

Partenariat 2011 – Domaine « des sources aux contaminations » – Action 11-27



Panorama des projets de recherche et perspectives sur la problématique des micropolluants dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines

Version finale

Emmanuelle UGHETTO
INERIS

Février 2012

Contexte de programmation et de réalisation

La présence potentielle de micropolluants, réglementés ou émergents, dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines (STEU) pose la question de leur teneur, de leur devenir et de leur impact sur les milieux (sols / végétaux / milieux aquatiques), en fonction des trois voies principales d'élimination / valorisation (épandage agricole, incinération et mise en décharge), voire des nouvelles alternatives (oxydation thermique, méthanisation, etc.). Ces différents éléments sont mal connus actuellement. Leur connaissance est pourtant essentielle afin :

- d'orienter les politiques publiques concernant ces matières,
- d'orienter la surveillance et la réduction des micropolluants dans les effluents issus des STEU (eaux, boues),
- de donner aux acteurs de terrain des éléments permettant d'orienter leur choix de filière.

L'objectif de cette action est de recenser les connaissances actuelles sur la problématique des micropolluants, réglementés ou émergents, et de leurs impacts sur le milieu tout au long des filières de gestion des boues.

Les auteurs

Emmanuelle UGHETTO
 Responsable Étude et de Recherche
emmanuelle.ughetto@ineris.fr

INERIS
 Direction des Risques Chroniques
 Unité Technologies et Procédés Propres et Durables
 Parc Technologique Alata, BP2
 60550 Verneuil en Halatte
 France

Les correspondants

Onema : *Stéphane GARNAUD*, Direction de l'Action Scientifique et Technique,
stephane.garnaud@onema.fr

Convention ONEMA INERIS 2011 - Action 11-27

Approbation INERIS	Approbation ONEMA
Mme Martine RAMEL Direction des Risques Chroniques 15/02/2012	M. Stéphane GARNAUD M. Pierre-François STAUB Direction de l'Action Scientifique et Technique 14/01/2013

Droits d'usage :	<i>Accès libre</i>
Couverture géographique :	<i>France entière</i>
Niveau géographique :	<i>National</i>
Niveau de lecture :	<i>Professionnels, experts</i>
Nature de la ressource :	<i>Document</i>

PRÉAMBULE

Le présent rapport a été établi sur la base des informations fournies à l'INERIS, des données (scientifiques ou techniques) disponibles et objectives et de la réglementation en vigueur.

La responsabilité de l'INERIS ne pourra être engagée si les informations qui lui ont été communiquées sont incomplètes ou erronées.

Les avis, recommandations, préconisations ou équivalent qui seraient portés par l'INERIS dans le cadre des prestations qui lui sont confiées, peuvent aider à la prise de décision. Etant donné la mission qui incombe à l'INERIS de par son décret de création, l'INERIS n'intervient pas dans la prise de décision proprement dite. La responsabilité de l'INERIS ne peut donc se substituer à celle du décideur.

Le destinataire utilisera les résultats inclus dans le présent rapport intégralement ou sinon de manière objective. Son utilisation sous forme d'extraits ou de notes de synthèse sera faite sous la seule et entière responsabilité du destinataire. Il en est de même pour toute modification qui y serait apportée.

L'INERIS dégage toute responsabilité pour chaque utilisation du rapport en dehors de la destination de la prestation.

Panorama des projets de recherche et perspectives sur la problématique des micropolluants dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines

Rapport final

Emmanuelle UGHETTO

SOMMAIRE

Résumé.....	6
Abstracts	8
1. GLOSSAIRE	10
2. INTRODUCTION.....	12
2.1 Contexte de l'étude : boues de stations de traitement des eaux usées urbaines et micropolluants	12
2.2 Objectifs de l'étude	12
2.3 Périmètre de l'étude	13
3. DÉMARCHE ADOPTÉE ET MÉTHODOLOGIE	14
3.1 Démarche adoptée	14
3.2 Méthodologie de recherche.....	14
3.3 Entretiens avec des chercheurs / experts	15
3.4 Limites de l'étude	15
4. CARACTÉRISATION DES MICROPOLLUANTS DANS LES BOUES	17
5. SUBSTANCES POTENTIELLEMENT PRÉSENTES DANS LES BOUES ET GAMMES DE TENEURS	19
5.1 Substances susceptibles d'être présentes dans les boues	19
5.2 Gammes de teneurs	19
5.3 Références françaises	20
5.4 Références en Europe et en Amérique du nord	21
5.5 Conclusion et perspectives.....	23
6. DEVENIR DES MICROPOLLUANTS LORS DES ÉTAPES DE TRAITEMENT DES BOUES.....	25
6.1 Traitement des boues	25
6.2 Filière épandage	26
6.3 Évolution des filières de traitement et valorisation des boues en France	27
6.4 Études et programmes de recherche	28
6.5 Digestion anaérobie et aérobie	29
6.6 Séchage.....	33
6.7 Compostage	34
6.8 Conclusion et perspectives.....	36
7. ÉPANDAGE DES BOUES SUR LES SOLS AGRICOLES ET TRANSFERTS DES MICROPOLLUANTS DANS L'ENVIRONNEMENT	38
7.1 Études et programmes de recherche	38
7.2 Transferts sol – plantes	39
7.3 Transferts vers les milieux aquatiques	41
7.4 Transferts vers les eaux souterraines.....	41
7.5 Transferts vers les eaux de surface	42
7.6 Transferts vers l'air	44

7.7 Transferts vers les animaux	44
7.8 Conclusion et perspectives	44
8. RISQUES SANITAIRES ET IMPACTS ENVIRONNEMENTAUX.....	46
8.1 Évaluation des risques sanitaires.....	46
8.2 Impacts environnementaux et Évaluation des risques	47
8.3 Conclusion et perspectives	49
9. SYNTHÈSE DES CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES IDENTIFIÉES.....	51
Bibliographie.....	55
Liste des annexes.....	61
1. Objectifs de l'analyse bibliométrique	62
2. Démarche adoptée.....	62
3. Limites de l'étude.....	65
4. Résultats de l'analyse bibliométrique.....	66
5. Perspectives	70

Panorama des projets de recherche et perspectives sur la problématique des micropolluants dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines

Rapport final

Emmanuelle UGHETTO

Résumé

Si les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines contiennent des éléments nutritifs et des matières organiques, elles peuvent également être chargées en polluants divers : éléments traces métalliques, substances organiques, microorganismes pathogènes. Il a en effet été largement documenté qu'une partie des substances présentes dans les eaux usées se retrouvent dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines après traitement.

La présence de ces micropolluants, réglementés ou non, dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines pose la question de leur devenir et de leur impact sur les milieux depuis leur production jusqu'à l'épandage.

Dans ce contexte, l'ONEMA a sollicité l'INERIS pour réaliser un panorama des projets de recherche passés et en cours sur ces problématiques avec comme objectifs de :

- Recenser les connaissances actuelles sur la problématique des micropolluants, réglementés ou non, dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines, tout au long des filières de valorisation par épandage,
- Mettre en évidence, dans la mesure du possible, les manques de connaissances sur cette problématique afin d'identifier les besoins de travaux futurs et les perspectives d'actions et de recherches qui pourraient être engagées à court et moyen termes.

Ce travail s'inscrit plus globalement dans l'action n°17 du Plan national d'action contre la pollution des milieux aquatiques par les micropolluants¹ : « *Valoriser et poursuivre les études permettant de mieux connaître les sources de pollution et leur devenir dans l'environnement pour établir des bilans des sources de contamination* ».

Pour mener à bien cette étude, une recherche bibliographique approfondie a tout d'abord été réalisée. Elle a porté sur les publications scientifiques et les thèses ainsi que sur la « littérature grise » telle que les rapports publiés par des organismes travaillant sur le sujet ou des actes de congrès. Parallèlement, des entretiens ont été menés avec des acteurs identifiés comme clés dans les thématiques étudiées. Par ailleurs, une analyse bibliométrique de l'ensemble des références bibliographiques obtenues a été réalisée afin de produire des indicateurs quantitatifs permettant de mettre en perspective le contenu de ce corpus et d'en tirer des enseignements pour cette étude.

Le panorama des projets de recherche a été construit autour des thématiques suivantes :

- Caractérisation des micropolluants dans les boues,
- Substances potentiellement présentes dans les boues,
- Devenir des micropolluants lors des étapes de traitement des boues,
- Transferts des micropolluants dans l'environnement après épandage de boues : (sols, végétaux, milieux aquatiques, animaux et air),
- Risques sanitaires et impacts environnementaux.

L'analyse et la synthèse des informations et des données récoltées grâce à ces recherches a permis de faire le point sur l'état des connaissances actuelles sur les différentes thématiques étudiées. Ce travail s'est par ailleurs attaché à identifier les perspectives d'action et de R&D qui pourraient être engagées à court et moyen termes.

¹ MEDDTL, 13 octobre 2010. Plan National Micropolluants 2010 – 2013.
INERIS – DRC-12-118975-02397A

Il en ressort notamment les points essentiels suivants :

- Beaucoup de données et de travaux sont disponibles sur les substances réglementées en France : éléments traces métalliques, hydrocarbures aromatiques polycycliques et polychlorobiphényles.
- A l'inverse, peu de données permettent d'évaluer de manière robuste le devenir des polluants considérés aux différentes étapes de traitement des boues. Les données disponibles sont souvent reportées en concentrations (parfois uniquement à l'échelle du laboratoire) et non en bilans matières et flux globaux.
- Au niveau français, quelques grands programmes structurants tels qu'AMPERES et ARMISTIQ, les études ADEME passées et en cours ainsi que les expérimentations au champ longue durée de l'INRA ont permis et continuent de permettre l'acquisition de données et l'amélioration des connaissances.

On note enfin un fort besoin de connaissances nouvelles sur :

- le devenir de certaines substances, notamment les résidus médicamenteux et les perturbateurs endocriniens (exemple : phtalates, alkylphénols, ...)
- les transferts des polluants après épandage vers les différents compartiments de l'environnement, notamment vers les nappes, afin d'intégrer ces connaissances dans une démarche d'évaluation des risques environnementaux et sanitaires plus complète.

Mots clés

Micropolluants, boues, épandage

Panorama of research projects and perspectives on the problematic of micropollutants in sewage sludge

Final report

Emmanuelle UGHETTO

Abstracts

Although municipal sewage sludge (sludge from urban wastewater treatment systems) contains nutrients and organic matter, it can also contain various pollutants: heavy metals, organic substances, pathogenic microorganisms. The transfer of a large part of these substances from wastewater to sludge has already been well documented.

The confirmed presence of micropollutants, regulated or not, in sewage sludge shows the necessity to study their fate and their impacts on environment, from sludge production to its application to land.

In this context, ONEMA solicited INERIS to carry out a panorama of research projects (completed and ongoing works) on these issues with the following objectives:

- Identify current knowledge on the issue of the presence of micropollutants, regulated or not, in municipal sludge, throughout the recycling routes (from production to land spreading),
- Identify, insofar as possible, the lack of knowledge on these issues in order to identify needs and opportunities for future work and research actions that could be taken in the short and medium term.

This work is part of the action No. 17 of the national action plan against pollution of water bodies by micropollutants²: "Developing and pursuing further studies for better understanding of pollution sources and their fate in the environment to establish assessments of the sources of contamination."

To conduct this study, an extensive literature review was first carried out. It focused on scientific publications and theses as well as "grey literature" such as reports written by organizations working on the subject or conference proceedings. Meanwhile, interviews were conducted with key stakeholders identified in the themes studied. In addition, a bibliometric analysis of all references obtained was carried out to produce quantitative indicators.

This panorama was built around the following themes:

- Characterization of micropollutants in sewage sludge
- Substances potentially present in sewage sludge
- Fate of micropollutants during stages of sludge treatment,
- Transfers of micropollutants in the environment after application of sewage sludge to land (soil, plants, underground and surface waters, animals and air)
- Health risks and environmental impacts.

The analysis of information and data collected through this research gave a good synthesis of the current state of knowledge on the themes studied. This work has also focused on identifying needs and opportunities for future research work that would be necessary to conduct in the short and medium term.

The following key points were identified:

- Many works and data are available on controlled substances in France: trace metals, polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated biphenyls.
- Conversely, few robust data allow assessing the fate of pollutants at different stages of sludge treatment. The available data are often reported in concentrations (sometimes only at the laboratory scale) and not in mass balances.

² MEDDTL, 13 octobre 2010. Plan National Micropolluants 2010 – 2013.
INERIS – DRC-12-118975-02397A

- In France, some major programs such AMPERES, ARMISTIQ, ADEME studies or INRA long-term field experiments have allowed data and knowledge acquisition.

Finally, we note a strong need for new knowledge on:

- The fate of some substances, including drug residues and endocrine disruptors (e.g.: phthalates, alkylphenols, ...);
- Transfers of pollutants after sludge application to land in the environment, particularly to groundwater, in order to integrate this knowledge in health and environmental risk assessment studies and complete them on this point.

Key words

Micropollutants, Sewage sludge, Land application

Panorama des projets de recherche et perspectives sur la problématique des micropolluants dans les boues de stations de traitement des eaux usées urbaines

Rapport final

Emmanuelle UGHETTO

1. GLOSSAIRE

ADEME	Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie
AGREDE	Programme de recherche et développement interdisciplinaire intitulé « Agriculture et épandage de déchets urbains et agro-industriels », mis en place par l'INRA et financé par l'INRA et l'ADEME
AMPERES	Programme de recherche intitulé « Analyse de Micropolluants Prioritaires et Émergents dans les Rejets et les Eaux Résiduaire »
AOX	Composés organohalogénés adsorbables sur charbon actif
AQUAREF	Laboratoire national de référence pour la surveillance des milieux aquatiques
ARMISTIQ	Programme de recherche intitulé « Amélioration de la réduction des micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées domestiques ». Partenaires : IRSTEA (Cemagref), CIRSEE et ISM-LPTC. Financé par l'Agence Nationale de la Recherche.
CCME	Conseil canadien des ministres de l'environnement
COHV	Composés Organiques Halogénés Volatils
CTO	Composés Traces Organiques
DDT, DDD, DDE	DDT : dichlorodiphényltrichloroéthane (pesticide). Ses produits de décomposition sont : DDD : dichlorodiphényldichloroéthane DDE : dichlorodiphényldichloroéthylène Polluants organiques persistants. La quantité totale de ces produits est connue sous le nom de DDT total.
DEB	Direction de l'eau et de la biodiversité
DEHP	Di(2-ethylhexyl) phtalate
DIGUE	Programme de recherche pour évaluer de nouveaux procédés d'amélioration des performances de la méthanisation des boues urbaines. Piloté par Suez, 2006 – 2009. Financé par l'Agence Nationale de la Recherche.
ECHIBIOTEB	Programme de recherche intitulé « Outils innovants d'échantillonnage, d'analyses chimiques et biologiques pour le suivi de traitement avancés des eaux usées et des boues » Partenaires : IRSTEA (Cemagref) (coordinateur), SUEZ Environnement, Université Bordeaux 1 – LPTC, Université Paris Sud XI, INERIS, Envolution. Financé par l'Agence Nationale de la Recherche.
EPANDAGRI	Projet de recherche intitulé « Étude d'un secteur agricole pollué par des épandages d'eaux usées : bilan environnemental et possibilités de reconversions végétales », mené par l'INRA
ERE	Évaluation des Risques Environnementaux
ERS	Évaluation des Risques Sanitaires

ETM	Éléments Traces Métalliques
FP2E	Fédération professionnelle des entreprises de l'eau
HAP	Hydrocarbures aromatiques polycycliques
INERIS	Institut National de l'Environnement industriel et des Risques
INRA	Institut National de la Recherche Agronomique
IRSTEA	Institut national de Recherche en Sciences et Technologies pour l'Environnement et l'Agriculture (originellement Cemagref, Centre national du machinisme agricole, du génie rural, des eaux et des forêts)
LAS	Sulfonates d'alkylbenzène linéaires (linear alkylbenzene sulfonates)
MEDDTL	Ministère de l'Écologie, du Développement durable, des Transports et du Logement
MS	Matières sèches
NP, NPE	Nonylphénols et nonylphénols éthoxylés
NRC	National Research Council
OCDE	Organisation de coopération et de développement économiques
OMR (compost)	Compost issu de la valorisation des ordures ménagères résiduelles (OMR)
ONEMA	Office national de l'eau et des milieux aquatiques
PBDE	Polybromodiphényles éthers (ou diphényléthers polybromés)
PCB	Polychlorobiphényles
PCDD / PCDF	Polychlorodibenzodioxines / polychlorodibenzofuranes
PFAS	Sulfonates alkylperfluorés Terme générique utilisé pour désigner tout composé sulfonate à chaîne carbonée totalement fluorée. Il inclut les PFOS ainsi que tous les homologues à plus ou moins longue chaîne.
PFOA	Acide perfluorooctanoïque
PFOS	Perfluorooctane sulfonate
PPCP	Produits pharmaceutiques, cosmétiques et produits d'hygiène corporelle (Pharmaceuticals and Personal Care Products)
PRO	Produits Résiduels Organiques
RITTMO Agroenvironnement	Centre de recherche appliquée, d'expertises et de prestations techniques dans les domaines de la fertilisation organique et de l'agroenvironnement
RSDE	Action nationale de Recherche et de Réduction des Rejets de Substances Dangereuses dans l'Eau
RSPRO (réseau)	Retour au Sol des Produits Résiduels Organiques. Réseau de quatre dispositifs expérimentaux coordonnés par l'INRA ayant pour objectif de caractériser à l'échelle de la parcelle les impacts à long terme de l'épandage de produits résiduels organiques (« PRO »).
STEU	Station de traitement des eaux usées urbaines
SYPREA	Syndicat des professionnels du recyclage en agriculture
UPMC	Université Pierre et Marie Curie
USEPA	United States Environmental Protection Agency (États-Unis)
WERF	Water Environment Research Foundation (États-Unis)

2. INTRODUCTION

2.1 CONTEXTE DE L'ETUDE : BOUES DE STATIONS DE TRAITEMENT DES EAUX USEES URBAINES ET MICROPOLLUANTS

Les stations de traitement des eaux usées (STEU) urbaines ont pour fonction de traiter les eaux usées produites par les activités domestiques (et industrielles dans certains cas) avant rejet dans le milieu naturel. Le traitement des eaux usées vise notamment à dégrader ou retenir les matières qu'elles contiennent. Ces dernières constituent les boues d'épuration. La production de boues d'épuration urbaines est en constante augmentation, avec l'amélioration du traitement des eaux usées et la croissance de la proportion de la population raccordée aux réseaux de collecte, liées notamment à la mise en œuvre de la directive européenne du 21 mai 1991, relative au traitement des eaux résiduaires urbaines. Ainsi, en France, la quantité de boues produites par les STEU urbaines est estimée à 976 000 tonnes de matières sèches en 1998 ((IFEN, 1998) et à 1 180 000 tonnes de matières sèches en 2008 (MEEDDAT, 2009), soit une augmentation d'environ 21 % en 10 ans. Les prévisions établies par la Commission européenne pour la France à l'horizon 2020 (Milieu Ltd *et al.*, 2010) s'élèvent à 1 600 000 t MS / an.

Par ailleurs, on note une préoccupation grandissante sur la présence de substances dangereuses dans l'environnement. La Directive Cadre sur l'Eau 2000/60/CE préconise la réduction voire la suppression des rejets de substances prioritaires dans les milieux aquatiques. Parallèlement, une partie des substances présentes dans les eaux usées se retrouvent dans les boues d'épuration après traitement. Si les boues contiennent des éléments nutritifs et des matières organiques, elles sont également chargées en polluants divers : éléments traces métalliques, substances organiques, microorganismes pathogènes, etc.

La présence potentielle de micropolluants, réglementés ou non, dans les boues de STEU urbaines pose la question de leur devenir et de leur impact sur les milieux. Ces éléments restent parfois mal connus et il convient de poursuivre et d'articuler les travaux de recherche afin de s'assurer de la maîtrise des micropolluants tout au long des filières de gestion et de valorisation des boues pour préserver les milieux.

2.2 OBJECTIFS DE L'ETUDE

Dans ce contexte, l'ONEMA a sollicité l'INERIS pour réaliser un panorama des projets de recherche passés et en cours sur la problématique des micropolluants dans les boues de STEU urbaines et identifier les perspectives de recherche et besoins de travaux futurs dans ce domaine.

Les objectifs de cette étude sont multiples. Il s'agit :

- de dresser l'état des connaissances actuelles sur la problématique des micropolluants, réglementés ou non, et leurs impacts sur les milieux, depuis leur production jusqu'à l'épandage, en passant par les étapes de traitement,
- de mettre, dans la mesure du possible, les résultats en perspective afin d'identifier les manques de connaissances qu'il conviendrait de combler,
- d'alimenter la réflexion, notamment au sein du GT national « Boues » (initié en 2010 et piloté par la Direction de l'Eau et de la Biodiversité du Ministère en charge de l'Écologie) sur la problématique des micropolluants dans les boues en identifiant les besoins de travaux futurs et les perspectives de recherche à court et moyen termes.

Ce travail est essentiellement centré sur la filière épandage, les autres filières (principalement incinération et mise en décharge) n'ayant pas été approfondies.

Ce panorama des projets de recherche passés et en cours a été construit autour des thématiques suivantes :

- Caractérisation des micropolluants dans les boues³,
- Substances potentiellement présentes dans les boues,
- Devenir des micropolluants lors des étapes de traitement des boues,
- Transferts des micropolluants dans l'environnement après épandage de boues : sols, végétaux, milieux aquatiques, animaux et air,
- Risques sanitaires et impacts environnementaux.

