0.809	Non significatif
CEC	Témoins >Irrigués	0.001	Significatif
Argile	Témoins >Irrigués	0.000	Significatif
Limon	Irrigué > Témoins	0.024	Significatif
Sable grossier	Témoins >Irrigués	0.000	Significatif
Sable fin	Irrigué > Témoins	0.000	Significatif

III.2. La biodisponibilité des métaux lourds dans le sol.

Les résultats d'analyses montrent des concentrations de métaux biodisponibles dans le sol (0 – 40 cm) nettement faibles par rapport aux concentrations totales équivalentes (Tableau 3). Cela indique que l'ensemble des métaux introduits dans le sol n'immigre pas directement dans la solution du sol. Les constituants du sol permettent de fixer, en effet, des particules métalliques à travers des processus d'échange cationique, d'adsorption spécifique, de précipitation ou de complexation

Tableau 3. Concentrations moyennes en métaux lourds dans les sols étudiés (ppm)

Métal	Terrain témoins		Terrains affectés	
	Biodisponible	Total	Biodisponible	Total
As	0.044	2.84	0.049	3.63
Cd	0.066	0.28	0.072	0.20
Co	0.068	20.54	0.073	18.06
Cr	0.043	8.16	0.032	5.72
Cu	0.386	16.93	0.623	10.35
Hg	0.036	-	0.007	-
Ni	0.222	11.25	0.423	4.76
Pb	0.544	10.05	6.065	34.14
Zn	0.525	6.89	1.168	22.89

L'analyse de la variance montre que les quantités biodisponibles du Pb, du Zn, du Cu, du Ni et du Cd dans les sols affectés excèdent significativement celles des sols témoins (Tableau 4). Si le Pb et le Zn ont été les principaux polluants relatifs lors de l'évaluation

des concentrations totales, les concentrations du Cd, du Cu et du Ni dans les sols affectés étaient par contre en dessous de celles des sols témoins. Par ailleurs, l'As total qui était excédentaire dans les sols affectés ne l'est plus dans son état biodisponible de manière significative. L'analyse des eaux de puits de la zone d'épandage des eaux usées par Kholtei (2002) n'avait pas également révélé de pollution à l'As.

Tableau 4. Analyse de la variance à un facteur.

Élément biodisponible	Comparaison des terrains témoins et irrigués	P-value	Interprétation ($\alpha = 5\%$)
As	Irrigués > Témoins	0.407	Non significatif
Cd	Irrigués > Témoins	0.000	Très significatif
Cu	Irrigués > Témoins	0.000	Très significatif
Ni	Irrigués > Témoins	0.000	Très significatif
Pb	Irrigués > Témoins	0.000	Très significatif
Zn	Irrigués > Témoins	0.001	Très significatif

L'étude de la régression linéaire multiple met en évidence l'effet de certains paramètres physico-chimiques sur la biodisponibilité de ces métaux lourds dans le sol (Tableau 5).

Tableau 5. Résultat de l'analyse de la régression linéaire multiple

Élément biodisponible	Paramètre physico-chimique influant significativement la biodisponibilité* ($\alpha = 5\%$)
As	Limon ; Sable fin ; Argile ; pH (eau) ; Sable grossier ; CEC ; As total
Cd	Cd total ; CEC ; MO
Cu	Cu total ; CEC ; P ₂ O ₅ ; MO
Ni	Ni total ; CEC ; P ₂ O ₅
Pb	Pb total ; Sable fin ; Argile ; Limon ; NO ₃ ⁻
Zn	Zn total ; CEC ; P ₂ O ₅

* par ordre décroissant de significativité

En effet, l'As total excédentaire dans les sols affectés, y est peu biodisponible à cause de l'influence de la texture (particulièrement le limon) et du pH de ces sols. Le pH (eau) des sols affectés est en effet, plus élevé et plus favorable à l'adsorption de l'As que celui des sols témoins (Tableau 2). Raison pour laquelle les concentrations biodisponibles de cet élément chimique ne sont pas significativement plus élevées dans les sols affectés que dans les sols témoins. La biodisponibilité du Cd, du Cu, du Ni, du Pb et du Zn dépend des concentrations totales de ces éléments et de la capacité d'échange cationique du sol à l'exception du Pb.

La faible capacité d'échange cationique des terrains affectés par rapport aux terrains témoins explique la mise en solution plus importante du Cd, Cu et Ni dans les sols affectés.

La pollution relative et inattendue du Cd, Cu et Ni biodisponibles est ainsi due aux propriétés physico-chimiques du sol et est de ce fait, d'origine naturelle. La solubilisation des métaux traces essentiels, tels que Cu, Ni et Zn est influencée par le phosphore du sol, l'un des éléments nutritifs de la plante. Par ailleurs, le Cd semble posséder la plus forte biodisponibilité intrinsèque (Figure 2). Le Cd est souvent considéré comme étant très labile dans le sol ; Legret (1993) en effet, avait trouvé lors d'une spéciation des métaux lourds dans les sols amendés de boues, 65,1% de Cd sous forme échangeable. L'ordre de biodisponibilité intrinsèque des polluants dans les sols affectés étudiés est le suivant : Cd > Pb > Ni > Cu > Zn.

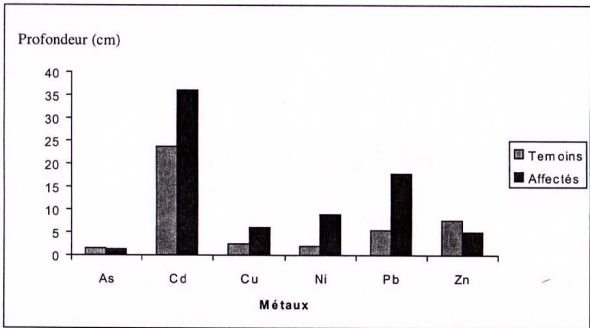


Figure 2 : La biodisponibilité de l'As, du Cd, du Cu, du Ni, du Pb et du Zn (0 – 40 cm)

Les éléments biodisponibles polluants ont par ailleurs des concentrations décroissantes dans le profil du sol, probablement à cause de la texture argileuse rencontrée en profondeur (Figure 3).

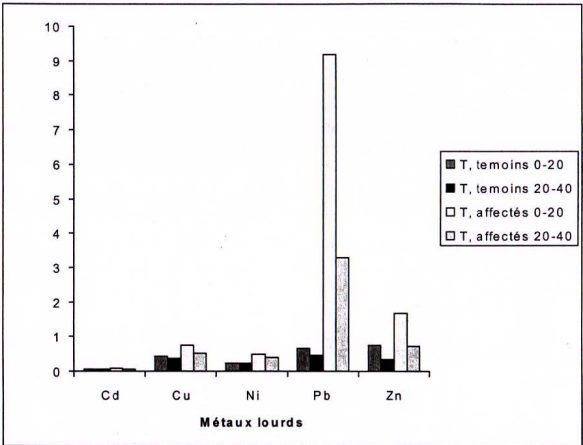


Figure 3 : Evolution des métaux biodisponibles dans le profil du sol

Contrairement aux autres métaux, certaines concentrations totales du plomb dans les sols affectés excèdent la valeur maximale recommandée dans le sol (100 ppm). Il est le polluant majeur dans ces sols. La fraction biodisponible du Pb est également la plus importante dans les sols affectés et est étroitement corrélée à sa quantité totale (Figure 4). Chlopecka (1996) a suggéré que les métaux sont proportionnellement plus biodisponibles dans les sols quand ils sont d'origine exogène que lorsqu'ils s'y trouvent naturellement. En effet, au fur et à mesure que les métaux lourds sont apportés dans le sol, les cations métalliques satureront progressivement le pouvoir adsorbant du sol et le surplus de ces composés entre dans la solution du sol (Banin *et al*, 1987). Cela explique cette biodisponibilité croissante du Pb en relation avec sa quantité totale dans le sol. Il est ainsi possible de prévoir la quantité biodisponible du Plomb à partir de sa quantité totale dans le sol et réciproquement. L'influence des paramètres physico-chimiques (relevés dans le tableau 5) des sols étudiés, sur la biodisponibilité de cet élément, semble donc peu im-

portante face à la concentration totale du métal. L'étude menée par Kholtei (2002) avait désigné le Pb comme le principal polluant exogène dans les eaux de puits de la zone affectée ; l'importance de sa fraction biodisponible dans les sols étudiés, explique clairement la présence de ce métal redoutable dans les eaux de puits.

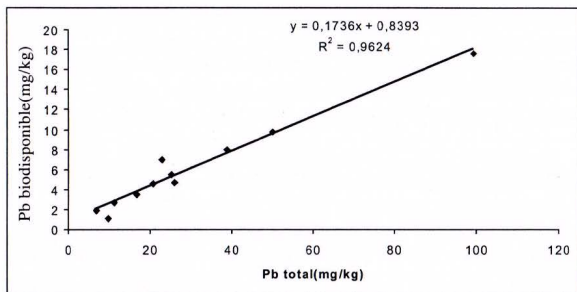


Figure 4 : Relation entre le Pb total et le Pb biodisponible dans les sols affectés (0 – 40cm)