Ce travail s'inscrit dans l'action n°17 du Plan national d'action contre la pollution des milieux aquatiques par les micropolluants⁴ : « *Valoriser et poursuivre les études permettant de mieux connaître les sources de pollution et leur devenir dans l'environnement pour établir des bilans des sources de contamination* ».

Par ailleurs, il s'inscrit dans la continuité des études déjà réalisées par l'INERIS sur la problématique des micropolluants dans les boues (INERIS, 2006) ; (INERIS, 2010b) ; (INERIS, 2011b). Il vient compléter ces études précédentes en allant plus loin dans le sens où il s'attache à faire le point sur l'état des connaissances actuelles sur ces sujets et à identifier les perspectives d'action et de R&D qui pourraient être engagées à court et moyen termes.

2.3 PERIMETRE DE L'ETUDE

Le cadrage de l'étude a été défini en début de projet avec l'ONEMA et les membres du GT national « Boues ». Ainsi, les projets menés sur les dix dernières années ont été pris en compte⁵. La majorité des travaux menés sur la problématique des micropolluants (non réglementés, au sens large) dans les boues a en effet été menée au cours de cette période. Les projets français et européens ont été analysés en priorité. Le périmètre des recherches a été élargi à d'autres pays (notamment États-Unis et Canada) de manière ponctuelle, mais sans rechercher l'exhaustivité.

Cette étude traite des micropolluants, c'est-à-dire des substances qui sont susceptibles d'avoir une action toxique à des teneurs infimes, dans un milieu donné⁶ (de l'ordre du µg/kg MS dans les boues (voire mg/kg ou ng/kg pour certaines substances)). Dans le présent rapport, le terme micropolluants inclut donc à la fois les éléments métalliques (dits « éléments traces métalliques ») et les substances organiques (dits « composés traces organiques »).

On distingue les polluants réglementés et, par opposition, les polluants émergents (non réglementés en France à ce jour). Les polluants actuellement réglementés en France dans le cadre de l'arrêté du 8 janvier 1998⁷ relatif aux épandages de boues sur les sols agricoles sont 7 métaux ou éléments traces métalliques (ETM) (cadmium, chrome, cuivre, mercure, nickel, plomb et zinc), 3 hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) (fluoranthène, benzo[b]fluoranthène, benzo[a]pyrène) et 7 polychlorobiphényles (PCB).

Les recherches n'ont pas été limitées, a priori, à une liste prédéfinie de substances afin de laisser ouvert le champ d'investigations et, dans la mesure du possible, d'identifier des substances potentiellement préoccupantes dans les boues mais pour lesquelles peu de travaux ont été menés jusqu'alors.

Les sédiments et les matières de vidange ainsi que les boues industrielles sont exclus du périmètre de l'étude, qui ne concerne que les boues de STEU urbaines. Les microorganismes pathogènes sont également exclus du champ d'étude.

³ Notons que l'étude n'a pas pour objet de traiter cette thématique de manière approfondie (celle-ci étant développée par ailleurs dans le cadre d'autres travaux).

⁴ MEDDTL, 13 octobre 2010. Plan National Micropolluants 2010 – 2013.

⁵ A noter que bien qu'antérieures à 2000, certaines références trouvées au fil des recherches et considérées comme pertinentes ont toutefois été prises en compte dans la synthèse.

⁶ Définition tirée du Plan National Micropolluants 2010 – 2013. MEDDTL, 13 octobre 2010.

⁷ Arrêté du 08/01/98 fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages de boues sur les sols agricoles pris en application du décret n°97-1133 du 08/12/97 relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées.

3. DÉMARCHE ADOPTÉE ET MÉTHODOLOGIE

3.1 DEMARCHE ADOPTEE

Une recherche bibliographique approfondie a tout d'abord été menée. Elle a porté sur les publications scientifiques et les thèses ainsi que sur la « littérature grise » tels que les rapports publiés par des organismes travaillant sur le sujet ou des actes de congrès.

Afin de compléter et d'étayer les informations acquises grâce à ces recherches bibliographiques, des entretiens auprès d'experts et chercheurs travaillant sur les thématiques étudiées ont été menés.

Par ailleurs, une analyse bibliométrique de l'ensemble des références bibliographiques obtenues dans la base ISI Web of Science a été réalisée. Une première étape de tri des références pertinentes a permis d'avoir une approche qualitative des résultats obtenus. Puis, le corpus de références obtenu étant conséquent (environ 800 références après sélection sur la pertinence), il nous a en effet paru intéressant de tenter de produire des indicateurs quantitatifs permettant de mettre en perspective le contenu de ce corpus et d'en tirer des enseignements pour notre étude. Les analyses bibliométriques sont notamment utilisées pour dresser des états de la recherche dans différents domaines. Cette analyse, les résultats obtenus et leur interprétation sont développés en annexe I.

3.2 METHODOLOGIE DE RECHERCHE

Compte tenu de l'objectif de l'étude - dresser un panorama des travaux scientifiques dans un domaine thématique -, il a été décidé dans le cadre de la recherche documentaire de s'intéresser aux types de documents suivants, qui rendent compte des avancées de la recherche scientifique (notamment de la recherche fondamentale) :

- **Publications scientifiques.** Différentes sources ont été consultées :
 - des bases bibliographiques (ISI Web of Science avec proceedings, voir la partie 2.1 de l'annexe I pour plus d'informations, la base REFDOC⁸ de l'INIST, permettant de retrouver davantage d'articles francophones),
 - des archives ouvertes (la base HAL (Hyper Articles en Ligne)⁹, archive ouverte française développée par le CNRS, mais aussi les archives ouvertes institutionnelles d'organismes travaillant sur le sujet : CemOA¹⁰ pour l'IRSTEA (ex-Cemagref), ProdINRA¹¹ pour l'INRA, ...),
 - des plateformes d'éditeurs (notamment Science Direct¹², regroupant l'éditeur Elsevier et d'autres éditeurs associés),
 - des sites de revues spécialisées, notamment pour des revues francophones (« Techniques Sciences Méthodes »¹³, « Environnement Risques Santé »¹⁴, ...).
- **Thèses et habilitation à diriger des recherches (HDR).** Les thèses et HDR ont l'avantage de présenter une étude bibliographique détaillée, qui permet de faire la synthèse à un moment donné des connaissances dans un domaine d'étude. Les sources interrogées sont les suivantes :
 - TEL (thèses-en-ligne)¹⁵, sous-partie de HAL (Hyper Articles en Ligne)¹⁶ dédiée aux thèses,
 - Fichier centralisé des thèses¹⁷,
 - THESA¹⁸, qui recense les sujets de thèses en cours ou soutenus, dans les écoles d'ingénieurs et de management appartenant à la Conférence des Grandes Écoles,

⁸ <http://www.refdoc.fr>

⁹ <http://hal.archives-ouvertes.fr>

¹⁰ <http://cemadoc.cemagref.fr>

¹¹ <http://www.prodinra.inra.fr>

¹² <http://www.sciencedirect.com>

¹³ <http://tsm.astee.org>

¹⁴ http://www.jle.com/fr/revues/sante_pub/ers/sommaire.md

¹⁵ <http://tel.archives-ouvertes.fr>

¹⁶ <http://hal.archives-ouvertes.fr>

¹⁷ <http://www.fct.abes.fr>

¹⁸ <http://thesa.inist.fr>

- DART Europe¹⁹, site réalisé par un partenariat de bibliothèques pour l'accès aux thèses de recherche européennes,
 - SUDOC²⁰, catalogue commun des bibliothèques universitaires françaises,
 - recherches sur Internet, ...
- **Rapports.** Les rapports constituent également un moyen de publication de travaux et sont parfois la forme unique de diffusion des résultats. Diverses pistes ont été utilisées :
 - recherches sur Internet,
 - exploration des sites web d'organismes travaillant sur le sujet et de leurs archives ouvertes. Il est à noter que les recherches spécifiques sur des sites web dans le domaine d'étude ont concerné essentiellement la France, mais ont été également étendues à l'Europe et au monde (notamment États-Unis et Canada).
- **Actes de congrès.** Compte tenu du circuit de publication et du temps parfois relativement long entre soumission et acceptation définitive d'un manuscrit corrigé, il a semblé intéressant de s'intéresser aux congrès et conférences, dans lesquels les résultats présentés peuvent être plus récents (et ne pas avoir encore fait l'objet d'une publication). Par ailleurs, toutes les disciplines ne diffusent pas de la même façon les résultats scientifiques, et dans certains cas, les communications à un congrès sont les formes prédominantes de diffusion.

3.3 ENTRETIENS AVEC DES CHERCHEURS / EXPERTS

Afin de compléter et d'étayer les informations acquises grâce à ces recherches bibliographiques, des entretiens auprès d'experts et chercheurs travaillant sur les micropolluants dans les boues ont été réalisés. Un des objectifs de ces entretiens était également d'échanger sur les perspectives d'actions et besoins de travaux futurs qui auraient pu être identifiés par ces acteurs. Pour ce faire, un questionnaire a été élaboré afin de structurer les entretiens (cf. annexe III).

Parmi les personnes sollicitées, 4 entretiens téléphoniques ont pu être menés avec des chercheurs de l'IRSTEA (M. Choubert J-M.), de l'INRA (Mme Patureau D.), de la SAUR (M. Reveau G.) et de l'Université Pierre et Marie Curie (Mme Blanchard M.). Un échange d'information permettant de cibler les enjeux de la problématique étudiée a également été mené avec M. Bacholle C., consultant Uteam²¹.

Des entretiens et échanges avec 14 experts de l'INERIS dans le domaine des boues, des substances dangereuses et émergentes, des procédés de traitement des boues et des émissions associées, de la caractérisation des déchets et des transferts de polluants au niveau des sols ainsi que de l'évaluation des risques sanitaires et environnementaux ont également été menés afin de mobiliser l'ensemble de l'expertise développée au sein de l'INERIS sur ces sujets.

3.4 LIMITES DE L'ETUDE

Bien que les recherches bibliographiques dans la cadre de cette étude aient été menées de la manière la plus complète et approfondie possible, on ne peut garantir l'exhaustivité des références obtenues, compte tenu de l'étendue de la problématique et du champ d'investigation (différentes thématiques étudiées).

Par ailleurs, les recherches ont abouti à un nombre très important de références, plus ou moins pertinentes. A titre d'exemple, la recherche sur la base ISI Web of Science a abouti à environ 2 500 références. Ces dernières ont ensuite été triées manuellement selon leur pertinence pour obtenir un corpus de 800 références²². Puis, une priorisation et une sélection des articles les plus pertinents ont été réalisées. Les articles les plus récents ou encore les revues de la littérature ont par exemple été analysés en priorité.

¹⁹ <http://www.dart-europe.eu>

²⁰ <http://www.sudoc.abes.fr>

²¹ Nous remercions ces personnes pour leur disponibilité et le temps qu'ils nous ont accordé pour les entretiens.

²² Après une étape de sélection des références correspondant bien à la problématique étudiée.

On peut par ailleurs noter le fait que relativement peu de références proviennent des autres pays européens. On pourrait donc en conclure que certains pays travaillent a priori peu sur la problématique des micropolluants dans les boues. Mais d'autres raisons peuvent toutefois expliquer ce fait. Les résultats des travaux peuvent en effet ne pas être publiés ou ne pas être facilement accessibles via les recherches menées. Certains documents sont par ailleurs en version originale et ne sont pas disponibles en version anglaise. Rappelons enfin que les recherches ont été prioritairement menées sur les travaux français puis européens.

Enfin, une difficulté relevée au cours de l'analyse des documents réside dans le fait que la comparaison des résultats de différentes études n'est pas toujours aisée compte tenu de l'hétérogénéité des cas étudiés. Citons par exemple, l'hétérogénéité des stations étudiées, du type de boues étudiées, des procédés de traitement des boues et des conditions opératoires mises en œuvre, des échelles d'études (laboratoire, pilote ou industrielle), des méthodes de prélèvement d'échantillons et d'analyse de certains composés pouvant être utilisées (donc des limites de quantification utilisées), etc. Il est par ailleurs important de noter que les données nécessaires à la comparaison des résultats et à leur interprétation ne sont pas toujours disponibles dans les publications.

4. CARACTÉRISATION DES MICROPOLLUANTS DANS LES BOUES

La maîtrise du prélèvement de boues et de l'analyse des composés traces conditionne la fiabilité et la qualité des données mesurées et leur comparabilité. Les besoins analytiques pour les composés réglementés en France sont globalement satisfaits (norme NF EN 13346²³ pour les ETM et XP X33-012²⁴ pour les HAP et PCB). Toutefois, peu de méthodes d'analyses normalisées existent dans le domaine des boues. Depuis 1993, des travaux de normalisation européenne sur les « méthodes de caractérisation des boues et produits » sont en cours. L'avancement de ces travaux est suivi au fil de l'eau et rapporté au niveau français au travers des rapports annuels de synthèse des travaux de normalisation eau / boues de l'INERIS (INERIS, 2010a).

En parallèle de cette organisation, un programme européen pré-normatif intitulé HORIZONTAL, financé par la Direction Générale (DG) de l'Environnement de l'UE, a été initié en décembre 2002. Son objectif principal est de répondre au besoin d'harmonisation des méthodes d'analyses en développant des méthodes horizontales aussi harmonisées que possible pour chacune des matrices solides boues, sols et déchets afin de limiter l'impact économique de leur mise en œuvre. Ces méthodes sont ensuite valorisées sous forme de textes normatifs (via le CEN TC400).

Pour les substances du projet de révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE²⁵, des méthodes d'analyses ont été développées sous mandat européen (Mandat M/330) dans le cadre du programme HORIZONTAL. Dans le cas de l'adoption de ces substances dans le cadre réglementaire, des méthodes seront donc disponibles et les besoins analytiques seront globalement couverts.

Pour les autres composés organiques, des méthodes issues d'autres domaines (méthodes portant sur d'autres matrices telles que les eaux, les sols, les déchets ou la nutrition animale) peuvent être adaptées pour l'analyse des boues. Une liste de ces méthodes peut être trouvée dans le rapport de synthèse des travaux 2008 de normalisation eau / boues de l'INERIS (INERIS, 2009a).

Parallèlement, au niveau français, le programme AMPERES a permis des développements analytiques pour fiabiliser l'analyse d'une liste élargie de substances dans les boues. Les progrès acquis ainsi que les difficultés rencontrées sur ce volet analytique ont été partagées lors d'une réunion dédiée du GT « méthodes d'analyse physico-chimiques » de la commission P16P « caractérisation des boues » qui a eu lieu le 23 novembre 2011.

Dans le cadre de la convention AQUAREF 2012, l'INERIS est chargé de proposer une première version d'un module sur les prélèvements et analyses de différentes matrices solides (boues, engrais, lisiers, composts). Dans ce même cadre, l'INERIS est également chargé de réaliser un état des lieux des pratiques de prélèvement et d'analyse des boues pour ce qui concerne les micropolluants. Une compilation des méthodes officielles existantes (normalisées, EPA, AMPERES) pour l'analyse des micropolluants dans les boues ainsi qu'une estimation de leurs performances (via bibliographie) sera réalisée.

Sur le volet prélèvement, notons également que la révision de norme NF EN ISO 5667-13²⁶ sur l'échantillonnage des boues provenant d'installations de traitement de l'eau et des eaux usées a été récemment publiée.

²³ Norme NF EN 13346, Décembre 2000. Caractérisation des boues - Détermination des éléments traces et du phosphore, méthodes d'extraction à l'eau régale.

²⁴ Norme XP X 33-012, Mars 2000. Caractérisation des boues - Dosage des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et des polychlorobiphényles (PCB).

²⁵ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

Pour mémoire, les familles de substances organiques ciblées en 2000 et 2003 dans les projets de révision de la directive 86/278/CEE sont les suivantes :

- version 2000 : HAP, PCB, NP et NPE, PCDD / PCDF, LAS, DEHP et AOX
- version 2003 : HAP, PCB, NP et NPE, PCDD / PCDF et LAS

²⁶ Norme NF EN ISO 5667-13, Juillet 2011. Qualité de l'eau – Échantillonnage – Partie 13 : Lignes directrices pour l'échantillonnage de boues provenant d'installations de traitement de l'eau et des eaux usées.

Enfin, notons qu'aucune exigence réglementaire (agrément ou accréditation) n'est imposée à ce jour pour les prestataires réalisant des analyses de boues. La note AQUAREF 08-0033A proposait la définition d'un cadre pour la prestation d'analyse de boues et le développement d'un agrément boues (à l'instar de l'agrément dans le domaine de l'eau et des milieux aquatiques²⁷). Néanmoins, le *status quo* dans l'évolution du réglementaire européen relatif aux boues ne rend pas prioritaire la décision sur une éventuelle mise en œuvre de cette proposition.

²⁷ Arrêté du 27/10/11 portant modalités d'agrément des laboratoires effectuant des analyses dans le domaine de l'eau et des milieux aquatiques au titre du code de l'environnement
INERIS – DRC-12-118975-02397A

5. SUBSTANCES POTENTIELLEMENT PRÉSENTES DANS LES BOUES ET GAMMES DE TENEURS

5.1 SUBSTANCES SUSCEPTIBLES D'ÊTRE PRÉSENTES DANS LES BOUES

Les connaissances relatives aux substances présentes dans les eaux résiduaires urbaines et dans les boues s'accumulent depuis quelques années. Une première synthèse a été établie en 2001 pour la Commission Européenne (European Commission, 2001). Le devenir des polluants organiques au sein de la filière « eau » des STEU et les mécanismes de transfert vers les boues sont de mieux en mieux connus, notamment en France, au travers des résultats du récent projet de recherche AMPERES.

Des éléments traces métalliques adsorbables et des substances organiques hydrophobes sont fréquemment retrouvés dans les boues (Eriksson *et al.*, 2008). Même si des lacunes subsistent, notamment concernant les polluants émergents, leur présence dans les boues a toutefois été documentée ((Harrison *et al.*, 2006) ; (Díaz-Cruz *et al.*, 2009) ; (Smith, 2009)).

Un rapport traitant des substances dangereuses et prioritaires²⁸ dans les boues a été produit par l'INERIS en 2006 (INERIS, 2006). A partir d'une liste assez large de substances (liste des 132 substances de la directive de 76/464/CEE²⁹ et liste des 33 substances de la directive 2000/60/CE³⁰) et en se basant sur les propriétés physico-chimiques de ces substances, l'étude a abouti à une sélection des substances susceptibles d'être transférées dans les boues. Un exercice de modélisation du même type, permettant de déterminer les substances susceptibles de se retrouver dans les boues à partir des propriétés intrinsèques de ces substances, a également abouti à l'hypothèse d'un transfert, qui pourrait être significatif, de certaines substances vers le compartiment boues (INERIS, 2010b). Ces deux études aboutissent à la sélection de listes sensiblement identiques de substances à considérer dans les boues d'épuration des eaux résiduaires urbaines et « pour lesquelles des investigations complémentaires seraient à mener » (le deuxième rapport (INERIS, 2010b) ciblant en plus quelques COHV, non cités dans le premier (INERIS, 2006)).

5.2 GAMMES DE TENEURS

Un recueil des données disponibles dans la littérature est nécessaire pour évaluer les gammes de teneurs des substances retrouvées dans les boues en France et dans d'autres pays. Différents travaux de recueil et de consolidation de ces données ont été menés (cf. sections 5.3 et 5.4 ci-dessous).

Notons qu'il convient d'être prudent dans l'entreprise d'un tel travail, compte tenu des limites suivantes : hétérogénéité des stations concernées, du type de boues étudié, des protocoles analytiques et limites de quantification pouvant être utilisés, etc. Il est d'ailleurs important de souligner que ce genre d'informations, indispensables pour apprécier la qualité des données et pour leur interprétation, ne sont pas toujours disponibles aux côtés des résultats dans les publications. Par ailleurs, les données sur les autres pays (Europe et États-Unis) peuvent être considérées à titre indicatif mais elles ne sont pas forcément représentatives de la situation française, les spécificités de gestion de l'assainissement pouvant différer d'un pays à l'autre (par exemple, réglementations distinctes en termes de substances visées, produits utilisés pour les usages domestiques et/ou industriels, taux de raccordement de la population aux réseaux collectifs de traitement des eaux urbaines, taux d'industries raccordées à ces réseaux, gestion des eaux pluviales, ...).

²⁸ Au titre des directives 76/464/CEE et 2000/60/CE (DCE).

²⁹ Directive 76/464/CEE du 04/05/76 concernant la pollution causée par certaines substances dangereuses déversées dans le milieu aquatique de la Communauté.

³⁰ Directive 2000/60/CE du Parlement Européen et du Conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau.

5.3 REFERENCES FRANÇAISES

➤ Substances réglementées

Deux ouvrages de l'ADEME publiés en 1995 fournissent des données sur les métaux et les composés organiques réglementés (HAP et PCB) dans les boues résiduelles des STEU urbaines en France ((ADEME et al., 1995a)).

L'étude réalisée en 2000 (environ 2 000 analyses sur plus de 300 STEU, correspondant à 270 000 t de MS) (SYPREA, 2000), ainsi que l'enquête réalisée en 2003 par le SYPREA auprès de ses adhérents sur les boues recyclées en agriculture (SYPREA, 2004), quantifient la présence d'ETM, de HAP et PCB dans les boues d'épuration. La réduction continue dans le temps des teneurs en ETM est observée dans l'enquête de 2003 par la comparaison de données de 1974/75 1989/93, 1996, 1999 et 2002 (SYPREA, 2004).

Des analyses statistiques sur un certain nombre de données ont été réalisées dans les années 2000. Les laboratoires Wolff Environnement et SAS ont ainsi réalisé un bilan des analyses des ETM et des CTO réglementés sur un grand nombre d'échantillons (environ 8000) datant de janvier 1998 à avril 2000 (Laboratoires Wolff Environnement et Laboratoire SAS, 2000). Par ailleurs, dans le cadre des réflexions sur la révision de la réglementation européenne relative à l'épandage des boues, le ministère en charge de l'écologie a confié en 2000 à l'ASTEE une étude statistique des analyses réalisées en 2000 et 2001 sur les substances réglementées (ETM, HAP et PCB) dans les boues d'un ensemble de 630 STEU urbaines (AGHTM, 2002a). L'étude comprenait également une campagne d'analyses de la qualité des boues de 60 boues de STEU françaises sur les substances visées par le projet de révision (version 2000) de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE³¹ (AGHTM, 2002b). Ces travaux ont permis la compilation d'un certain nombre de données au niveau français.

➤ Substances émergentes

Bien que non réglementés au niveau européen et en France, un grand nombre de composés traces organiques est présent dans les boues. En France, des études ponctuelles ainsi que le programme AMPERES ont permis d'acquies des données sur ces substances dans les boues.

Veolia Environnement (Anjou Recherche) et Suez Environnement (CIRSEE) ont réalisé une étude en 2006 sur la présence et le devenir des perturbateurs endocriniens (alkylphénols et hormones : 17 α et 17 β -oestradiol, oestrone et éthyniloestradiol) dans des STEU urbaines. Une campagne de mesures a été réalisée sur 8 STEU sur les filières eau et boues. Les résultats montrent que 75 % des hormones sont dans la phase eau, dont 25 % sous forme conjuguée. Plus de 75 % des alkylphénols sont transférés à la phase solide (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006).

Un programme d'étude ADEME mené en 2007 par IRH Environnement a porté sur la présence de molécules pharmaceutiques à usage humain et vétérinaire dans les boues de 8 STEU urbaines (mêmes STEU que celles étudiées dans l'étude de Veolia et Suez ci-dessus) et des effluents d'élevage. 22 molécules antibiotiques ont été recherchées dans des échantillons d'origine urbaine (eaux brutes, eaux traitées et boues) et 19 molécules antibiotiques dans des échantillons d'effluents d'élevage, par des méthodes développées par IRH Environnement. Compte tenu des résultats obtenus (sommées des antibiotiques mesurés variant de 0,05 à 6,96 mg/kg MS dans les boues), et du caractère unique des mesures (un seul échantillon à chaque fois), les auteurs recommandent la poursuite de campagnes d'analyses sur ces molécules et l'acquisition de données sur un nombre plus important d'échantillons afin de valider les hypothèses et les résultats (IRH Environnement, 2007).

Le programme PIREN-Seine a mesuré en 2009 les teneurs de 20 antibiotiques dans des échantillons de boues issues de trois stations du SIAAP (Seine Aval, Seine Grésillons et Seine Centre) et de la STEU de Lagny. 9 antibiotiques sur 20 ont été quantifiés. Il s'agit de molécules utilisées en médecine humaine (domestiques et hospitaliers) et vétérinaire : tétracycline, triméthoprim et 7 quinolones (Dinh *et al.*, 2010).

³¹ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

Le programme de recherche AMPERES (2006-2009) avait pour objectif principal d'acquérir des connaissances et d'évaluer l'efficacité de réduction des substances prioritaires et émergentes par différentes filières de traitement des eaux usées. Une des étapes du programme AMPERES a consisté en la constitution de deux bases de données (une base spécifique pour les substances pharmaceutiques et une pour les autres substances) rassemblant les données disponibles dans la littérature (internationale) sur la présence de substances dans les boues, leurs teneurs, et leur abattement dans les filières eau et boues des STEU. Ce travail a conclu que, pour la plupart des substances, très peu de données sont disponibles sur la filière boue (teneurs et abattement) ((Martin Ruel et al., 2008) ; (Miege et al., 2009)). Le programme AMPERES a permis d'acquérir des données sur les teneurs d'un certain nombre de substances contenues dans les boues traitées de 21 STEU urbaines. 127 substances chimiques ont été étudiées, toutes n'ayant cependant pas été mesurées dans les boues.

Pratiquement toutes les substances qui ont été quantifiées dans les eaux usées brutes ont également été retrouvées dans les boues traitées. Les substances organiques hydrophobes tels que les HAP, les alkylphénols, le DEHP, certains PBDE, le tributylétain se trouvent majoritairement dans la fraction particulaire et sont fréquemment retrouvées dans les boues. La fréquence de quantification est supérieure à 70 % pour les métaux, les HAP (sauf l'antracène), les alkylphénols, le DEHP, le tributylphosphate, le 4-tert-butylphénol, et le benzothiazole. Certaines sont mesurées à de très faibles teneurs, notamment les substances les plus hydrophiles, présentes pour la plupart à des teneurs moyennes inférieures à 0,1 mg/kg MS (la majorité des pesticides, par exemple), mais aussi quelques substances hydrophobes (benzo(b)- et benzo(k) fluranthène, pentabromodiphényléther). La plupart des métaux et métalloïdes, le DEHP, le 4-NP1EC³² et le triclosan ont des teneurs moyennes supérieures à 10 mg/kg MS (voire 100 mg/kg MS pour certains métaux tels que le cuivre, le zinc, le titane ou le baryum) (Coquery *et al.*, 2011).

Par ailleurs, 38 substances pharmaceutiques ont été étudiées dans 17 boues traitées. Ces substances sont principalement présentes dans la phase dissoute (faiblement absorbées sur la phase particulaire) et sont retrouvées à des faibles teneurs dans les boues « traitées » (entre 1 et 245 µg/kg MS – valeurs moyennes), sauf l'aspirine et le kétoprofène (7 985 et 3 799 µg/kg MS, respectivement – valeurs moyennes) (Soulier *et al.*, 2011).

5.4 REFERENCES EN EUROPE ET EN AMERIQUE DU NORD

Les données collectées par la Commission Européenne en 2001 au travers d'enquêtes ou de campagnes de mesure réalisées sur les teneurs en composés traces organiques dans différents pays européens montrent que la plupart des pays européens³³ contrôlent également les composés organiques suivants : DEHP, LAS, NP et NPE, Dioxines, Furanes et AOX, alors qu'en France, les composés organiques réglementés se limitent aux HAP et PCB (ICON, 2001).

Par ailleurs, l'état de l'art dressé récemment pour la Commission Européenne (Milieu Ltd *et al.*, 2008b) et le rapport présentant différents scénarii relatifs à la révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE³⁴ (Milieu Ltd *et al.*, 2008a) citent plusieurs familles de substances pour lesquelles des « investigations complémentaires doivent être menées » (dont celles déjà intégrées dans le projet de révision de 2000 de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE) :

- HAP,
- PCB,
- Dioxines,
- Plastifiants (ex : phtalates dont DEHP),
- Résidus de détergents (ex : LAS, octyl et nonylphénols et leurs formes éthoxylées),
- Retardateurs de flamme (ex : polybromodiphényl éthers),
- Composés perfluorés,
- Solvants (Paraffines chlorées en particulier),
- Pharmaceutiques, cosmétiques et produits d'hygiène corporelle (PPCP) (ex : antibiotiques, triclosan), hormones naturelles et de synthèse (perturbation endocrinienne) ; pour lesquels la nécessité d'approfondissement des travaux d'évaluation des risques sanitaires est indiquée,

³² Acide nonylphénoxyacétique.

³³ Avant 2001, 15 pays européens.

³⁴ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

- Nanoparticules pour lesquelles l'évaluation de leur présence potentielle dans les boues épandues est préconisée

De plus, (Milieu Ltd *et al.*, 2008b) recommande également la surveillance et le maintien des efforts de recherche sur les ETM, et notamment certains ETM non réglementés à ce jour (l'exemple du tungstène est cité).

Une étude réalisée par VKM en 2009 (VKM, 2009) recense des teneurs moyennes mesurées dans les boues en Norvège, entre 1993 et 2007, pour les 7 ETM, les HAP, le DEHP, les LAS, le dibutylphthalate et les nonylphénols et éthoxylates. Cette étude souligne également le manque de données concernant les substances pharmaceutiques dans les boues. Deux campagnes de mesures sur environ 20 substances pharmaceutiques ont été menées en Norvège ((SFT, 2006), (SFT, 2007)). L'étude la plus récente porte sur les boues de la STEU urbaines de la ville d'Oslo³⁵ (SFT, 2007)). Elle révèle des fréquences de quantification de 100 % et des teneurs dans les boues pour des antibiotiques appartenant à la famille des tétracyclines (ex : oxytétracycline (< 0,01 - 2 mg/kg MS), tétracycline (0,2 – 6,7 mg/kg MS), doxycycline (< 0,01 – 1,3 mg/kg MS)) et des fluoroquinolones (ciprofloxacine (4 – 97,5 mg/kg MS)). Ces teneurs paraissent élevées, notamment pour la ciprofloxacine, avec des valeurs jusqu'à 1 000 fois plus élevées que celles mesurées dans le cadre du programme PIREN-Seine (Dinh *et al.*, 2010).

Quelques données ont pu être compilées dans un état des connaissances produit par l'INERIS sur les produits pharmaceutiques, les cosmétiques et les produits d'hygiène corporelle dans l'environnement (INERIS, 2009b). Des teneurs dans les boues sont reportées notamment pour des muscs synthétiques, des filtres UV et des siloxanes. Selon les résultats d'une étude (campagne de screening) conduite dans les pays nordiques (Nordic Council of Ministers, 2004), des teneurs élevées de muscs synthétiques ont été retrouvées dans les boues des STEU, avec notamment une teneur de 26,5 mg/kg MS pour la galaxolide et de 3,6 mg/kg MS pour la tonalide (valeurs maximales). Ce rapport conclut également au manque de données disponibles sur les teneurs de ces substances dans les différentes matrices environnementales et en particulier dans les matrices solides (boues et sédiments) et souligne le besoin de mieux connaître leur devenir dans les boues des STEU, dans les sols et les liens avec la chaîne alimentaire.

Par ailleurs, le rapport de l'INERIS (INERIS, 2006) compile des résultats d'études ponctuelles sur plusieurs substances menées par des institutions ou organismes européens (Espagne, Suède, Allemagne, etc.), ainsi qu'au Canada et aux États-Unis. Les revues rédigées par (Harrison *et al.*, 2006), (Smith et Riddell-Black, 2007), (Smith, 2008), (Smith, 2009) et (Díaz-Cruz *et al.*, 2009) compilent également un certain nombre de données mesurées en France, en Europe ou en Amérique du Nord.

Une campagne de mesures d'envergure sur les boues de 74 STEU urbaines de plus d'un million de gallons par jour (équivalent à 3 785 m³/j) a été menée par l'USEPA aux États-Unis sur 145 substances (dont des paramètres classiques, 28 métaux, 6 substances organiques (HAP et COV), 11 PBDE, 72 composés pharmaceutiques, des stéroïdes et des hormones) (US EPA, 2009a). L'US EPA a ensuite réalisé une analyse statistique de ces données, afin d'en déduire des estimations de rejets représentatives au niveau national (pour 34 des substances analysées) (US EPA, 2009b). Les résultats de cette campagne de mesure et de son analyse statistique sont publiés respectivement dans le rapport « Sampling and Analysis Technical Report » (US EPA, 2009a), en section 6, et dans le rapport « Statistical Analysis Report » (US EPA, 2009b) en section 4 notamment pour les 34 substances, ainsi qu'en annexe B pour toutes les substances analysées.

Sont reportés les résultats en concentrations pour toutes les substances, ainsi que l'analyse statistique menée pour les 34 substances avec les fréquences de quantification, les concentrations minimales et maximales ainsi que les estimations statistiques des concentrations moyennes, écarts-types et percentiles considérées comme représentatives au niveau national.

Ces travaux et cette campagne de mesure d'envergure avaient pour but d'obtenir des données d'occurrence (mises à jour pour les polluants déjà suivis, ou de nouvelles données pour des polluants « émergents ») ainsi que des estimations au niveau national des teneurs de ces polluants, l'objectif final étant de produire les données d'entrée nécessaires aux travaux d'évaluations des risques liés à

³⁵ Il est à noter que cette STEU reçoit les effluents de deux grands hôpitaux (dont le plus grand hôpital de la ville), en plus des eaux d'origine domestique.

la présence de ces polluants dans les boues épandues et, éventuellement, à des évolutions de la réglementation actuelle.

Au Canada, une revue de la littérature internationale a été menée en 2009 par le CCME avec pour objectif de compiler les données disponibles sur l'occurrence et les teneurs des substances dans les boues et les performances d'abattements de procédés de traitements des boues. Tout comme en France et dans les autres pays, cette revue de la littérature souligne le manque de données pour un certain nombre de substances (pharmaceutiques, produits cosmétiques et produits d'hygiène corporelle, retardateurs de flamme bromés, plastifiants et surfactants) en comparaison avec d'autres substances bien documentées (métaux, HAP, PCB, dioxines et furanes) (Hydromantis Inc. *et al.*, 2009). A la suite de ce travail, un programme de mesures ciblé a été lancé par le CCME (Hydromantis Inc. *et al.*, 2010). Les objectifs de ce programme étaient de produire des données sur l'occurrence et les teneurs de substances émergentes dans les boues canadiennes (11 STEU étudiées), ainsi que d'évaluer et émettre des recommandations sur des procédés de traitement qui permettrait de réduire les teneurs de micropolluants dans les boues. Les substances sélectionnées pour cette campagne sont des éléments traces métalliques, des composés alkylphénoliques (bisphénol A, nonylphénol et octylphénol), des substances odorantes de musc synthétique et des composés pharmaceutiques (antibiotiques, fluoroquinolones, macrolides et composés de sulfamides, carbamazépine et triméthoprimé (anticonvulsif), acétaminophène (analgésique), caféine et diphénhydramine (stimulants), ibuprofène et naproxène (anti-inflammatoires non stéroïdiens), triclosan et triclocarban (antibactériens), gemfibrozil (régulateur de lipides)).

Parmi les 57 composés organiques analysés, 20 n'ont jamais été détectés dans les boues traitées. 14 composés ont été détectés dans plus de 75 % des échantillons de boues susceptibles d'être épandues. Les teneurs retrouvées sont généralement de l'ordre du µg/kg MS (hors éléments traces métalliques). Les antibactériens triclosan et triclocarban, l'antibiotique ciprofloxacine et la substance odorante HHCB sont les composés les plus fréquemment détectés (sur au moins 9 des 11 sites) à une valeur dépassant 1 mg/kg MS.

La fréquence de détection et les teneurs mesurées sont généralement comparables à celles des composés correspondants de l'enquête nationale américaine de l'EPA sur les boues d'épuration citée ci-dessus.

5.5 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Ce travail de recherche et de recueil des données montre que les substances pour lesquelles on dispose du plus grand nombre de données sur la caractérisation des boues françaises sont les ETM, HAP et PCB (substances réglementées). Des travaux de compilation de ces données ont été menés dans les années 2000. Il pourrait être intéressant de remettre à jour ce type de compilation et d'analyses statistiques des niveaux de teneurs mesurés en France à ce jour (qui peuvent avoir évolué compte tenu de l'évolution de la pollution des eaux et des progrès réalisés dans les filières de traitement des eaux et des boues depuis ces dix dernières années). Par ailleurs, il est à noter que, contrairement aux ETM réglementés (7 ETM), peu de données sont disponibles sur les autres ETM tels l'arsenic³⁶, le sélénium³⁷, l'argent, le tungstène, et autres, pourtant potentiellement préoccupants et présents dans les boues (INERIS, 2006), (Milieu Ltd *et al.*, 2008b).

Après les substances réglementées en France, les substances les plus documentées sont celles figurant dans le projet de révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE³⁸. Les autres composés traces organiques, dits « émergents », sont bien moins documentés. Plusieurs études et programmes, français, européens et autres, ont pourtant documenté la présence d'un grand nombre de composés traces organiques dans les boues.

La revue des données publiées dans la littérature internationale réalisée dans le cadre du projet AMPERES a conclu au manque de données disponibles sur la filière boue (teneurs et abattement), pour la plupart des substances ((Martin Ruel *et al.*, 2008) et (Miege *et al.*, 2009)). En France, les données disponibles sur le sujet proviennent de quelques études ponctuelles menées dans les dix

³⁶ A noter que l'arsenic est réglementé dans le cadre de la norme NF U44095 sur les composts (norme NF U44095, mai 2002, Amendements organiques - Composts contenant des matières d'intérêt agronomique, issues du traitement des eaux).

³⁷ A noter que le sélénium est réglementé pour les boues destinées à être épandues sur pâturages, dans le cadre de l'arrêté du 08/01/98 fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages de boues sur les sols agricoles pris en application du décret n°97-1133 du 08/12/97 relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées.

³⁸ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

dernières années et du récent projet AMPERES. Il est toutefois important de noter que ce programme s'est surtout concentré sur la filière eau et la STEU dans son ensemble mais n'avait pas pour objet d'étudier spécifiquement la filière boue.

Le rapport INERIS (INERIS, 2006) recommande l'organisation d'une campagne de mesures exceptionnelle³⁹ dans les boues d'un large échantillon de STEU urbaines afin d'améliorer la connaissance des substances et la représentativité des niveaux de teneurs mesurés dans les boues françaises. Cette recommandation rejoint les attendus de l'action n°17 du Plan national d'action contre la pollution des milieux aquatiques par les micropolluants⁴⁰ qui prévoit l'amélioration des connaissances sur les substances présentes dans les boues et sur les processus de transfert vers les sols. Cela permettrait également de faire le lien avec l'action RSDE⁴¹, élargie aux STEU urbaines en 2010, qui prévoit une surveillance des rejets de micropolluants dans les eaux en sortie de STEP, mais qui n'inclut pas d'analyses sur les boues. Par ailleurs, la production de données d'occurrences et de teneurs fiables et représentatives au niveau national apparaît nécessaire afin de mener à bien les travaux d'évaluation des risques liés à l'épandage de boues urbaines (cf. section 8.3).

L'état des connaissances sur les produits pharmaceutiques, les cosmétiques et les produits d'hygiène corporelle dans l'environnement produit par l'INERIS (INERIS, 2009b) recommande également l'établissement d'un bilan de la présence de ces substances dans les boues des STEU utilisées sur les sols, mais aussi dans les viandes, les poissons, le lait et les végétaux, afin de mieux évaluer les risques pour l'homme qui ne sont abordés que par la consommation d'eau.

Le rapport INERIS (INERIS, 2006), à partir d'une liste assez large des substances réglementées dans les eaux au niveau européen (liste des 132 substances de la directive de 76/464/CEE⁴² et liste des 33 substances de la directive cadre sur l'eau (DCE) 2000/60/CE⁴³) aboutit à une sélection des substances susceptibles d'être transférées dans les boues. Cette liste de composés, complétée par les éléments apportés par le programme AMPERES (sur 21 STEU), ainsi que par les résultats des campagnes de mesures menées aux États-Unis (74 STEU), en Norvège et au Canada (11 STEU), pourrait constituer une bonne base de travail pour une recherche plus élargie de ces substances dans les boues françaises.

Il serait par ailleurs utile de prendre en compte les résultats du travail de hiérarchisation des substances dans le milieu aquatique effectué par le Comité national d'Experts pour la Priorisation des substances (CEP), sous la coordination de l'ONEMA et l'appui technique et scientifique de l'INERIS dans le cadre de l'action n°1 du Plan National Micropolluants 2010-2013. Une première phase de ce travail a abouti en 2011 à une liste de substances émergentes d'intérêt pour la campagne de mesures exceptionnelle de ces substances dans les milieux aquatiques (action 16 du Plan National Micropolluants 2010-2013). En particulier, la liste des substances identifiées dans cette étude comme pertinentes pour la matrice « sédiment » pourrait être comparée aux résultats des campagnes de mesures citées ci-avant.

³⁹ Notons qu'un travail de ce genre va être mené en France sur les milieux aquatiques : campagne de mesures exceptionnelle de substances émergentes d'intérêt dans les milieux aquatiques qui aura lieu en 2012 en métropole et dans les DOM. Ce travail fait partie de l'action n°16 du Plan National Micropolluants 2010 – 2013 du MEDDTL.

⁴⁰ MEDDTL, 13 octobre 2010. Plan National Micropolluants 2010 – 2013.

⁴¹ Action n°5 du Plan National Micropolluants 2010 – 2013 du MEDDTL.

⁴² Directive 76/464/CEE du 04/05/76 concernant la pollution causée par certaines substances dangereuses déversées dans le milieu aquatique de la Communauté.

⁴³ Directive 2000/60/CE du Parlement Européen et du Conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau.

6. DEVENIR DES MICROPOLLUANTS LORS DES ÉTAPES DE TRAITEMENT DES BOUES

6.1 TRAITEMENT DES BOUES

Les boues d'épuration sont généralement traitées du fait de leur forte teneur en matières organiques et en eau. Ces traitements consistent essentiellement :

- en une stabilisation pour bloquer toute activité biologique (exemple chaulage ou minéralisation plus ou moins poussée de la matière organique) l'objectif étant de réduire les odeurs dues à des fermentations anaérobies au cours du stockage ;
- et/ou en une déshydratation afin de réduire les volumes, et donc les coûts de transport et d'élimination.