IV. Conclusion

L'évaluation de la pollution relative des métaux biodisponibles dans les sols irrigués par les eaux usées dans la province de Settat a révélé cinq polluants métalliques : Cd, Cu, Ni, Pb et Zn. Le Cd, le Cu et le Ni contrairement aux deux autres (Pb et Zn), sont d'origine naturelle. Le déficit relatif du pouvoir d'adsorption des sols affectés a, en effet, facilité la mise en solution de ces éléments métalliques. Le Cd est le plus labile dans le sol. Le Pb, toxique aussi bien pour la plante qu'à l'homme, est le plus important des métaux biodisponibles analysés dans la solution du sol. C'est une inquiétude sanitaire car ce métal pourrait être absorbé par les plantes consommables par l'homme ou migrer en profondeur et contaminer l'eau souterraine. Sa biodisponibilité étant corrélée à sa teneur totale, les apports ultérieurs d'eau usée de qualité identique, amplifieront progressivement le risque.

La mise en solution pour l'instant du Cu, Ni et du Zn pourrait, par contre, être bénéfique à la plante.

Références bibliographiques

- Andersson, A. 1979. Distribution of heavy metals as compared to some other elements between grain size fractions in soils. *Swedish Journal of Agricultural Research*, 9, 7-13.
- Banin, A., Navrot, J. and Perl, A. 1987. Thin-horizon sampling reveals highly localized concentrations of atmophile heavy metals in a forest soil. *The science of the Total Environment*, 61, 145-152.
- Brallier, S., Harrison, R.B., Henry, C. L. and Dongsen, X. 1996. Liming effects on availability of Cd, Cu, Ni and Zn in a soil amended with sewage sludge 16 years previously. *Water, Air and soil Pollution*, 86, 195-206.
- Chlopecka, A. 1996. Assessment of form of Cd, Zn and Pb in contaminated calcareous and gleyed soils in southwest Poland. *The Science of the Total environment*, 188, 253-262.
- Chuan, M.C., Shu, G. Y. and Liu, J.C. 1996. Solubility of heavy metals in a contaminated soil: Effects of redox potential and pH. *Water, Air and Soil Pollution*, 90, 543-556.
- Farrah, H. and Pickering, W.F. 1977. Influence of clay -solute interactions on aqueous heavy metal ion levels. *Water, Air and Soil Pollution*, 8, 189-197.
- Garcia - Miragaya, J. 1984. Levels, chemical fractionation, and solubility of lead in roadside soils of Caracas, Venezuela. *Soil Science*, 138, 147-52.
- Hutton, M. 1987. Human health concerns of lead, mercury, cadmium and arsenic. In: *Lead, Mercury and Arsenic in the Environment* (eds T.L. Hutchinson & K.M. Meesma), pp. 53-68. SCOPE: 31, John Wiley & Sons, Chichester.
- Kholtei, 2002. Caractérisation physico-chimique des eaux usées des villes de Settat et de Berchid et évaluation de leur impact sur la qualité des eaux souterraines. Thèse n° 199, 109-123
- Kiekens, L. 1995. Zinc. In: *Heavy Metals in Soils*, 2nd edn (ed. B.J. Alloway), pp. 284-305. Blackie Academic and Professional, Glasgow.
- Legret M., Speciation of heavy metals in sewage sludge and sludge-amended soil. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.*, 51, 161-165 (1993)
- M. et Fekher-eddine, 2001. Etude de l'impact de l'irrigation par les eaux usées sur la qualité des sols : évaluation des risques de contamination du sol et de certaines cultures par les métaux lourds (Cd, Zn, Pb et Cu). P 29 -30.
- Peerebom-Stegeman, J.H.J.C. 1987. Toxic trace elements and reproduction. *Toxicological and environmental chemistry*, 15, 273-292.
- Ram, N. and M. 1985. Effect of various organic materials on the mobility of heavy metals in soil. *Environmental Pollution*, B10, 241-248.

Sanchez-camazano, M., Sanchez-Martin, M.J. and Lorenzo, L.F. 1994. The content and distribution of cadmium in soils as influenced by the soil properties. *The Science of the Total Environment*, 156, 183-190.

Thornton, I. 1996. Risk assessment related to metals: the role of the geochemist. Report of the International Workshop on Risk Assessment of Metals and their Inorganic Compounds, Angers, France, November 1996. International Council on Metals and the Environment.

Tills, A.R. and Alloway, B.J. 1983b. The speciation of lead in soil solution from very polluted soils. *Environmental Technology Letters*, 4, 529-534.

WHO 1996. Trace Elements in Human Nutrition and Health. World Health Organisation, Geneva.