Ainsi, il est possible de distinguer :

- des traitements de stabilisation chimique par addition de chaux vive (et plus rarement de chaux éteinte), de stabilisation biologique par action de micro-organismes saprophytes (digestion anaérobie, stabilisation aérobie),
- des traitements de réduction de la teneur en eau basés sur des procédés d'épaississement (décantation statique ou dynamique) ou de déshydratation (naturelle, mécanique ou thermique) réalisés après le conditionnement des boues (addition de polyélectrolytes, de sels métalliques ou de chaux qui entraîne la floculation des particules),
- des traitements complémentaires ou post-traitements qui permettent une meilleure stabilisation de la boue, une augmentation de sa siccité (et donc le changement de son état physique) ce qui facilite sa manipulation : compostage, chaulage, séchage thermique (INERIS, 2007).

Notons également que, dans la plupart des cas, les boues sont stockées ce qui contribue de manière non négligeable à leur traitement.

Les boues peuvent subir plusieurs traitements. Le choix des traitements à appliquer aux boues dépend de la quantité de boues à traiter, de la nature et des caractéristiques des boues, de la destination finale de ces boues.

Procédés étudiés dans le présent travail

Compte tenu du temps alloué à cette étude, la présente analyse a été centrée sur les procédés a priori susceptibles d'avoir le plus d'effet sur les micropolluants : procédés thermiques et biologiques. L'étude du chaulage, des procédés de traitement tels que la déshydratation, l'épaississement ou le conditionnement ainsi que des technologies émergentes pourrait être utile pour compléter cette analyse. Les substances et familles de substances traitées dans chaque partie (6.5, 6.6 et 6.7) sont celles pour lesquelles des références ont été trouvées dans la littérature.

*** Digestion**

La digestion est une stabilisation biologique appliquée aux boues brutes ou épaissies. Ce procédé a pour objectif de réduire le volume des boues et de dégrader la matière organique (en conditions anaérobies ou aérobies par aération forcée). Les boues digérées anaérobies peuvent ensuite être déshydratées, compostées, séchées ou chaulées. Elles peuvent ensuite être valorisées en agriculture, incinérées ou mise en décharge. Notons qu'un phénomène de digestion a également lieu lors du stockage des boues.

La digestion aérobie est généralement effectuée en bassin d'aération ou bassin de stabilisation aérobie. Notons qu'un phénomène de digestion aérobie a également lieu lors du compostage, mais on traite bien, dans cette partie, de la digestion opérée en bassin.

La digestion anaérobie, ou méthanisation, opérée dans des digesteurs, met en œuvre un processus de fermentation, qui a notamment pour conséquence la formation de biogaz (composé

essentiellement de méthane et de CO₂). Il y a donc perte de carbone des boues sous forme de biogaz et réduction de la quantité de matière sèche.

La digestion peut être opérée dans des conditions thermophiles, à 55°C, ou mésophiles, à 35°C (procédé le plus courant). Ces différentes conditions peuvent également être alternées. Une digestion anaérobie en deux phases consiste en une phase de digestion en conditions thermophiles suivie d'une phase en conditions mésophiles.

Le temps de séjour dans le digesteur peut avoisiner une vingtaine de jours. Les boues digérées (ou digestat) peuvent ensuite subir un séchage thermique ou être épandues. (Solagro, 2002) souligne l'intérêt de poursuivre un traitement anaérobie par un post-traitement aérobie (digestion anaérobie suivie d'un compostage par exemple) ou de le faire précéder d'un prétraitement aérobie.

*** Séchage**

Les objectifs du séchage thermique sont de réduire le volume des boues et d'éliminer un maximum d'eau. Il s'applique aux boues déshydratées. Les boues sont séchées sous l'action d'une chaleur appliquée par un fluide (séchage conductif, convectif ou mixte) ou par un rayonnement (séchage solaire). La température de séchage des boues varie selon les technologies employées. Elle peut être inférieure à 100°C pour des sècheurs basse température, et de 100°C à 550°C pour des sècheurs thermiques directs ou indirects (Nouvelles Techniques Environnementales (NTE)). Les boues peuvent atteindre une siccité de 95 % de MS. Elles peuvent ensuite être épandues ou incinérées.

Le séchage est un procédé éprouvé à l'échelle industrielle mais pour lequel les études sur le devenir des micropolluants sont peu nombreuses.

*** Compostage**

L'objectif du compostage est de permettre la dégradation de la matière organique, par des micro-organismes, dans des conditions aérobies et thermophiles. C'est un procédé de stabilisation biologique appliqué aux boues déshydratées ou digérées. Ces boues sont mélangées à des déchets organiques et le mélange placé en andains est aéré (aération forcée ou retournement). Le procédé se déroule en deux phases : la fermentation, qui permet l'hygiénisation des boues ; puis la maturation, pendant laquelle les micro-organismes transforment une partie de la matière organique résiduelle en humus stable. On obtient un compost stable et facilement stockable. Les composts sont généralement épandus sur les sols agricoles.

Lorsque l'on aborde le compostage par bilan de matière, il faut prendre en compte l'ajout du structurant carboné lors du mélange avant compostage qui implique une « dilution » des polluants contenus dans les boues. Ce structurant carboné peut par ailleurs lui-même avoir une certaine teneur en polluants (ETM, HAP, etc.). De plus, la réduction de matière au cours du compostage (oxydation de la matière organique) entraîne une concentration des polluants non biodégradables (RECYVAL SA et ADEME, 2000).

6.2 FILIERE EPANDAGE

L'ensemble des combinaisons possibles montre qu'il existe en théorie un grand nombre de types de boues. Toutefois, en résumant les situations les plus fréquemment rencontrées en France, les principaux types de boues proposées au recyclage en agriculture sont les suivants :

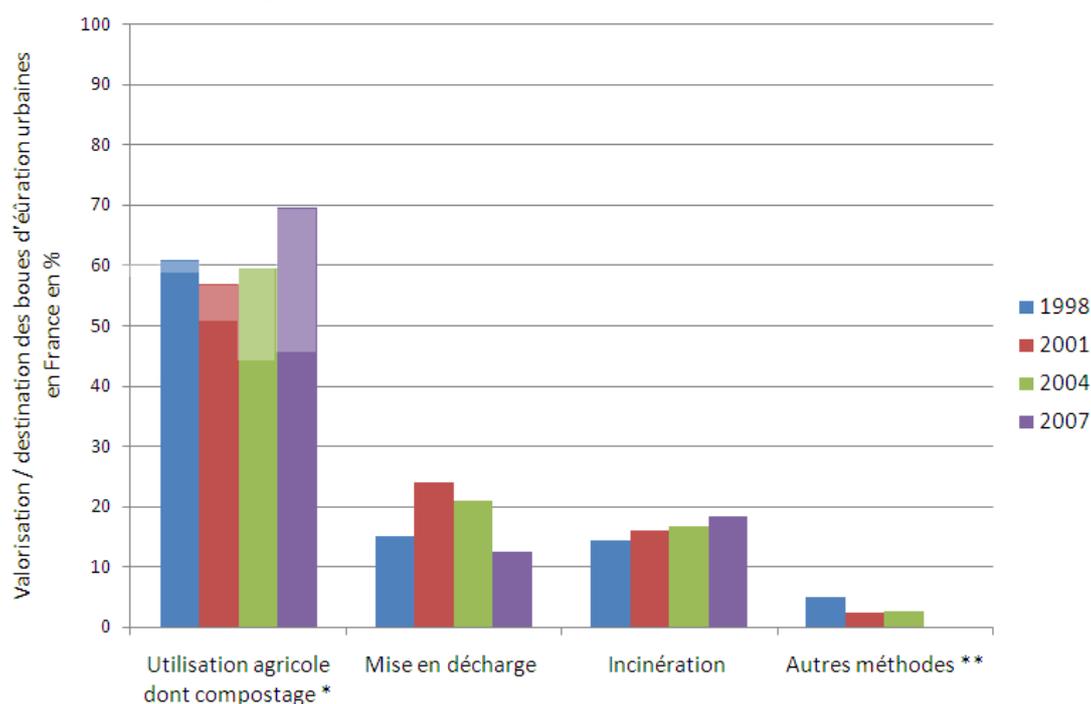
- boues liquides (2 à 5 % de siccité) issues de traitements aérobies de l'eau, qui correspondent en général à de petites stations (moins de 3 000 EH) qui opèrent au plus un épaissement puis un stockage des boues non traitées,
- boues pâteuses (15 à 25 % de siccité) issues de traitements aérobies ou anaérobies, qui correspondent à des stations de taille moyenne (de 5 000 à 20 000 EH) qui opèrent en général une déshydratation sur filtre à bande presseuse ou en centrifugeuse,

- boues chaulées (25 à 30 % de siccité) pâteuses ou solides, qui correspondent à des stations (environ 200 en France) de taille moyenne ou grande (de 20 000 à 100 000 EH) qui opèrent un traitement chimique à la chaux sur une boue déshydratée,
- boues physico-chimiques (très souvent il s'agit aussi de boues chaulées) qui sont rarement mises en agriculture,
- boues compostées qui correspondent à des stations de taille moyenne en général (environ 70 stations en France) qui opèrent un traitement par compostage sur une boue déshydratée,
- boues de lits de séchage qui sont issues de petites stations,
- boues de lagunage (catégorie particulière de boues liquides, le traitement de ces boues se fait de façon extensive, selon un mode anaérobie, au fond des bassins, qui ne sont curés au mieux qu'une fois tous les 10 ans),
- les boues séchées sont présentes en France dans quelques grandes stations malgré le coût élevé de leur production,
- les boues solides (plus de 30 % de siccité) faiblement chaulées résultent d'un traitement par filtre-pressé ou d'un conditionnement thermique et concernent des stations de grande taille (plus de 100 000 EH) (INERIS, 2007).

Les figures en annexe IV proposent une synthèse des différents modes de production des différents types de boues, ainsi qu'un schéma présentant la filière épandage.

6.3 ÉVOLUTION DES FILIERES DE TRAITEMENT ET VALORISATION DES BOUES EN FRANCE

Le graphique suivant montre l'évolution des voies de valorisation des boues d'épuration urbaines en France de 1998 à 2007 (**Figure 1**).



* La partie plus claire représente les boues ayant été compostées avant valorisation en agriculture.

** Parmi les autres méthodes sont comptées les utilisations agricoles non organisées, la mise en décharge non contrôlée...

Figure 1 : Évolution des voies de valorisation des boues d'épuration urbaines en France de 1998 à 2007 (source : (IFEN, 2004) et(IFEN, 2007))

En 2007, 70 % des boues ont été valorisées en agriculture, 18 % ont été incinérées et 12 % ont été placées en centre d'enfouissement technique. L'épandage agricole reste la filière privilégiée de valorisation des boues, avec une forte progression de la valorisation sous forme de compost (24 % des boues sont compostées en 2007, contre 2 % en 1998).

Les filières traditionnelles d'élimination des boues soulèvent plusieurs difficultés. En effet, la mise en décharge des boues est en baisse depuis 2001⁴⁴ et doit être progressivement diminuée jusqu'en 2015, puis arrêtée, conformément à la directive du 26 avril 1999⁴⁵ ; et l'incinération est une voie d'élimination coûteuse, souvent réservée aux très grosses stations. Par ailleurs, l'épandage fait régulièrement l'objet de remises en question et la réglementation sur la qualité de boues pourrait se durcir (notamment avec la révision de la directive cadre sur les boues⁴⁶).

Ceci étant et compte tenu de l'augmentation constante de la production de boues, il convient de pérenniser voire développer les voies de valorisation. Il importe par conséquent de mener les développements nécessaires à la production de boues de qualité maîtrisée et contrôlée, dont les nuisances et impacts sont minimisés à chacune des étapes de la filière.

Les principaux axes de progrès et de recherche sont donc :

- la réduction à la source de la contamination des boues par des substances ayant un impact potentiel sur l'environnement (en réduisant les apports de substances dangereuses aux réseaux de collecte),
- l'amélioration et la diversification des procédés de traitement, de valorisation ou d'élimination des boues, respectueux de l'environnement, dans des conditions de réalisation économique acceptables.

Ainsi, les acteurs du traitement de l'eau travaillent notamment à réduire le volume de boues en amont et à augmenter la qualité des boues destinées à l'épandage.

Des filières de traitement prennent de l'ampleur, comme le compostage ou la digestion anaérobie. Nous avons vu en effet que l'usage du compostage des boues augmente progressivement en France. L'intérêt renforcé de la méthanisation observé depuis quelques années résulte de la valorisation énergétique qu'elle permet. Le biogaz produit peut en effet être soit valorisé sur site, soit revendu, cette solution ayant été récemment facilitée par l'évolution des tarifs de rachat de l'électricité renouvelable, qui ont longtemps été trop bas pour rendre la plupart des projets financièrement viables. Aujourd'hui, un peu moins d'une centaine de STEU pratiquent la méthanisation (dont quelques stations importantes : SIAAP Seine-Aval, SIAAP Seine- Amont, Marseille, Lille-Marquette). Bien qu'étant un procédé mature à l'échelle industrielle, de nombreux projets de recherche portent sur l'optimisation des procédés actuels pour donner naissance aux digesteurs de demain (Kim, 2010).

Par ailleurs, des technologies « émergentes », telles que l'oxydation par voie humide (OVH), le traitement par ultrasons, la gazéification, la pyrolyse, les lits de séchage plantés de roseaux, etc. sont également développées pour le traitement des boues. Enfin, des techniques de valorisation « matière » de boues (produits céramiques, par exemple briques ou granulats) se développent. Elles soulèvent cependant, pour certaines d'entre elles, des questions juridiques et réglementaires quant au statut de déchet et de sortie de ce statut pour les boues. Les recherches sur ces technologies n'ont pas été approfondies dans la présente étude car très peu d'études portent sur le devenir des micropolluants au cours des étapes de ces procédés. Elles méritent toutefois d'être étudiées car sont en développement.

6.4 ÉTUDES ET PROGRAMMES DE RECHERCHE

La présence d'un certain nombre de micropolluants dans les boues, telle que discutée dans la partie précédente (cf. section 5), montre l'importance d'évaluer le potentiel d'élimination ou de transformation de ces micropolluants par les procédés de traitement / valorisation des boues et le devenir de ces substances tout au long des filières boues.

⁴⁴ L'article L-541-21 du code de l'environnement prévoit en effet depuis le 1^{er} juillet 2002 que les centres d'enfouissement technique ne sont autorisés à recevoir que des déchets ultimes, donc à des boues non-conformes aux seuils de recyclage ou à celles dont l'épandage est localement impossible.

⁴⁵ Directive 1999/31/CE du 26 avril 1999 concernant la mise en décharge des déchets.

⁴⁶ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

Les paragraphes qui suivent présentent les connaissances disponibles sur le devenir des micropolluants au cours des principales opérations de traitement et de valorisation des boues.

Un bilan des connaissances sur les impacts environnementaux de la gestion biologique des déchets, dont les boues, a été publié en 2005, avec pour finalité l'amélioration des évaluations environnementales de type analyse de cycle de vie (Cemagref *et al.*, 2005) (rapport ADEME élaboré par un groupement d'organismes français). Ce rapport fournit quelques éléments intéressants sur les émissions gazeuses et les flux solides et liquides des procédés de compostage et de méthanisation essentiellement. Il n'est toutefois pas centré sur l'étude des micropolluants.

Dans le cadre d'une convention récemment signée entre l'ADEME, le SYPREA, le SIAAP, la FP2E, le CNRS et l'INERIS sur la caractérisation des substances émergentes dans les boues urbaines, un screening et une quantification de certaines de ces substances vont être réalisés sur des boues d'origines différentes, sélectionnées et réparties en fonction du type de traitement des boues (chaulées, digérées, séchées, liquides, compostées) et/ou du type de STEU (taille, ...).

Des travaux sont menés à l'INRA sur les étapes de traitement et valorisation de boues telles que la digestion, le compostage, ou d'autres techniques moins utilisées comme l'ozonation.

Le projet ARMISTIQ (2010-2013), dont la coordination est assurée par l'IRSTEA, consiste à évaluer et à améliorer la connaissance et la maîtrise de technologies pour la réduction des substances prioritaires et émergentes présentes dans les eaux usées et les boues urbaines. Il s'articule autour de 6 actions, dont l'une est centrée sur l'étude de la « réduction des micropolluants hydrophobes par procédés de traitement biologiques et thermiques des boues avant valorisation agricole ».

Ce projet, qui fait suite au projet AMPERES (au cours duquel il n'a pas été possible de conclure sur les performances réelles des procédés de traitement de boues en eux-mêmes) a pour objectif d'étudier des procédés de traitement biologique (compostage, lits de séchage plantés de roseaux) et thermique (séchages thermique et solaire), implantés à l'échelle industrielle ou semi-industrielle, avec des campagnes de mesures dimensionnées pour réaliser des bilans complets de l'efficacité d'élimination de certains micropolluants adsorbés sur les boues. Il a également pour objectif d'identifier les points d'amélioration et de fiabilisation de ces procédés pour l'élimination de ces micropolluants. L'apport d'une digestion anaérobie en amont de ces filières sera également évalué. Enfin, le projet comprend une étape d'évaluation économique et environnementale (ACV) de ces procédés.

6.5 DIGESTION ANAEROBIE ET AEROBIE

- ETM

Les métaux se concentrent lors de la digestion ; les teneurs sont systématiquement plus élevées en sortie qu'en entrée de procédé. Les taux de concentrations⁴⁷ moyens en métaux après digestion anaérobie des boues de la STEU de Seine Amont varient de 1,5 à 1,8 selon les métaux (comparables au taux de concentration du phosphore) (RITMO Agroenvironnement *et al.*). Ce phénomène de concentration des éléments minéraux par méthanisation s'explique par la perte de matière carbone des boues sous forme de biogaz.

(Solagro, 2002) indique que la digestion anaérobie ne détruit pas les métaux, mais qu'elle modifie leur spéciation par différents mécanismes chimiques et, surtout, biologiques : adsorption par chimisorption, précipitations chimique ou biologique, complexation intracellulaire ou extracellulaire sur des composés organiques ou inorganiques.

⁴⁷ Rapport entre les teneurs finales (dans le digestat) et les teneurs initiales (dans les boues avant digestion). Le digestat présente donc des teneurs moyennes en ETM supérieures aux boues avant méthanisation. Les digestats sont environ 1,5 à 1,8 fois plus concentrés que les mêmes boues non digérées (avant traitement).

- HAP

D'après (ADEME et al., 2000) et (Brandli et al., 2007) (études à l'échelle industrielle), la digestion anaérobie ne semble pas permettre une réduction des HAP.

En revanche, le projet DIGUE a montré que la concentration en HAP (en mg/kg MS) dans les boues avant et après digestion anaérobie reste équivalente. Compte tenu de la réduction de matière, ce résultat indique une élimination d'une partie de ces substances dans les boues par transfert de phase ou dégradation (ANR - Projet DIGUE, 2008).

A l'échelle pilote, les travaux de (Trably et al., 2003) sur des boues acclimatées⁴⁸ ont montré une dégradation des HAP par digestion anaérobie qui apparaît plus efficace dans des conditions thermophiles avec des abattements de 50 à 70 % comparé aux conditions mésophiles où les abattements varient de 40 à 60 %. Ceci est également confirmé par (Benabdallah El-Hadj et al., 2006), principalement pour les HAP lourds.

Concernant la digestion aérobie, les travaux de (Trably et Patureau, 2005) sur des boues acclimatées⁵⁰ à l'échelle pilote ont montré une biodégradation pour les 13 HAP étudiés et des pertes abiotiques par volatilisation pour les HAP les plus légers (fluorène, phénanthrène et anthracène). Globalement, plus de 80 % des HAP les plus légers sont éliminés. Les taux de biodégradation des différents composés sont inversement corrélés à l'augmentation de leur poids moléculaire et semblent limités par la faible biodisponibilité des HAP les plus lourds (abattements de 50 % seulement). Une augmentation de la température de 35°C à 45°C a permis une amélioration significative des taux de biodégradation des HAP les plus lourds (qui sont passés de 50 à 80 %). Par ailleurs, les pertes abiotiques attribuées au phénomène de volatilisation sont plus importantes à 55°C. Les auteurs concluent que les conditions optimales ont été trouvées à 45°C compte tenu des pertes abiotiques plus faibles et des taux de biodégradation plus élevés. Ils concluent également que l'augmentation de température favorise la diffusion des HAP de la phase solide à la phase aqueuse, tout en augmentant leur biodisponibilité.

- PCB

D'après l'étude à l'échelle industrielle de (Brandli et al., 2007), la digestion anaérobie ne semble pas permettre une réduction des PCB. En revanche, la comparaison statistique des données après et avant méthanisation sur la station de Seine Amont montre que les digestats présentent des teneurs en PCB qui varient peu comparativement aux boues initiales (RITTMO Agroenvironnement et al.). Compte tenu de la réduction de matière, ce résultat indique un abattement d'une partie de ces substances dans les boues par transfert de phase ou dégradation.

Le devenir de six PCB (PCB n°52, 101, 118, 138, 153 et 180) au cours de la digestion anaérobie et aérobie a été évalué à l'échelle pilote par (Patureau et Trably, 2006). Une biodégradation a été observée pour ces PCB dans des conditions anaérobies et aérobies. Dans des conditions anaérobies, un taux d'abattement d'environ 40 % a été observé pour ces PCB, quel que soit leur poids moléculaire ou leur degré de chloration. Le procédé aérobie mésophile permet d'obtenir de meilleurs taux d'abattement (de 40 à 100 % pour le PCB le moins chloré), grâce aux conditions opératoires favorisant la biodégradation. Cette élimination semble être plus efficace pour les molécules les moins chlorées. Toutefois, la biodégradation des PCB semble être limitée par leur forte sorption sur la matière organique, donc par leur biodisponibilité. Patureau et Trably (2006) considèrent ces résultats comme prometteurs pour la continuité des travaux d'optimisation du procédé de digestion sur l'amélioration de la biodisponibilité des PCB pour augmenter les rendements.

Notons toutefois que certains composés aromatiques halogénés (tels que les PCB ou les dioxines) peuvent polymériser en milieu aérobie (Solagro, 2002).

L'association de prétraitements avancés, comme les ultrasons ou un traitement physico-chimique, semble permettre un meilleur abattement des PCB dans les boues par digestion anaérobie (ANR - Projet DIGUE, 2008).

⁴⁸ Acclimatation, adaptation des micro-organismes aux concentrations de polluants dans les boues.
INERIS – DRC-12-118975-02397A

- Alkylphénols

Les alkylphénols éthoxylates sont dégradés en alkylphénols pendant la digestion anaérobie, les alkylphénols s'accumulent donc dans la boue digérée. Veolia et Suez ont effectué des bilans sur le procédé de digestion anaérobie de boues urbaines à l'échelle industrielle (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006). Le 4-NP2EO (alkylphénol diéthoxylé) est plus ou moins bien abattu (50 à 70 % dans des conditions mésophiles ; 20 à 35 % dans des conditions thermophiles puis mésophiles). Des teneurs plus importantes en sortie qu'en entrée de traitement sont mesurées pour le nonylphénol et le 4-NP1EO (alkylphénol monoéthoxylé). Ceci peut être dû à leur accumulation en tant que produits de dégradation du 4-NP2EO ou d'alkylphénols à longue chaîne éthoxylée, non quantifiés dans cette étude.

(Patureau et al., 2008a) ont étudié les performances d'abattement de plusieurs procédés de digestion à l'échelle laboratoire. Les résultats ont montré une dégradation des alkylphénols (NP2EO, NP1EO et NP) par digestion anaérobie avec des abattements de 25 % dans des conditions mésophiles et de 30 % dans des conditions thermophiles. De meilleures performances (abattement de 39 %) ont été obtenues dans des conditions aérobies thermophiles. La combinaison de traitements par digestion aérobie thermophile puis anaérobie mésophile d'une part, et par digestion anaérobie mésophile et ozonation d'autre part, a permis une amélioration des performances en comparaison à un traitement par un procédé unique (abattements de 45 % et 48 %, respectivement). Les auteurs indiquent que la biodisponibilité des alkylphénols est le facteur limitant de la dégradation.

(Hernandez-Raquet et al., 2007) ont également montré (à l'échelle laboratoire) une meilleure efficacité pour la dégradation des nonylphénols de la digestion aérobie et de la combinaison d'un traitement anaérobie puis aérobie par rapport à la digestion anaérobie.

Par ailleurs, (Patureau et al., 2008a) montrent que la dégradation des nonylphénols dépend du taux de matière organique mais également du type de matière organique. En effet, une dégradation anaérobie des nonylphénols est observée par Patureau *et al.* (2008) dans un mélange de boues primaires et secondaires⁴⁹ (50 : 50 en volume) tandis qu'Hernandez-Raquet *et al.* (2007) n'observent pas de dégradation des nonylphénols dans des boues secondaires.

- Phtalates (DEHP)

Des taux d'abattement du DEHP de 30 à 45 % par digestion anaérobie thermophile sont reportés dans la littérature (Benabdallah El-Hadj *et al.*, 2006) et de 20 à 40 % par digestion anaérobie mésophile à l'échelle laboratoire (Gavala *et al.*, 2003). L'association d'un traitement physico-chimique avant digestion anaérobie permettrait une réduction des concentrations en DEHP (ANR - Projet DIGUE, 2008).

- PBDE

D'après (Knoth et al., 2007) (à l'échelle industrielle), la digestion anaérobie ne dégrade pas les PBDE mais les transforme en différents congénères. Les résultats du projet DIGUE confirment la difficulté de dégrader le pentaBDE par digestion anaérobie, mais montrent qu'un traitement physique associé à une digestion anaérobie semble permettre une réduction des PBDE dans les boues (ANR - Projet DIGUE, 2008).

- Hormones et pharmaceutiques

Les résultats obtenus sur le comportement des hormones au cours de la digestion sont parfois contradictoires selon les études.

⁴⁹ Les « boues primaires » sont issues de l'étape de traitement primaire des eaux usées (décantation), les « boues secondaires » (également appelées « boues biologiques » ou « boues activées ») sont issues du traitement secondaire biologique des eaux usées. Les boues primaires et secondaires peuvent être mélangées, et sont alors appelées « boues mixtes ».

Dans l'étude de (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006) à l'échelle industrielle, le 17 α -œstradiol s'avère être l'hormone la plus récalcitrante à la dégradation, suivie de l'éthinylœstradiol. L'œstrone semble être facilement dégradable ; le fait de trouver des teneurs relativement importantes à la sortie du digesteur pourrait être dû principalement à son accumulation en tant que produit de dégradation de l'œstradiol.

(Patureau et Hernandez-Raquet, 2008b) ont montré une élimination de l'œstrone et du 17 β -œstradiol dans les boues par digestion anaérobie à l'échelle laboratoire. En revanche, les résultats obtenus sont contradictoires pour le 17 α -éthinylœstradiol.

Une étude sur la digestion anaérobie à l'échelle industrielle (Muller *et al.*, 2010) a montré des performances d'abattement des œstrogènes (œstrone, 17 β -œstradiol et œstriol) inférieures à 40 %. Les teneurs en 17 α -éthinylœstradiol augmentent entre l'entrée et la sortie de la digestion, ce qui pourrait s'expliquer par une augmentation de l'extractibilité de cette substance au cours du processus. Les auteurs concluent que la digestion anaérobie n'est pas efficace pour dégrader les œstrogènes. Des résultats en laboratoire ont pourtant montré des taux de dégradation de 75 à 85 % pour l'œstrone, le 17 β -œstradiol et le 17 α -éthinylœstradiol par digestion anaérobie (Carballa *et al.*, 2006). Les auteurs n'expliquent pas ces résultats contradictoires entre l'échelle laboratoire et l'échelle industrielle.

Concernant les résidus pharmaceutiques, les résultats de l'étude menée par IRH Environnement sur les boues de 8 STEU urbaines montrent des taux d'abattement des flux d'antibiotiques de 20 à 40 % pour la plupart des molécules étudiées par digestion thermophile puis mésophile (sauf pour la norfloxacine (fluoroquinolone) avec un taux d'abattement de 100 %, et la fluméquine (quinolone) à 0 %). Une autre filière ne comprenant qu'une digestion mésophile semble atteindre de meilleurs résultats avec des taux d'abattement de 30 à 90 % (sauf pour la fluméquine à 0 %). Rappelons toutefois que ces résultats sont issus d'échantillons uniques et que les auteurs recommandent une deuxième campagne d'analyses afin de confirmer ou non ces résultats (IRH Environnement, 2007).

Les quinolones sont fortement retenues dans les boues de STEU en raison de leur constante de sorption. Elles sont peu dégradées par digestion anaérobie (Golet *et al.*, 2003) ; (Vieno *et al.*, 2007)).

- **Autres substances**

D'après (Solagro, 2002), les composés organiques halogénés (tels que certains pesticides ou dioxines) subissent généralement la déhalogénéation réductrice, avec le plus souvent formation de composés moins riches en atomes halogénés, plus ou moins biodégradables, et plus ou moins toxiques. Certains sont totalement biodégradables en quelques dizaines de jours. D'autres, comme le DDT et le lindane convertis respectivement en DDD et tétrachlorocyclohexane, aboutissent à des composés moins toxiques.

(Solagro, 2002) indique également que les composés halogénés aliphatiques ou mono-aromatiques sont dégradés par digestion anaérobie. La dégradation se déroule souvent en plusieurs phases : après une première étape de dé-halogénéation, le produit intermédiaire est à son tour dégradé en molécule simple, puis ensuite en biogaz. Dans d'autres cas, la conversion n'est pas complète. A titre d'exemple, le tétrachloroéthylène perd un atome de chlore et est transformé en trichloréthylène ; les chlorophénols sont transformés en méthane, gaz carbonique, 4-chlorophénol et phénol.

- **Études sur le biogaz**

Deux rapports de l'INERIS (INERIS, 2009c) et (INERIS, 2011a) apportent des données de composition de biogaz bruts et de biométhane issus de la digestion anaérobie de boues de STEU, en vue d'alimenter des travaux d'évaluation de risques sanitaires liés à l'injection de biogaz dans le réseau de gaz naturel.

Le premier rapport avait pour but de récolter les données de composition détaillée de biogaz auprès d'exploitants sur une liste assez large de composés : polluants « classiques », alcools, aldéhydes, cétones, alcènes/terpènes, acides, esters, composés sulfurés et mercaptans, esters et furanes, halogénés, hydrocarbures aromatiques monocycliques, hydrocarbures aliphatiques, hydrocarbures

cycliques, métaux et hydrocarbures aromatiques polycycliques. Une des conclusions de l'étude est l'absence de données de teneurs pour un certain nombre de composés, notamment les aldéhydes, métaux et HAP (INERIS, 2009c).

Le second rapport avait pour objet de mener des campagnes de mesures pour compléter ces données recueillies. Il comprend, sur le biogaz brut et épuré (sur un prélèvement à chaque fois), la détermination des paramètres suivants : CH₄, CO₂, O₂, N₂, H₂, CO, H₂S, teneur en vapeur d'eau, COV spécifiques, aldéhydes, poussières, SO₂, NH₃, HAP, Hg, CrVI, métaux (INERIS, 2011a).

6.6 SECHAGE

- ETM

Les procédés de traitement des boues peuvent avoir un effet sur les métaux contenus dans les boues en modifiant leur spéciation, donc leur mobilité et leur disponibilité. Zorpas *et al.* (2001) ont montré, par une étude en laboratoire sur des boues stabilisées par digestion anaérobie, que le séchage thermique (traitements à 105°C, 250°C, 650°C et 900 °C) permettait une diminution de la mobilité des métaux (transformation significative des métaux dans des formes moins mobiles qu'initialement - élimination des métaux de la phase mobile vers des phases plus stables) et une élimination par volatilisation (transfert vers la phase gazeuse) (Zorpas *et al.*, 2001). Obrador *et al.* (2001) confirment que le séchage thermique (traitements à 180°C, 300° C, et 400°C) réduit la disponibilité des métaux dans les boues (plus fortement adsorbés sur les boues traitées).

- HAP

Très peu de références bibliographiques ont pu être trouvées sur l'effet du séchage des boues sur les HAP. Un rapport de l'ADEME (ADEME *et al.*, 2000) suggère une élimination possible du fluoranthène, semi-volatile et légèrement soluble, par séchage thermique.

- PCB

Gibson *et al.* (2007) ont étudié l'impact du séchage sur les PCB sur des boues digérées dans des conditions anaérobies à l'échelle pilote et concluent que le séchage ne semble pas avoir d'effet sur les concentrations en PCB⁵⁰.

Toutefois, des prélèvements d'air réalisés sur des lits de séchage de boues suggèrent que le séchage des boues peut constituer une source d'émission de PCB vers l'atmosphère (Yi *et al.*, 2008). Certains PCB sembleraient se volatiliser au cours du séchage des boues. Gibson *et al.* (2007) suggèrent tout de même que ce phénomène de volatilisation ne pourrait avoir lieu que pour des procédés de séchage à température élevée et/ou avec aération forcée.

- Alkylphénols

D'après Gibson *et al.* (2007), le séchage de boues digérées dans des conditions anaérobies à l'échelle pilote semblerait permettre une réduction d'environ 40 % de la teneur en 4-nonylphénol dans les boues. Les auteurs supposent un phénomène de volatilisation. (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006), à l'inverse, affirment que les traitements thermiques ne sont pas efficaces pour éliminer les alkylphénols.

- Phtalates (DEHP)

Le séchage semble permettre une réduction du DEHP d'environ 20 % dans les boues, d'après une étude sur le séchage de boues digérées dans des conditions anaérobies à l'échelle pilote (Gibson *et al.*, 2007). Les auteurs supposent un phénomène de volatilisation (Gibson *et al.*, 2007).

-

⁵⁰ Un bilan matière permettrait de confirmer cette conclusion.
INERIS – DRC-12-118975-02397A

- **Hormones et pharmaceutiques**

Le devenir des hormones et des résidus pharmaceutiques au cours du séchage a été très peu étudié.

D'après (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006), le séchage thermique semble être très adapté pour éliminer les hormones. Les œstradiols (17 α -œstradiol et le 17 β -œstradiol) sont mieux abattus (50 à 95 %) que l'œstrone ou l'éthinylœstradiol (0 à 60 %). Les auteurs ne formulent pas d'hypothèse quant au devenir de ces substances.

(IRH Environnement, 2007) montre une réduction de la norfloxacine par séchage thermique (sans avancer d'hypothèse quant à son devenir) et pas d'effet sur la ciprofloxacine et l'ofloxacine. Notons toutefois que ces résultats sont issus d'échantillons uniques et que les auteurs recommandent une deuxième campagne d'analyses afin de les confirmer ou non. Les résultats sur les autres molécules ne peuvent être exploités car la filière de traitement étudiée comprend également une étape de chaulage avant séchage.

6.7 COMPOSTAGE

- **ETM**

Les métaux s'accumulent au cours du compostage (Garcia et al., 1995) (Lazzari et al., 1999) ; (Liu et al., 2007). Toutefois, d'après la littérature, certains métaux ayant un caractère assez mobile pourraient être (faiblement et en partie) transférés dans les lixiviats (RECYVAL SA et ADEME, 2000).

La mobilité des métaux dans les boues dépendent de leur spéciation. (Liu et al., 2007) ont étudié l'évolution de la spéciation des métaux au cours du compostage. Les résultats montrent qu'elle dépend de la teneur totale en métaux et des paramètres du procédé de compostage comme la température, le pH et le taux de matière organique.

Un amendement à la chaux permettrait de réduire la mobilité des métaux dans les boues compostées (Cu, Mn, Pb et Zn) sans empêcher le compost d'arriver à maturation (Fang et Wong, 1999) ; (Wong et Selvam, 2006).

- **HAP**

Les résultats obtenus sur le devenir des HAP au cours du compostage sont contradictoires selon les études.

Les travaux de (Cai et al., 2007) à l'échelle pilote montrent un bon abattement des HAP au cours du compostage. Des taux d'abattement de plus de 70 % sont observés pour presque tous les HAP étudiés (16 HAP), à l'exception du fluoranthène, du phénanthrène et du fluorène. On constate que le système d'aération forcée semble permettre d'obtenir de meilleures performances d'élimination que le système de retournement manuel des andains.

(Brandli et al., 2007) ont observé, sur deux plateformes de compostage, une réduction des teneurs en HAP de faible poids moléculaire (réduction de 50-90 %), tandis que celles des HAP de poids moléculaire élevé sont restées stables.

(Patureau et al., 2008c) ont également étudié les performances d'abattement du compostage sur une plateforme pour l'élimination de plusieurs micropolluants (HAP, PCB, nonylphénols et LAS) dans les boues. Les résultats montrent que les HAP ne sont pas significativement dégradés et qu'ils ont tendance à s'accumuler dans le compost final.

- **PCB**

Trois différentes études sur des plateformes de compostage (Lazzari et al., 1999) ; (Brandli et al., 2007) ; (Patureau et al., 2008c) ont observé une augmentation des teneurs en PCB tout au long de ce processus. Les PCB ont donc tendance à s'accumuler au cours du compostage.

- Alkylphénols

Le compostage permet une dégradation significative des alkylphénols. Les 4-NP1EO et 4-NP2EO sont biodégradés et forment du 4-nonylphénol, lequel peut s'accumuler dans le compost. (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006) indiquent des abattements de 75 à 97 % pour le NP1EO et 60 à 90 % pour le NP2EO et une accumulation du NP. (Patureau et al., 2008c) ont montré (à l'échelle industrielle) une réduction de 20 à 50 % par bilan matière en équivalent NP, indiquant une dégradation partielle du nonylphénol. De précédentes études (Jones et Westmoreland, 1998) ; (Moeller et Reeh, 2003) avaient déjà observé une accumulation du nonylphénol pendant le compostage, particulièrement dans des conditions thermophiles. (Moeller et Reeh, 2003) suggéraient qu'une prolongation de la phase mésophile du processus de compostage permettrait d'améliorer la dégradation du 4-nonylphénol.

- Phtalates (DEHP)

Une revue de la littérature réalisée pour le projet Score PP rassemble des données de taux d'abattement du DEHP variant de 34 % à 85 % pour le procédé de compostage. Sur la base des articles étudiés, les auteurs indiquent que la dégradation aérobie de DEHP semble plus efficace que les autres techniques investiguées (digestion anaérobie principalement) (Donner *et al.*, 2010).

(Gibson et al., 2007) ont montré un taux d'abattement de 60 % pour le DEHP par compostage de boues digérées. (Cheng et al., 2008) ont observé une dégradation du DEHP à 85 % au cours d'un compostage dans des conditions thermophiles.

(Pakou et al., 2009) ont étudié l'influence de la teneur initiale en DEHP sur le devenir de cette substance au cours du compostage. Une augmentation de la teneur initiale en DEHP dans les boues a induit une diminution du taux d'abattement observé au cours du compostage (abattement de 97 % à partir d'un mélange initial à 55 mg/kg MS et de 60 % à partir d'un mélange initial à 227 mg/kg MS). Les auteurs supposent qu'une teneur élevée dans le mélange initial peut avoir causé une inhibition des micro-organismes participant à la dégradation du DEHP.

- LAS

(Prats et al., 1999) ont montré une élimination proche de 100 % des LAS au cours d'un compostage de boues digérées à l'échelle industrielle. (Patureau et al., 2008c) ont observé, à l'échelle industrielle, des taux d'abattement de 50 – 56 % sur les LAS, les composés les plus dégradables étant ceux de plus faible poids moléculaire (LAS-C₁₀ and LAS-C₁₁). (Sanz et al., 2006) ont reporté des taux d'abattement de 60 – 100 %. Ces derniers ont par ailleurs montré l'influence importante de la température du compost sur les rendements d'élimination des LAS, indiquant que 40°C est une température optimale. Pour (Patureau et al., 2008c), ceci pourrait expliquer le fait que la dégradation des LAS dans leur système de compostage a été principalement observée pendant les phases de maturation et de stockage (conditions mésophiles) par rapport à la phase de fermentation (conditions thermophiles).

- Hormones et pharmaceutiques

Le devenir des hormones des résidus pharmaceutiques au cours du compostage a été peu étudié. D'après les travaux de (Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement, 2006) sur une plateforme industrielle, le compostage permettrait d'éliminer le 17 α -œstradiol et le 17 β -œstradiol avec des abattements de 60 à 98 % (une donnée indiquant toutefois une accumulation du 17 α -œstradiol). Leur biodégradation engendre la formation d'œstrone, qui s'accumule dans le compost. L'éthinylœstradiol semble également s'accumuler.

(IRH Environnement, 2007) ont montré des taux d'abattement de 30 à 100 % des molécules antibiotiques étudiées par compostage. Rappelons toutefois que ces résultats sont issus d'échantillons uniques et que les auteurs recommandent une deuxième campagne d'analyses afin de confirmer ou non ces résultats.

Dans cette étude, le compostage semble être le plus efficace pour ces molécules. Le mécanisme de biodégradation aérobie serait donc relativement impliqué dans l'élimination des molécules antibiotiques.

- **Autres substances**

La biodégradation en milieux aérobie et anaérobie des pesticides organoétains (Fent, 1996) et du chlorure de vinyle (COHV) (CEDRE, 2004) semble très mineure au cours du traitement des boues. Les chlorobenzènes semblent également récalcitrants aux procédés de traitement des boues en milieu aérobie (Mars *et al.*, 1997).

Une étude de l'ADEME (élaborée par un groupement d'organismes français) (Cemagref *et al.*, 2005) et le projet EMISITE (IRSTEA (Cemagref) *et al.*, 2008) sur l'analyse des émissions atmosphériques dues au compostage ont permis de détecter certaines substances dans les rejets gazeux, qui sont donc en partie éliminées par volatilisation au cours du compostage :

- chlorobenzènes : 1,4-dichlorobenzène.
- COHV : trichloroéthylène et chlorure de méthylène (dichlorométhane).
- BTEX : benzène, toluène et xylène.

6.8 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette recherche bibliographique sur le devenir des micropolluants lors des processus de traitement des boues permet de constater que le compostage et la digestion anaérobie sont les procédés les plus étudiés, en comparaison avec les procédés de traitement thermiques ou émergents. Ces deux procédés sont par ailleurs en expansion au niveau français (enjeux liés à l'épandage, filière de valorisation principale des boues, cf. ci-dessus), ce qui confirme l'intérêt de leur étude.

Comme dans la partie 5.5, les substances réglementées sont les plus étudiées. Notons que les HAP et les PCB sont les substances pour lesquelles le nombre de projets identifiés réalisant des bilans sur les procédés est le plus important. Pour d'autres substances, pourtant retrouvées dans les boues, on constate un manque de données et de bilans sur les procédés.

Il est important de noter que les informations sur les méthodes d'échantillonnage ou les conditions opératoires des procédés sont souvent manquantes dans les publications, rendant plus difficiles l'interprétation et l'utilisation de ces données.

Par ailleurs, on constate parfois des résultats contradictoires selon les études qui ne permettent pas de tirer de conclusions (les performances des procédés dépendant des conditions opératoires - température, échelle d'étude pilote ou industrielle, etc.).

Cette revue de la littérature montre que les procédés de traitement des boues étudiées dans cette partie ont un effet sur certains micropolluants présents dans les boues. De manière générale, on constate que les traitements appliqués aux boues ont tendance à concentrer les éléments traces métalliques tout en modifiant leur spéciation (ainsi que les polluants non biodégradables), et à dégrader les composés organiques, de façon très variable (selon les substances, les procédés mis en œuvre et les conditions opératoires). Certaines substances semblent éliminées. Dans certains cas, on observe des niveaux de teneurs équivalents entre l'entrée et la sortie de l'étape de traitement laissant penser à une dégradation partielle compte tenu de la réduction de la quantité matière au cours du traitement.

Cette revue amène toutefois à conclure à un manque de connaissances sur le devenir de la majorité des micropolluants lors du traitement. De manière générale, on constate en effet que relativement peu d'études portent sur la réalisation de bilans et la détermination des performances des procédés de traitement des boues vis-à-vis des micropolluants. Les données disponibles sont souvent reportées en teneurs (parfois uniquement à l'échelle du laboratoire) et non en bilans de matières et flux globaux. Par ailleurs, le devenir de ces substances au cours de ces processus et les transferts potentiels vers les autres compartiments environnementaux ou dans les déchets (émissions atmosphériques ou lixiviats par exemple dans le cas du compostage) sont également peu étudiés. Ces transferts constituent pourtant des effets croisés importants à prendre en compte afin de s'assurer d'une absence de transfert de pollution.

Notons qu'une revue de la littérature canadienne a abouti à la même conclusion (Hydromantis Inc. *et al.*, 2009). Une des raisons pouvant être évoquée est la difficulté analytique et le coût pour mesurer certains de ces composés dans les phases solides (boues, matières en suspension).

Le même constat avait été fait en 2009 lors de l'état des connaissances sur les performances des STEU vis-à-vis des substances prioritaires et émergentes réalisé dans le cadre du programme AMPERES. Un travail d'analyse des données publiées avait abouti à la conclusion que, pour la plupart des substances, très peu de données sont disponibles sur la filière boue, sur les teneurs ou les abattements ((Martin Ruel *et al.*, 2008) et (Miege *et al.*, 2009)). Ainsi, les performances de traitement des STEU sont souvent calculées sur la filière eau uniquement et tiennent rarement compte des rendements sur la filière boues, comme cela a été fait dans le programme AMPERES.

Par ailleurs, l'interaction possible entre les polluants est rarement prise en compte dans les études. D'après (Patureau *et al.*, 2008c), seuls (Moeller et Reeh, 2003) ont pris en compte ce phénomène, reportant l'absence d'influence de la présence de phtalates et de HAP sur la dégradation des LAS dans un système de compostage. De même, la transformation éventuelle des composés en métabolites de toxicité comparable, voire supérieure, est très peu souvent prise en compte dans les études. Seuls les métabolites connus sont parfois considérés (notamment, la biodégradation des alkylphénols éthoxylates en alkylphénols, de toxicité supérieure, ou la biodégradation de l'œstradiol engendrant la formation d'œstrone).

Un manque de connaissances sur le devenir de la majorité des micropolluants lors des procédés de traitement des boues est donc constaté. La présence avérée d'un certain nombre de micropolluants dans les boues montre pourtant l'importance d'évaluer le potentiel d'élimination ou de transformation de ces micropolluants par les procédés de traitement des boues, et le devenir de ces substances tout au long des filières boues. Ces étapes de traitement conditionnent en effet d'une part, les teneurs en polluants dans les boues qui seront in fine valorisées en agriculture, et, d'autre part, les transferts potentiels vers les autres compartiments de l'environnement ou dans les déchets (effets croisés).

La poursuite des travaux engagés sur cette thématique, et le développement de nouveaux projets permettront d'améliorer les connaissances dans ce domaine. Au-delà des travaux amont au niveau laboratoire, des mesures de terrain (à l'échelle industrielle, voire pilote) couplées avec de la modélisation semblent nécessaires pour l'étude du devenir des micropolluants et des performances des procédés de traitement des boues. Le programme ARMISTIQ (2010-2013), par la réalisation de campagnes de mesures adaptées et de bilans complets à l'échelle industrielle, devrait contribuer à améliorer les connaissances dans ce domaine.

Notons qu'une des limites du présent exercice réside dans le fait qu'il s'agit d'une revue bibliographique. Il serait fort pertinent de compléter et de comparer les données disponibles avec celles qui pourraient être produites auprès des exploitants (ex : SIAAP, etc.) et des constructeurs à travers leurs programmes de recherches.

Par ailleurs, les traitements appliqués conditionnent également la disponibilité de ces polluants dans la matrice boue et pourraient donc influencer les transferts de ces micropolluants dans l'environnement après épandage. Des travaux sur cette problématique (caractérisation fine de la matrice, spéciation et biodisponibilité des polluants dans la matrice boues, etc.) actuellement en cours à l'INRA soulignent l'importance de coupler les recherches sur le devenir des polluants au cours des traitements appliqués aux boues avec les recherches sur le devenir des polluants dans l'environnement après apport aux sols.

7. ÉPANDAGE DES BOUES SUR LES SOLS AGRICOLES ET TRANSFERTS DES MICROPOLLUANTS DANS L'ENVIRONNEMENT

7.1 ÉTUDES ET PROGRAMMES DE RECHERCHE

Les déchets organiques, dont les boues de STEU urbaines, contiennent des éléments traces inorganiques et organiques, susceptibles de s'accumuler dans le sol à la suite d'épandages répétés en tant que matières fertilisantes. La crainte de contamination de la chaîne alimentaire par les ETM a suscité un nombre important d'études dans beaucoup de pays sur les transferts des sols vers les plantes. En France, de nombreux essais expérimentaux ont été mis en place durant les années 1990 par des chambres d'agriculture, des organismes techniques et des instituts de recherche pour l'étude des effets de l'épandage de matières fertilisantes organiques sur le transfert sol-plante des ETM. Les durées, objectifs, et solidités de ces expérimentations étaient variables. Ces essais ont été répertoriés dans un inventaire national réalisé par Orgaterre pour le compte de l'ADEME afin d'obtenir une vision plus claire des données produites (Orgaterre, 2001).

Parallèlement, le programme de recherche et développement interdisciplinaire AGREDE (AGRIculture et Epanchage de DEchets urbains et agroindustriels) a été lancé par l'INRA en 1996 pour améliorer les connaissances scientifiques sur l'épandage agricole. Ces travaux ont concerné les boues mais aussi les effluents agroindustriels et les composts d'ordures ménagères et de déchets verts. Les études ont porté principalement sur le devenir des ETM dans les sols et leurs transferts vers les cultures. Les HAP et les nonylphénols ont également été étudiés mais dans une moindre mesure. Les transferts vers les eaux souterraines ont été moins souvent étudiés (en raison notamment de la nécessité de dispositifs expérimentaux beaucoup plus lourds). Les transferts vers les eaux superficielles (risque de ruissellement) n'ont pas été étudiés dans ce programme (Tercé).

La complexité des phénomènes en jeu et la difficulté à produire des résultats véritablement probants ont conduit un certain nombre d'organismes à mettre en place des expérimentations de longue durée dans différents contextes pédoclimatiques et cultureaux.

Un réseau, dit « réseau RSPRO », de quatre dispositifs expérimentaux de longue durée⁵¹ a ainsi été mis en place. Ces quatre essais, de 0,2 à 6 hectares, sont aujourd'hui coordonnés par une même équipe scientifique de l'INRA, de façon à uniformiser les protocoles, les méthodes d'analyse et l'exploitation des données. Ils ont pour objectif de caractériser les impacts à long terme de l'épandage de produits résiduels organiques (« PRO »), pour des épandages conformes à la réglementation et aux pratiques des agriculteurs. Les protocoles sont décrits ci-après. Le plus ancien a été mis en œuvre en 1995 à Ensisheim sur une parcelle d'agriculteur, et s'est terminé en 2006, après 11 campagnes culturales. Deux boues urbaines complémentées en engrais minéraux sont comparées à un témoin-engrais.

L'INRA a ensuite initié en 1998, en partenariat avec Veolia Environnement R&D, un programme de recherche intitulé "QUALIAGRO". Centré autour du dispositif de Feucherolles (78), il porte sur l'évaluation de la valeur agronomique et les impacts environnementaux des composts d'origine urbaine. D'autres programmes de recherche sont rattachés au site Qualiagro : le programme ADEME Bioindicateurs (2005 – 2008) consiste en la recherche de bioindicateurs d'effets des apports de composts et à la mise en relation avec la spéciation des polluants (ETM et HAP) dans les sols ; le programme INSU ECCO ECODYN (2004 – 2007) met l'accent sur les effets des apports de composts sur la mobilité des ETM et des pesticides dans les sols, en particulier dans les eaux circulant dans les sols.

Le troisième dispositif expérimental, à Colmar (68), a été mis en place en 2000 par l'INRA, en collaboration avec la Mission Recyclage Agricole du Haut-Rhin, et pour une durée d'au moins dix ans. Il a pour objet l'étude des conséquences, à long terme, du recyclage agricole de « PRO » d'origine urbaine et agricole sur la qualité des sols, des eaux d'infiltration, et des récoltes.

⁵¹ Le terme « longue durée » est souvent employé pour qualifier ces dispositifs, mais ils sont également qualifiés de « moyenne durée » (plus de 10 ans, pour Ensisheim, Feucherolles et Colmar) et de plus « courte durée » (6 ans, pour Bergheim) lorsqu'il s'agit de relativiser les effets à beaucoup plus long terme.

Le quatrième dispositif, mis en place en 2002 à Bergheim, concerne des boues industrielles (papeteries et agro-alimentaires).

Une grande partie des données produites aujourd'hui sur les impacts de l'épandage agricole et les transferts de polluants qui en résultent sont essentiellement le fruit de travaux d'interprétation des données produites sur ces quatre dispositifs expérimentaux (Bacholle, 2010). Ces données concernent, comme dans AGREDE, autant les effets agronomiques que les impacts environnementaux et concernent principalement les boues mais aussi des composts urbains, ainsi que des effluents d'élevage.

Dans les trois essais d'Ensisheim, Feucherolles et Colmar, les ETM, les HAP (les 3 HAP de la réglementation « boues » + 13 autres HAP, soit les 16 HAP classés prioritaires par l'USEPA) et les 7 PCB réglementaires sont suivis dans les PRO épandus, les sols et les récoltes. Les phtalates, LAS, nonylphénols, dioxines et furanes sont dosés dans les PRO épandus, les sols et les récoltes sur seulement deux dispositifs (Feucherolles et Colmar).

Des équipements destinés à mesurer les impacts sur l'eau de lixiviation sont installés sur deux dispositifs (qualifiés de « lourds », c'est-à-dire fortement instrumentés) : seuls les ETM sont suivis à Feucherolles et les pesticides à Colmar.

L'impact des boues sur la structure des communautés microbiennes ainsi que sur l'abondance et la diversité des lombrics a aussi été étudié sur les dispositifs d'Ensisheim et de Feucherolles. Ces essais ont fait l'objet d'une journée technique en Novembre 2007 pour la restitution de l'essentiel des données acquises (INRA et Mission Recyclage Agricole du Haut-Rhin, 2007).

L'ADEME a également financé et publié des travaux sur le transfert des polluants dans l'environnement. Le risque de contamination des sols et les transferts des sols vers les plantes et les animaux sont traités dans deux ouvrages publiés en 2005 ((Tremel-Schaub et Feix, 2005) ; (Laurent et al., 2005)⁵².

Des références d'expérimentations à long terme ont pu être identifiées dans d'autres pays, notamment aux États-Unis (WERF, 1993).

7.2 TRANSFERTS SOL – PLANTES

Un nombre important de références bibliographiques (notamment des études en laboratoires) existent sur l'étude des mécanismes généraux de transfert vers les plantes. Nous avons toutefois fait le choix de concentrer le présent travail de synthèse sur les études en plein champ afin de mettre en évidence les résultats d'études en conditions réelles.

➤ Éléments Traces Métalliques

L'influence d'amendements organiques ne se limite pas à apporter des substances mais, par la modification des propriétés du sol, touche à la spéciation, la mobilité et la biodisponibilité des ETM et des composés organiques présents. Cette influence est ambivalente car, par exemple, l'apport de composts peut aussi bien favoriser la rétention des ETM (Shuman, 1998, Ruttens *et al.*, 2006 pour Zn et Cd) que la mobilité d'éléments comme le cuivre ou le plomb qui forment des complexes avec la matière organique dissoute (Ruttens *et al.*, 2006, Planquart *et al.*, 1999). La densité d'apport et la charge en métal des PRO, la texture et le pH du sol sont les facteurs prépondérants expliquant la mobilité des substances (Planquart *et al.*, 1999, Richards *et al.*, 2000, Kaschl *et al.*, 2002), mais le traitement des PRO (Richards *et al.*, 2000), leur mode d'incorporation et les pratiques culturales (Gove *et al.*, 2002, Madrid *et al.*, 2007) interviennent aussi (Cambier *et al.*, 2007).

Une étude ADEME publiée en 2003 et intitulée « Teneur des plantes à vocation alimentaire en éléments traces suite à l'épandage de déchets organiques » a montré que des apports raisonnés de

⁵² Notons toutefois que ces ouvrages traitent des transferts de polluants en général et ne sont pas dédiés à l'étude de ces transferts ayant lieu après épandage de boues spécifiquement.

déchets organiques n'augmentent pas significativement à court terme la composition en ETM des céréales (sauf du maïs), du colza et de la vigne dans les conditions expérimentales étudiées. La betterave sucrière et la laitue⁵³ accumulent par contre les ETM plus fortement (ces résultats étant toutefois issus d'un nombre restreint d'expérimentations) (CNAM - Institut d'Hygiène Industrielle et de l'Environnement Ouest, 2003).

Dans le cadre du programme AGREDE, une étude sur la « phytodisponibilité des ETM dans les grains de blé », dans laquelle des parcelles amendées par des boues ou non ont été comparées, a notamment montré qu'à court terme, aux doses réglementaires, il n'y a pas de différence entre les teneurs en ETM dans les grains de blé (Tercé).

Plus récemment, les travaux conduits sur les essais au champ de longue durée ont également permis d'apporter des résultats sur la thématique des transferts sol-plantes. Une synthèse des premiers résultats des 3 essais de plein champ au bout de 6 ans (Colmar), 8 ans (Feucherolles) et 11 ans (Ensisheim), concernant l'effet de l'épandage de PRO sur le bilan des 7 ETM réglementés à l'échelle de la parcelle a été publiée en 2007 (Schaub *et al.*, 2007). Ces travaux ont montré que les exportations par les récoltes (grains, et pailles pour Feucherolles) sont très faibles. Les effets des épandages sur les teneurs en éléments traces des grains de blé, maïs et orge restent modestes, comparés à l'effet année, site et espèce végétale. L'effet le plus marqué est la diminution de la teneur en Ni dans les plantes du fait de l'augmentation du pH du sol, suite à un épandage de boues chaulées. Les flux d'entrée d'ETM représentent entre 0,002 % et 2 % par an du stock initial⁵⁴ de l'horizon de surface (considéré comme faibles par les auteurs). A Feucherolles, des augmentations de teneurs en Cu, Zn et Hg sont observées sur l'horizon superficiel du sol pour tous les produits épandus. A Colmar, les effets des épandages ne sont pas détectables.

Sur ces trois essais, des bilans en flux ont été réalisés sur les parcelles épandues, en intégrant les quantités apportées par les différentes sources d'éléments traces (notamment engrais, pluies et retombées atmosphériques). Le bilan est un outil intéressant permettant de relativiser les flux d'entrée en éléments traces, ainsi que les flux de sortie, et de les confronter aux variations des teneurs dans les sols.

Les résultats de tels essais, complétés par diverses données ponctuelles convergentes, montrent donc qu'aucune différence significative de composition des récoltes suite à des épandages de boues ne peut être mise en évidence (ADEME, 2001).

➤ Composés Traces Organiques

De même que pour les ETM tels que décrits ci-dessus, des bilans sur les composés traces organiques (CTO) étudiés (HAP, PCB, phtalates, LAS, nonylphénols, dioxines et furanes, cf. fin du paragraphe 7.1) ont été réalisés dans le cadre des essais longue durée (Deschamps *et al.*, 2007). Les principales conclusions sont les suivantes :

Dans les PRO, les teneurs des 3 HAP et des 7 PCB sont hétérogènes en fonction des années et des produits mais conformes et en général très inférieures aux seuils réglementaires (d'un facteur 4 au moins). Les flux de ces composés sont globalement conformes aux limites réglementaires.

Sur Colmar et Feucherolles, sur une durée de 6 et 8 ans, malgré des flux de HAP et PCB liés aux épandages considérés comme « significatifs » par les auteurs, aucune accumulation des 16 HAP ou des PCB n'est décelable dans les sols⁵⁵, dont les teneurs sont considérées comme plutôt faibles par les auteurs et correspondent aux valeurs classiquement rencontrées dans des sols cultivés. Les auteurs supposent que l'absence d'accumulation de PCB dans les sols est sans doute liée aux hétérogénéités initiales, à leur lente minéralisation dans le sol et à leur volatilisation éventuelle ((Deschamps *et al.*, 2007) citent Alcock *et al.*, 1993).

⁵³ NB : épandage de composts et non de boues sur des cultures de laitue. Pour les betteraves, il s'agit principalement de betteraves sucrières.

⁵⁴ Stock d'éléments traces dans le sol avant tout épandage.

⁵⁵ Notons les réserves émises par les auteurs :

Concernant le site de Feucherolles, l'hétérogénéité des teneurs observées initialement dans le sol contribue à masquer l'éventuelle accumulation des HAP ainsi que leur évolution dans le sol (dégradation, stabilisation).

Comme pour les HAP, l'hétérogénéité des teneurs en PCB entre les différentes parcelles sur le site de Feucherolles est importante. L'évolution des teneurs en PCB au cours du temps est surprenante puisque celles les plus élevées ont été observées en 1998. Les teneurs en 7 PCB de 2002 sont similaires à celles de 2006 et sont en général deux fois moins importantes que celles de 1998, alors que ni le laboratoire, ni la méthode d'analyse n'ont changé en 2002.

Certains phtalates et les LAS sont détectés aussi bien dans les PRO que dans les sols et les récoltes. Les teneurs dans les PRO sont très variables et peuvent être élevées (jusqu'à 1 g/kg MS pour certains phtalates et 0,1 g/kg MS pour les LAS). Cependant, dans les sols et les récoltes, aucune différence entre les traitements, ni entre les traitements et le témoin n'est détectée. Les auteurs supposent que la biodégradabilité importante des phtalates et des LAS (temps de demi-vie respectifs de 1 à 60 jours et de 7 à 21 jours) explique sans doute l'absence d'accumulation de ces composés dans les sols.

Les teneurs de dioxines et de furanes sont inférieures aux seuils de quantification dans toutes les matrices (PRO, sol et récoltes).

Les NP et NPE n'ont pas été détectés dans les PRO employés sur le site de Colmar. Quant au site de Feucherolles, les teneurs en NP ne dépassent la limite de quantification qu'en 2002 (129 à 2 912 µg/kg MS) et aucun des deux NPE n'a été détecté.

Parmi les CTO suivis dans cet essai, les phtalates et les LAS sont les plus abondants dans les récoltes. Des traces de naphthalène sont parfois observées. En revanche, les PCB sont tous en dessous des limites de quantification dans les récoltes. Les nonylphénols n'ont été détectés qu'une année en 2004 dans le blé à Feucherolles. Dans l'ensemble des récoltes, aucune différence n'est observée entre les traitements ni entre les traitements et les témoins. Et aucune relation n'est observée entre les profils de CTO observés dans les récoltes et dans les sols en 2006. Ainsi, l'origine des CTO dans les récoltes ne peut être expliquée par les apports de CTO lors de l'épandage des PRO.

En conclusion générale, les essais au champ à Colmar, Ensisheim et Feucherolles ont permis de montrer qu'aucun impact de l'épandage des produits résiduels organiques ne semble être observé dans les sols et dans les récoltes. Les auteurs indiquent que la réalisation d'un bilan complet prenant en compte les flux de CTO apportés par les dépôts atmosphériques, les produits phytosanitaires et les engrais serait souhaitable.

7.3 TRANSFERTS VERS LES MILIEUX AQUATIQUES

Le rapport de l'INERIS (INERIS, 2006) mettait déjà en exergue la présence de substances dangereuses dans les boues et leur possible transfert vers les eaux en se basant sur les propriétés physico-chimiques intrinsèques de ces substances. Un second exercice du même type (INERIS, 2010b) avait pour objectif d'évaluer le risque pour les milieux aquatiques lié aux substances dangereuses véhiculées par les boues par modélisation simplifiée du potentiel de dissémination dans le sol et dans les eaux souterraines et de surface. Ce travail a abouti à une liste de substances d'intérêt dans les boues, pour lesquelles des investigations complémentaires quant au risque pour les milieux aquatiques sont préconisées. Une évaluation plus approfondie a été menée en 2010 sur une sélection de substances (INERIS, 2011b). Ce travail met notamment en exergue le manque de données de transfert sur les composés traces organiques, et d'autant plus pour les polluants dits émergents.

7.4 TRANSFERTS VERS LES EAUX SOUTERRAINES

Jusqu'au début des années 2000, l'idée est généralement admise que la lixiviation des substances organiques et inorganiques des boues vers les eaux souterraines est un phénomène négligeable. Cette thèse repose en particulier sur les travaux de modélisation de Wilson (Wilson *et al.*, 1996), qui montre que dans les conditions habituelles d'épandage, il est peu probable que la qualité des eaux souterraines soit impactée au-delà des seuils habituels. Cependant, cette modélisation repose uniquement sur le transfert par voie soluble, et ne tient pas compte du transfert colloïdal. Avec les essais de longue durée menés par l'INRA depuis 1995 dans le cadre du projet AGREDE et les

travaux du projet EPANDAGRI⁵⁶ (2000 – 2003), des données complémentaires sont disponibles, notamment sur le transport par voie colloïdale. Ils mettent en évidence une mobilité assez faible des métaux, cependant variable selon les espèces (Zn et Cu notamment plus mobilisables que Pb et Cr) (Tercé, Agrede, (INRA, 2004). La nature du sol, le rôle du pH et de la matière organique sont également mis en évidence. En effet, dans les sols acides, les métaux sont plus facilement mobilisables. Le rôle de la matière organique est plus difficile à cerner, car le mode de gestion des sites, et notamment la nature de la matière organique mise en jeu rentre en ligne de compte. Néanmoins, un modèle semi-empirique avec comme variables explicatives le pH, la teneur en matière organique du sol et la teneur en métal est proposé pour expliquer les concentrations des métaux en solution observées in situ (INRA, 2004). Dans le cadre des essais longue durée du réseau RSPRO, (Cambier *et al.*, 2007) constatent un effet chimique des apports de composts, en particulier du compost OMR, sur l'eau du sol, et confirment la mobilité observée pour Zn et Cu, et, dans une moindre mesure, Cd.

En ce qui concerne les composés traces organiques, certaines études basées sur des modélisations estiment que la migration vers la nappe est faible (PBDE : (Gouin et Harner, 2003) ; NPE : (Staples *et al.*, 2002)).

Le rapport de l'INERIS (2006) indique qu'une forte teneur en agents tensioactifs d'une boue peut affecter le comportement des composés organiques hydrophobes dans le sol, et conduire à une mobilisation des substances organiques dans le sol (création de micelles dans les eaux interstitielles) ((INERIS, 2006) cite Madsen *et al.*, 1997 et Haigh, 1996).

(Cambier *et al.*, 2007) ont étudié l'isoproturon et ses métabolites sur trois parcelles de l'essai au champ QualiAgro à Feucherolles équipée en bougies poreuses et lysimètres. Ces molécules sont détectées et quantifiées plus souvent et en plus grande concentration dans la parcelle témoin que dans les parcelles amendées. Les causes plausibles de ce dernier constat évoquées par les auteurs sont que la persistance des pesticides et les risques de leur lessivage sont fortement influencés par les propriétés de rétention des sols, qui augmentent avec la teneur en matière organique dans les parcelles recevant des composts, et par leur biodégradation potentielle, également activée dans ces parcelles par rapport au témoin. Les auteurs considèrent que ces premières informations restent toutefois à confirmer par un suivi sur plusieurs années.

Néanmoins, sur cette thématique de l'impact des PRO sur la solution du sol et la lixiviation de micropolluants, les études dans des conditions réalistes, conformes à la réglementation actuelle et basées sur une évaluation directe de la mobilité au champ et non sur l'application d'extractions plus ou moins énergiques à des échantillons solides, sont finalement peu nombreuses (Cambier *et al.*, 2007). Une des raisons tient dans les difficultés de prélèvement de l'eau du sol in situ en vue d'analyses de molécules ou éléments traces et d'interprétation des résultats obtenus. Quels que soient le dispositif et les matériaux utilisés, se posent des problèmes d'adsorption ou de relargage, de perturbation des flux hydriques et des conditions physico-chimiques du milieu (Bodineau *et al.*, 2007).

L'UPMC⁵⁷, dans le cadre du programme PIREN-Seine, prévoit de réaliser l'étude des transferts verticaux sur des antibiotiques (Dinh *et al.*, 2010). Les auteurs prévoient, dans le cadre de la poursuite de ces travaux sur site, d'étudier tant le devenir des composés dans le sol que l'impact des pratiques agricoles sur le risque de contamination indirecte des cours d'eau. Les auteurs évoquent également la nécessité de travaux en parallèle sur des pilotes de laboratoire en collaboration avec IRSTEA pour la compréhension des mécanismes de percolation/adsorption et de dégradation.

7.5 TRANSFERTS VERS LES EAUX DE SURFACE

Alors que les risques liés aux transferts d'ETM sol-plante et sol-nappe (dans une moindre mesure) sont globalement bien documentés, les références sur les transferts par ruissellement et érosion hydrique des substances apportées par épandage de boue sont moins nombreuses (Quilbé, 2002).

⁵⁶ Epandagri est un projet de recherche intitulé « Étude d'un secteur agricole pollué par des épandages d'eaux usées : bilan environnemental et possibilités de reconversions végétales ». Bien que concernant l'épandage d'eaux usées, les enseignements tirés sur le transfert des métaux par voie colloïdale peuvent être pris en considération dans la présente étude.

⁵⁷ Université Pierre et Marie Curie.

Les processus d'exportation de ces éléments vers le milieu hydrique sont encore mal connus à l'heure actuelle mais apparaissent étroitement liés aux phénomènes de ruissellement et d'érosion, qui semblent constituer la voie de dissémination la plus importante (Chassin et al., 1996), (ADEME et al., 1995a). Le transfert des ETM vers les eaux superficielles est l'hypothèse avancée par (ADEME et al., 1995a) pour expliquer les défauts de bilan en ETM observés après plusieurs années d'apports de boues résiduaires.

Les transferts vers les milieux aquatiques dépendent de nombreux paramètres, selon les molécules (spéciation, mobilité), les caractéristiques du milieu (nature du sol, pente de la parcelle, ...), les pratiques agricoles (cultures pratiquées, mode d'incorporation, etc).

(Quilbé, 2002) montre que les ETM sont présents en très grande partie sous forme particulière dans les eaux de ruissellement (plus de 90 % dans la majorité des échantillons analysés), et leur transport par ruissellement dépend donc étroitement des pertes en sol.

Il existe également une possibilité de déplacement latéral de métaux en solution par l'intermédiaire d'une nappe très superficielle (circulation "hypodermique") (Feix et Wyart, 1998).

L'effet de la méthode d'épandage de produits résiduaires organiques sur le devenir et le transfert des contaminants vers les eaux de surface et les eaux souterraines est très peu documenté (Gottschall et al., 2010). (Gottschall et al., 2010) ont récemment étudié ces aspects sur des boues liquides et des boues déshydratées sur les ETM, les PBDE et les PFAS⁵⁸.

Les études sur les transferts par ruissellement et érosion hydrique concernent principalement les ETM et les pesticides, bien que, pour ces derniers, les études portent généralement sur le taux de ruissellement des pesticides suite à leur utilisation, et ne sont pas spécifiquement dédiées à l'étude de ce phénomène après épandage de boues. L'INRA avance que 0,5 % à 20 % des pesticides épandus sont emportés par ruissellement (Document presse INRA : Presse info de janvier 2003). Une autre étude donne des chiffres similaires avec un taux de transfert par ruissellement déterminé pour 9 herbicides variant de 8,2 à 22,4 % (Nakanoa et al., 2004).

Un modèle – SWAT-2000 – permettrait (a priori selon les auteurs) de modéliser le transport de polluants associés à l'épandage de boues vers les eaux superficielles, bien que les transferts via le drainage et les eaux souterraines n'aient pas encore été suffisamment testés. L'utilisation de ce modèle sur les LAS suggère que les transferts de surfactants suite à l'épandage de boues n'entraînent pas, a priori, d'impacts sur la qualité des eaux, même pour les scénarios « de pire cas raisonnable » (Kannan et al., 2007).

Les études sur les composés traces organiques sont bien moins nombreuses et plus récentes. Une étude réalisée par l'UPMC dans le cadre du projet PIREN-Seine a mesuré des concentrations en antibiotiques dans les eaux de drainage, notamment pour des composés peu solubles. La possibilité d'une migration à l'état adsorbé sur des particules fines est envisagée. Les auteurs considèrent que ces premiers résultats montrent que la valorisation de boues urbaines en amendement de sols agricoles peut avoir un impact sur les sols et aboutir au transfert d'antibiotiques à partir des parcelles drainées (Dinh et al., 2010). Par ailleurs, une équipe canadienne a récemment étudié les transferts par ruissellement pour des composés pharmaceutiques et cosmétiques après épandage de boues urbaines déshydratées (Sabourin et al., 2009), ainsi que l'effet de la méthode d'épandage sur ces transferts (Topp et al., 2008). (Sabourin et al., 2009) ont mesuré des taux de transferts inférieurs à 1 % pour certaines molécules (triclocarban, triclosan, sulfaméthoxazole, ibuprofène, naproxène, et gemfibrozil) et supérieurs à 1 % pour d'autres (acétaminophène, carbamazépine, caféine, cotinine et aténolol), ce taux de transfert étant lié au caractère hydrophobe ou hydrophile des composés (Kow - coefficient de partition carbone octanol-eau). (Topp et al., 2008) montrent que l'enfouissement des boues (à 10 cm de profondeur) permettrait d'éviter les transferts par ruissellement des composés pharmaceutiques et cosmétiques étudiés.

⁵⁸ Sulfonates alkylperfluorés. Terme générique utilisé pour désigner tout composé sulfonate à chaîne carbone perfluorée. Il inclut les PFOS ainsi que tous les homologues à plus ou moins longue chaîne.

7.6 TRANSFERTS VERS L'AIR

Les émissions atmosphériques de polluants tout au long des filières boues doivent être considérées au cours des procédés de traitement des boues (cf. section 6), pendant et après épandage, ainsi que pendant le transport (entre la STEU et le champ) et lors du stockage en bout de champ.

Au niveau du transport, du stockage en bout de champ et de l'épandage, très peu de données sont disponibles sur les transferts vers l'air des micropolluants considérés dans le présent travail. Un bilan des connaissances sur les impacts environnementaux de la gestion biologique des déchets publié en 2005 (rapport ADEME élaboré par un groupement d'organismes français) indique n'avoir trouvé qu'une référence de synthèse portant sur les émissions sous forme gazeuse ou particulaire pour les PCB ((Cemagref et al., 2005) citent Harrad *et al.*, 1994). Les recherches n'ont donc pas été approfondies.

En revanche, les émissions d'ammoniac (notamment à cause des odeurs engendrées) et de gaz à effet de serre sont souvent étudiées au niveau du traitement des boues, mais également avant, pendant et après épandage. Des mesures de flux gazeux de CO₂, N₂O, NO, et de la volatilisation d'ammoniac après épandage de PRO ont notamment été réalisées dans le cadre des essais au champ de longue durée (réseau RSPRO) (INRA et Mission Recyclage Agricole du Haut-Rhin, 2007).

7.7 TRANSFERTS VERS LES ANIMAUX

Cette thématique ne faisant pas partie du périmètre de l'étude, les recherches n'ont pas été approfondies. Quelques références ont cependant été recensées et sont donc présentées rapidement ici.

Le sujet des transferts de polluants organiques et métalliques du sol vers l'animal a donné lieu à la publication d'un état de l'art en 2002 (Laurent *et al.*, 2002), puis d'un ouvrage en 2005 (Laurent *et al.*, 2005)⁵⁹, financés par l'ADEME. Une thèse sur le transfert et le métabolisme des HAP chez le ruminant laitier a été publiée en 2003 (Grova, 2003).

Le transfert direct sol-animal est le segment de la chaîne alimentaire pour lequel les données sont les plus éparpillées et les moins nombreuses.

Par ailleurs, une cellule nationale de veille sanitaire vétérinaire des épandages de boues a été mise en place en 1997 pour traiter des épandages de boues réalisés dans le cadre de la réglementation. Depuis sa création, elle a reçu 51 appels, dont 18 faisaient état d'une suspicion d'implication de l'épandage de boues dans l'apparition de pathologies animales. Mais aucun cas n'a formellement démontré l'implication de cet épandage. Le dernier bilan d'activité de la cellule (janvier 2006 à janvier 2008) est disponible sur le site de l'ADEME (ADEME et CNITV, 2005).

7.8 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

De manière générale, nous avons pu constater que les études sur les transferts de contaminants vers les différents compartiments environnementaux après épandage de boues concernent majoritairement les ETM, sur lesquels les données sont les plus nombreuses. L'étude des composés traces organiques (CTO), en revanche, est plus récente et la connaissance des transferts associés est moindre. Parmi les CTO, les composés les plus étudiés sont les HAP, PCB et substances du projet de révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE⁶⁰. Quelques études récentes portent également sur des polluants émergents tels que les composés pharmaceutiques ou cosmétiques.

Par ailleurs, nous constatons que le comportement des polluants dans les sols après épandage ainsi que les transferts sols-plantes sont les thématiques les plus étudiées, en comparaison aux transferts

⁵⁹ Notons toutefois que cet ouvrage traite des transferts de polluants en général et n'est pas dédié à l'étude de ces transferts ayant lieu après épandage de boues spécifiquement.

⁶⁰ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

vers les milieux aquatiques, vers l'air, ou encore les transferts directs sols-animaux, qui est le segment de la chaîne alimentaire pour lequel les données sont les plus éparses et les moins nombreuses.

Concernant les transferts sols-plantes, les différents essais longue durée n'ont montré aucune différence significative de composition des récoltes suite à des épandages de boues (pour les substances étudiées). Toutefois, bien que ces études aient montré qu'il n'y avait pas de risque de transfert de polluants dans les organes récoltés des plantes, la poursuite des études de transfert sol-plante semble nécessaire, compte tenu de la complexité des phénomènes étudiés (dépendant de la nature des substances étudiées, de la nature du sol, de l'espèce végétale et de son stade de développement, etc.) et de la nécessité d'observation à long terme des phénomènes.

Par ailleurs, si les effets à court terme sont a priori maîtrisés, certains auteurs posent la question des effets à moyen, voire à très long terme (20-100 ans) (Baize *et al.*, 2006)⁶¹.

Bien que souvent admis comme négligeables, les risques potentiels de transferts des polluants vers les milieux aquatiques après épandage de boues restent une question non tranchée. Les données expérimentales sont rares, d'autant plus pour les CTO. Les processus complexes en jeu nécessitent des études long terme pour identifier et étudier le rôle des différents facteurs intervenant dans le transfert des polluants vers les milieux aquatiques (eaux souterraines et eaux de surface). Les recherches bibliographiques ont montré le rôle majeur du type de sol considéré, notamment via le pH et la matière organique, sur la mobilité des polluants. Par ailleurs, ces recherches ont permis de noter un intérêt grandissant pour la problématique de l'interaction avec la matière organique et les transferts par voie colloïdale vs. dissoute, relativement bien documentée en ce qui concerne les ETM via les études de l'INRA, mais qui resterait toutefois à approfondir. Enfin, des problèmes méthodologiques subsistent, notamment sur la question de la faisabilité et de la validité des méthodes de prélèvement et d'analyse de la solution du sol (Cambier *et al.*, 2007).

En tout état de cause, compte tenu de la complexité des phénomènes régissant les transferts de polluants dans l'environnement après épandage de matières organiques sur les sols et des questions méthodologiques qui subsistent, la nécessité de poursuivre les efforts de recherche dans ce domaine apparaît clairement.

Rappelons par ailleurs l'importante variabilité des résultats observés, qui dépendent d'un grand nombre de facteurs, dont notamment la nature des boues épandues et des polluants qu'elles contiennent ainsi que celle du sol sur lequel elles sont épandues et des plantes présentes.

Les travaux devront également permettre de produire et d'améliorer la qualité des paramètres de transfert nécessaires aux travaux de modélisation des phénomènes. Sur ce point, le rapport d'étude (INERIS, 2011b) s'est attaché à identifier les principales lacunes à combler sur les paramètres. D'autres travaux de ce genre ont également été menés, aux États-Unis par exemple (WERF, 2010).

On note également la nécessité d'intégrer les substances peu étudiées et les voies de transferts peu prises en compte à ce jour (vers les milieux aquatiques notamment).

La poursuite des essais au champ de longue durée actuellement en place, permettant l'acquisition de données de terrain en conditions réalistes, couplée avec le développement et l'application de modèles mathématiques de transfert des contaminants, apparaît donc essentielle pour l'amélioration des connaissances et la détermination des paramètres de transferts, dans une démarche prédictive d'évaluation des risques sanitaires et environnementaux liés à l'épandage.

⁶¹ Bien qu'on puisse se demander si l'extrapolation à 100 ans est pertinente (une même parcelle peut-elle être épandue 100 années de suite ? quelle sera l'évolution de la nature des boues épandues sur une telle durée ? etc.).

8. RISQUES SANITAIRES ET IMPACTS ENVIRONNEMENTAUX

8.1 ÉVALUATION DES RISQUES SANITAIRES

En introduction, rappelons que l'évaluation des risques sanitaires (ERS) est une démarche d'aide à la décision : elle structure l'information disponible tout en permettant des choix de mesures de gestion en situation d'incertitude. Il n'en reste pas moins que ce n'est pas une « science » exacte et absolue.

En 2007, dans le cadre d'une convention entre l'ADEME, le SYPREA, la FP2E et l'INERIS, ce dernier a été sollicité pour élaborer une méthodologie générale pour évaluer les risques sanitaires liés aux substances chimiques ainsi qu'aux agents pathogènes, potentiellement engendrés par l'épandage des boues urbaines et industrielles. Celle-ci a été développée dans le respect des principes généraux d'évaluation des risques définis par l'US EPA et déjà utilisés dans d'autres méthodologies françaises (demande d'autorisation d'exploiter une installation classée, ...). Les principes de cette démarche sont repris en annexe V.

Afin de vérifier l'applicabilité de cette méthodologie, celle-ci a été déroulée sur un cas concret (plan d'épandage sur cultures de céréales). Pour ce site, selon la méthodologie développée et conformément aux différentes hypothèses de calcul, l'étude de cas a conclu que l'épandage de boues sur les terres agricoles du site étudié était une pratique acceptable du point de vue sanitaire.

Elle a par ailleurs mis en évidence la contribution très majoritaire de l'exposition par ingestion de végétaux cultivés. En conséquence, le facteur de transfert du sol vers les végétaux est un paramètre majeur de cette méthodologie. Or, en l'absence de valeur pertinente dans la littérature, des équations semi-empiriques peuvent être utilisées mais elles conduisent généralement à des valeurs élevées susceptibles de biaiser les résultats (INERIS, 2007).

Notons que seules les substances réglementées ont été considérées dans cette application. A la demande de l'EFAR en 2008, cette méthodologie a été élargie par l'INERIS aux substances visées par le projet de révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE⁶² (INERIS, 2008).

Sur des substances moins usuelles, la méthodologie reste applicable mais une limite de la démarche peut concerner la qualité, voire l'inexistence des données bibliographiques servant à déterminer les valeurs des différents paramètres : teneurs dans les boues, teneurs de bruit de fond dans les sols, coefficient de partage sol/eau ou octanol/eau, facteur de transfert du sol vers les végétaux, valeurs toxicologiques de référence. Une autre limite de la démarche réside dans l'absence de prise en compte du transfert des substances vers les eaux de surface ou les eaux souterraines.

Concernant ce dernier point, une étude récemment réalisée par l'INERIS à la demande de la Direction de l'Eau et de la Biodiversité du Ministère en charge de l'Écologie a permis d'améliorer la prise en compte du transfert des substances vers les eaux souterraines (par modélisation et sur des bases bibliographiques) (INERIS, 2011b). Ce travail a en effet consisté en la réalisation d'une première évaluation des impacts et des enjeux pour les eaux souterraines et la santé humaine, potentiellement engendrés par l'épandage des boues urbaines. Il a également permis de formuler une proposition de programme de travail pour combler les lacunes les plus importantes, au regard des enjeux définis précédemment.

Par ailleurs, une nouvelle convention entre l'ADEME, le SYPREA, le SIAAP, la FP2E, le CNRS et l'INERIS vient d'être signée. L'INERIS et le CNRS sont sollicités pour adapter la méthodologie développée en 2007 à d'autres substances dites « émergentes »⁶³ afin d'évaluer les risques liés à la présence de ces substances dans des boues et des composts de boues. Après une étape bibliographique et la détermination par screening des substances présentes dans les boues et les composts, une liste de substances à considérer sera proposée. Une caractérisation quantitative de ces substances dans des échantillons de boues et de composts sélectionnés selon certains critères et

⁶² Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

⁶³ Dans le sens substances non réglementées à ce jour (pour un contexte d'épandage de boues).

un protocole bien défini sera ensuite réalisée. Des tests écotoxicologiques vont être menés sur ces boues et ces composts (essais sur le compartiment terrestre, sur le compartiment aquatique, et essais spécifiques aux perturbateurs endocriniens). Certains paramètres vont être déterminés expérimentalement pour l'ensemble des substances considérées (notamment facteurs de bioconcentration (BCF) sur des cultures en conditions réelles et dégradation des substances). Enfin, une ERS sera menée à partir de toutes ces données d'entrée.

Une étude d'ERS liés aux contaminants présents dans les boues épandues sur les sols norvégiens a été réalisée par le Norwegian Scientific Committee for Food Safety (VKM, 2009). 12 voies d'exposition ont été étudiées pour les polluants réglementés ou faisant partie du projet de révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE⁶⁴. Les composés pharmaceutiques ont également été pris en compte dans l'étude (14 substances sélectionnées) malgré le manque de données sur les teneurs dans les boues et les sols ainsi que sur les paramètres et modèles de transfert. Tous les niveaux d'exposition ont été estimés à partir de modèles mathématiques basés sur les lignes directrices données dans le guide technique sur l'ERS de la commission européenne (European Union's (EU) Technical Guidance Document on Risk Assessment (TGD)). Les limites inhérentes à ce travail sont spécifiées dans le rapport d'étude. Notons, par exemple, que l'impossibilité d'appliquer le modèle de transfert vers les plantes aux composés pharmaceutiques n'a pas permis d'évaluer l'exposition humaine et animale via l'ingestion de végétaux cultivés pour ces substances. Par ailleurs, les risques ont été évalués substance par substance, aucune méthodologie d'évaluation des risques permettant de tenir compte des interactions potentielles entre toutes les substances chimiques présentes dans les boues n'étant disponible à ce jour.

8.2 IMPACTS ENVIRONNEMENTAUX ET ÉVALUATION DES RISQUES

L'évaluation des risques environnementaux (ERE) a pour objectif d'aider à protéger la structure et le fonctionnement des écosystèmes. Dans un contexte industriel ou urbanisé, elle s'organise autour des points de rejets, notamment ceux constitués par les STEU.

Les objectifs de protection considérés dans une ERE sont :

- les organismes de la STEU eux-mêmes, afin de s'assurer du bon fonctionnement de celle-ci. Des essais d'écotoxicité sur boues sont réalisés,
- les organismes des milieux aquatiques (colonne d'eau et sédiments),
- les organismes du sol, dont la santé conditionne le fonctionnement des sols,
- les organismes terrestres, qui sont exposés soit directement au sol, soit par empoisonnement secondaire à une nourriture contaminée.

Pour chaque compartiment, la collecte de données écotoxicologiques permet de déterminer par extrapolation une concentration sans effet prédite (PNEC) pour le compartiment considéré (STEU, eau, sédiment, sol, empoisonnement secondaire).

L'ERE peut s'effectuer selon trois approches, qui sont détaillées dans un guide en cours de rédaction par l'INERIS, en lien avec le réseau ERE, auquel participe l'INERIS, l'ADEME et différentes parties prenantes de l'ERE. Ces trois approches sont les suivantes.

➤ L'approche substance

Cette approche suit les mêmes principes que l'ERS : il s'agit de comparer les concentrations auxquelles les écosystèmes sont exposés aux concentrations seuil en deçà desquelles le risque est considéré comme acceptable. Les différentes substances chimiques de l'effluent sont identifiées et caractérisées individuellement pour l'étude. Les données écotoxicologiques disponibles dans la littérature sont rassemblées afin de réaliser l'évaluation des risques. La méthode d'évaluation des risques utilisée par INERIS est basée sur les modèles européens, disponibles pour les substances chimiques (REACH, biocides) ou phytosanitaires et matières fertilisantes selon les besoins de l'évaluation. Dans le cas d'une ERE liée aux substances chimiques sur un plan d'épandage de boues urbaines par exemple, les compartiments environnementaux affectés seront les prairies et les sols

⁶⁴ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues en agriculture.

agricoles épandus mais également, les eaux souterraines si la substance est capable de s'infiltrer. Par ailleurs, d'autres compartiments sont susceptibles d'être étudiés tels que les eaux superficielles si la substance est facilement lessivée, ou l'empoisonnement secondaire si elle est bioaccumulable.

Pour l'évaluation des concentrations environnementales, on a généralement recours à la modélisation, fondée sur un STEU modèle et des pratiques d'épandage génériques. De ce fait, elle peut nécessiter des ajustements pour des écosystèmes particuliers. Plusieurs données entrant dans les calculs sont des données « génériques » correspondant à la plupart des cas rencontrés, comme le débit moyen des cours d'eau en France ou la masse volumique générique des sédiments.

Ces données d'entrées doivent être collectées, consolidées, et bancarisées pour permettre une meilleure adéquation des données d'entrée avec les conditions d'utilisation et une meilleure accessibilité. L'OCDE a initié en octobre 2011 des travaux visant à échanger des informations sur les approches actuelles, les pratiques, les méthodes et les outils de modélisation des rejets liés aux STEU. Ces travaux sont menés par un groupe d'experts, auquel l'INERIS participe, sous l'égide conjointe de la Task Force on Exposure Assessment et la Task Force on PRTR.

➤ L'approche matrice

L'approche matrice prend en compte les effets de l'effluent ou des boues dans sa globalité sur l'entité cible (milieu récepteur). Elle a pour objectif d'étudier le risque écologique d'un sédiment ou d'un déchet sur un milieu récepteur clairement identifié. Il n'est pas nécessaire de connaître la composition exacte de celui-ci mais des essais écotoxicologiques sont à réaliser sur différentes dilutions de la matrice. Les organismes testés sont choisis en fonction de leur présence sur le site et de leur représentation au sein du milieu.

Plusieurs programmes de recherche passés ou en cours se sont attachés à l'étude des risques écotoxicologiques liés aux boues.

Un premier axe de recherche est d'évaluer le danger intrinsèque lié aux boues. Dans ce cadre, le programme « Outils innovants d'échantillonnage, d'analyses chimiques et biologiques pour le suivi de traitement avancés des eaux usées et des boues » (ECHIBIOTEB), coordonné par IRSTEA, avec Suez Environnement, les universités Bordeaux 1 – EPOC et Paris Sud XI, l'INERIS et Envolution a débuté en 2011 pour une durée de 3 ans. Dans la continuité d'AMPERES et en complément d'ARMISTIQ, ce projet vise le développement d'outils et/ou l'amélioration des connaissances en ce qui concerne, d'une part, les nouvelles stratégies d'échantillonnage intégratif et d'analyse, et d'autre part, les méthodologies biologiques d'évaluation de la qualité des eaux usées et des boues (ANR - Projet ECHIBIOTEB, 2010).

Plus largement, le programme de recherche "Évaluation des risques écotoxicologiques liés à la valorisation de déchets en agriculture" (VADETOX), piloté par l'ADEME de 1996 à 2006 et mené par dix-huit laboratoires, avait comme objectif de développer des outils pour évaluer les dangers et les risques écotoxicologiques liés à l'épandage de déchets et produits dérivés en agriculture. L'étude comportait le suivi du devenir de polluants (mobilité, biodisponibilité, transferts) et de leurs effets sur le système sol-eau-plante, ainsi que des tests de toxicité sur les déchets avant épandage et sur des échantillons de terre collectés avant et après épandages. Différentes méthodes physico-chimiques et biologiques ont été utilisées en laboratoire mais également sur un dispositif expérimental de plein champ (La Bouzule) afin de relier les impacts potentiels (constatés au laboratoire) et les impacts réels (mesurés sur le terrain). L'originalité de l'étude était de comparer in situ et à long terme les pratiques agricoles classiques avec des apports de déchets, d'évaluer la complémentarité des approches laboratoire et terrain et d'initier la réflexion sur l'approche prédictive du risque écotoxicologique. Ce programme a été particulièrement novateur en Europe (Bispo et Feix, 2002).

Les conclusions du programme VADETOX soulignaient l'utilité des tests biologiques en complément aux analyses chimiques pour évaluer l'impact potentiel des déchets valorisés en agriculture.

(Cambier et al., 2007) indiquent que l'étude des effets potentiels sur les organismes et l'écosystème sol est à développer, et préconisent d'entreprendre des travaux d'évaluation des impacts

écotoxicologiques des apports de PRO sur la composante vivante des sols, qui permettraient de définir des niveaux de concentration critiques en ETM plus appropriés.

➤ L'approche milieu

Dans le cadre de cette approche, la source d'effet néfaste potentiel est le milieu : elle intègre les effets des différents agents de stress présents sur les cibles multiples. On cherche ici à protéger le fonctionnement des écosystèmes ou une espèce sensible ou emblématique. Il s'agit alors d'étudier les effets du milieu sur les populations végétales ou animales en place. Le maintien de la biodiversité est généralement évalué à l'aide d'inventaires floristiques ou faunistiques, et le calcul d'indicateurs de biodiversité.

Dans cette optique, le programme national ADEME « Bioindicateurs de Qualité des Sols », initié en 2004, vise à développer les recherches sur la composante biologique des sols afin de définir des indicateurs de qualité des sols pour compléter les outils physico-chimiques déjà disponibles. La première phase de ce programme, terminée en 2008, a permis d'évaluer et de tester un ensemble de 80 bioindicateurs dans différentes situations (Bispo *et al.*, 2009). La seconde phase, initiée en 2009, doit permettre de calibrer, de tester la sensibilité et de comparer les bioindicateurs jugés les plus pertinents et les plus opérationnels sur un nombre défini de sites ateliers. Elle permettra de valider les différents bioindicateurs et de définir notamment leur domaine d'application (ex : surveillance de la qualité des sols ou évaluation des risques pour les écosystèmes). L'ADEME a également participé à des travaux européens pour le choix de bioindicateurs utiles à la surveillance de la qualité des sols (programme ENVASSO : « Environmental assessment of soil for monitoring »).

À ce jour, les contraintes réglementaires reposent principalement sur des critères de qualité physico-chimique des milieux ou des matières rejetées. Toutefois, l'approche analytique suppose que les polluants, dont on cherche à se prémunir, sont identifiables et en nombre relativement restreint, ce qui est rarement le cas. Les tests biologiques de toxicité et de génotoxicité sont ainsi des outils novateurs, utilisés depuis plusieurs années pour évaluer l'innocuité de substances et de matrices complexes. Ils sont complémentaires des analyses physico-chimiques car ils prennent en compte, à la fois la biodisponibilité – disponibilité pour les organismes vivants – des différentes substances chimiques présentes, mais également les effets de synergie ou d'antagonisme qui peuvent se produire entre ces dernières. Ces outils permettent une approche globale intégrant l'ensemble des molécules et éléments présents. De plus, elle permet de s'affranchir de certaines des contraintes des analyses physico-chimiques classiques, qui conduisent souvent à sous-estimer ou surestimer les dangers et les risques liés aux polluants (difficulté d'analyser les mélanges souvent complexes de molécules).

8.3 CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Comme vu dans les paragraphes précédents, des travaux d'évaluation des risques environnementaux et sanitaires liés à l'épandage de boues ont été menés en France. Sur le volet sanitaire, une méthodologie a été développée en 2007 par l'INERIS. Celle-ci comporte un certain nombre de limites (cf. section 8.1). Des méthodologies ont été élaborées dans d'autres pays mais sont toujours basées sur le même modèle (européen ou US EPA).

L'amélioration des connaissances sur les composés traces organiques non réglementés dans les boues doit permettre l'amélioration de l'évaluation des risques liés à l'épandage de boues (cf. l'étude réalisée par VKM et la nouvelle convention signée entre l'ADEME, le SYPREA, le SIAAP, la FP2E, le CNRS et l'INERIS pour adapter la méthodologie développée à des substances dites « émergentes »⁶⁵).

Les limites actuelles de la démarche d'évaluation des risques et les besoins d'avancées sont connus (convention Syprea, (INERIS, 2011b)). Bien qu'applicable à d'autres substances, la démarche est en effet très souvent limitée par la qualité, voire l'inexistence des données bibliographiques servant à déterminer les valeurs des différents paramètres : teneurs (dans les boues et les sols), paramètres de transferts ou encore valeurs toxicologiques de référence. La nécessité de poursuivre les efforts de

⁶⁵ Dans le sens substances non réglementées à ce jour (pour un contexte d'épandage de boues).
INERIS – DRC-12-118975-02397A

recherche pour améliorer la qualité des données bibliographiques et des paramètres et modèles de transfert nécessaires aux travaux d'évaluation des risques sanitaires et environnementaux apparaît donc encore une fois comme essentielle.

Par ailleurs, les besoins d'amélioration de la prise en compte du transfert des substances vers les eaux souterraines ont été identifiés (INERIS, 2011b).

Les métabolites et sous-produits des CTO présents dans les sols sont très souvent inconnus et non pris en considération par manque de données disponibles.

Enfin, il est important de souligner que les risques sont évalués avec une approche substance par substance, aucune méthodologie d'évaluation des risques permettant de tenir compte des interactions potentielles entre toutes les substances chimiques n'étant disponible à ce jour.

L'approche par matrice est possible par les tests biologiques, complémentaires des analyses physico-chimiques car ils prennent en compte, à la fois la biodisponibilité – disponibilité pour les organismes vivants – des différentes substances chimiques présentes, mais également les effets de synergie ou d'antagonisme qui peuvent se produire entre ces dernières. Ces outils permettent une approche globale intégrant l'ensemble des molécules et éléments présents.

9. SYNTHÈSE DES CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES IDENTIFIÉES

La présente étude a consisté en la réalisation d'un panorama des projets de recherche passés et en cours sur la problématique des micropolluants dans les boues de STEU urbaines avec deux objectifs principaux :

- Dresser l'état des connaissances actuelles sur la problématique des micropolluants, réglementés ou non, dans les boues de STEU urbaines, tout au long des filières de valorisation par épandage,
- Mettre en évidence, dans la mesure du possible, les manques de connaissances sur cette problématique afin d'identifier les besoins de travaux futurs et les perspectives d'actions et de recherches qui pourraient être engagées à court et moyen termes.

Le panorama des projets de recherche a été construit autour des thématiques suivantes :

- Caractérisation des micropolluants dans les boues,
- Substances potentiellement présentes dans les boues,
- Devenir des micropolluants lors des étapes de traitement des boues,
- Transferts des micropolluants dans l'environnement après épandage de boues : (sols, végétaux, milieux aquatiques, animaux et air),
- Risques sanitaires et impacts environnementaux.

Les principales conclusions et perspectives qui ont pu être dégagées sont reprises ici (cf. aussi les sections « conclusion et perspectives » propres à chaque thématique dans le corps du rapport).

➤ Caractérisation des micropolluants dans les boues

La maîtrise du prélèvement de boues et de l'analyse des composés traces conditionne la fiabilité et la qualité des données mesurées et leur comparabilité.

Peu de méthodes d'analyses normalisées existent dans le domaine des boues. Pour certaines substances (substances du projet de révision de la directive cadre sur les boues 86/278/CEE⁶⁶, PBDE et substances pharmaceutiques), le programme HORIZONTAL a permis de développer des méthodes aussi harmonisées que possible pour chacune des matrices concernées par la filière boue (boues, sols et biodéchets). Pour les autres composés organiques, des méthodes issues d'autres domaines (méthodes portant sur d'autres matrices telles que les eaux, les sols, les déchets ou la nutrition animale) pourront en tant que de besoin être adaptées pour l'analyse des boues.

Parallèlement, au niveau français, le programme AMPERES a permis des développements analytiques pour fiabiliser l'analyse d'une liste élargie de substances dans les boues. L'INERIS réalisera en 2012 un état des lieux des pratiques de prélèvement et d'analyse des micropolluants dans les boues (compilation des méthodes officielles existantes - normalisées, EPA, AMPERES) et proposera une première version d'un module sur les prélèvements et analyses de différentes matrices solides (boues, engrais, lisiers, composts).

Enfin, notons qu'un agrément boues pourrait être développé à l'instar de l'agrément dans le domaine de l'eau et des milieux aquatiques⁶⁷ (note AQUAREF 08-0033A).

➤ Substances potentiellement présentes dans les boues

Les substances pour lesquelles le plus grand nombre de données est disponible sur la caractérisation des boues françaises sont les substances réglementées (ETM, HAP et PCB). Des travaux de

⁶⁶ Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

⁶⁷ Arrêté du 27/10/11 portant modalités d'agrément des laboratoires effectuant des analyses dans le domaine de l'eau et des milieux aquatiques au titre du code de l'environnement.

compilation et d'analyses statistiques des données disponibles (tels que ceux menés en 2000 sur les substances réglementées notamment) seraient fort utiles afin d'évaluer les niveaux de teneurs récemment mesurés en France.

Par ailleurs, bien que non réglementés en France, la présence d'un grand nombre de composés traces organiques dans les boues a été documentée. Plusieurs travaux concluent à un manque de données disponibles sur la filière boue (teneurs et abattement) sur un certain nombre de substances, potentiellement préoccupantes et présentes dans les boues. En France, les données les plus récentes proviennent d'études ponctuelles et du programme AMPERES (bien que non axé spécifiquement sur la filière boues).

Face à ce constat, l'organisation d'une campagne de mesures exceptionnelle⁶⁸ dans les boues d'un large échantillon de STEU urbaines semble utile pour l'acquisition de données récentes et de qualité sur les teneurs de certains polluants dans les boues, et permettrait d'améliorer la connaissance des substances et la représentativité des niveaux de teneurs réellement mesurés dans les boues françaises. Par ailleurs, la production de données d'occurrence et de teneurs fiables et représentatives au niveau national apparaît nécessaire afin de mener à bien les travaux d'évaluation des risques liés à l'épandage de boues urbaines (cf. section 8.3). Il est toutefois nécessaire de prioriser ce type d'action sur les substances les plus pertinentes. La présente étude donne des pistes pour la sélection des substances à prendre en considération en identifiant les différents travaux sur lesquels se baser pour ce faire.

➤ **Devenir des micropolluants lors des étapes de traitement des boues**

Les recherches bibliographiques ont permis de constater que le compostage et la digestion anaérobie sont les procédés en expansion au niveau français et les plus étudiés en comparaison avec les procédés de traitements thermiques ou émergents. Les substances réglementées sont les plus étudiées (notamment HAP et PCB).

Cette revue de la littérature montre que les procédés de traitement des boues étudiées dans cette partie ont un effet sur certains micropolluants présents dans les boues. De manière générale, on constate que les traitements appliqués aux boues ont tendance à concentrer les éléments traces métalliques tout en modifiant leur spéciation (ainsi que les polluants non biodégradables), et à dégrader les composés organiques, de façon très variable (selon les substances, les procédés mis en œuvre et les conditions opératoires). Certaines substances semblent éliminées. Dans certains cas, on observe des niveaux de teneurs équivalents entre l'entrée et la sortie de l'étape de traitement laissant entendre une dégradation partielle compte tenu de la réduction de la quantité de matière au cours du traitement).

Cette revue de la littérature amène toutefois à conclure à un manque de connaissances sur le devenir de la majorité des micropolluants lors des étapes de traitement des boues. Peu d'études portent sur la réalisation de bilans et la détermination des performances des procédés de traitement des boues vis-à-vis des micropolluants. Les données disponibles sont souvent reportées en teneurs (parfois uniquement à l'échelle du laboratoire) et non en bilans de matières et flux globaux. Par ailleurs, le devenir de ces substances au cours de ces processus et les transferts potentiels vers les autres compartiments environnementaux ou dans les déchets (émissions atmosphériques ou lixiviats par exemple dans le cas du compostage) sont également peu étudiés.

La poursuite des travaux engagés sur cette thématique, et le développement de nouveaux projets permettront d'améliorer les connaissances dans ce domaine. Les besoins de connaissances identifiés relèvent à la fois de la compréhension et de la modélisation des phénomènes ainsi que de l'acquisition de nouvelles données en conditions réelles. Au-delà des travaux amont au niveau laboratoire, des mesures de terrain (à l'échelle industrielle, voire pilote) couplées avec de la

⁶⁸ A l'instar de campagnes de mesures d'envergure réalisées dans d'autres pays (aux États-Unis par exemple) ou de campagnes actuellement menées en France sur d'autres milieux ou types de rejets, notamment :

- action RSDE, élargie aux STEU urbaines en 2010, qui prévoit une surveillance des rejets de micropolluants dans les eaux en sortie de STEU, mais qui n'inclut pas d'analyses sur les boues,
- campagne de mesures exceptionnelle de substances émergentes dans les milieux aquatiques.

modélisation semblent nécessaires pour l'étude du devenir des micropolluants et des performances des procédés de traitement des boues.

Notons qu'une des limites du présent exercice réside dans le fait qu'il s'agit d'une revue bibliographique. Il serait fort pertinent de compléter et de comparer les données disponibles avec celles qui pourraient être produites auprès des exploitants (ex : SIAAP, etc.) et des constructeurs à travers leurs programmes de recherches.

Par ailleurs, cette analyse a permis de relever l'importance de coupler les recherches sur le devenir des polluants au cours des traitements appliqués aux boues avec les recherches sur le devenir des polluants dans l'environnement après apport aux sols.

Notons enfin qu'il conviendra, sur ce volet « devenir des micropolluants lors des étapes de traitement des boues », de prioriser les travaux au regard des typologies et des enjeux de chaque type de STEU, notamment les STEU de petites tailles, nombreuses en France.

➤ **Epandage des boues sur les sols agricoles et transferts des micropolluants dans l'environnement**

Compte tenu de la complexité des phénomènes régissant les transferts de polluants dans l'environnement après épandage de matières organiques sur les sols, du besoin d'observation à long terme de ces phénomènes et des questions méthodologiques qui subsistent, la poursuite des efforts de recherche dans ce domaine apparaît nécessaire.

On note la nécessité d'intégrer les substances peu étudiées (composés organiques et émergents) et les voies de transferts peu prises en compte à ce jour (vers les milieux aquatiques notamment).

La poursuite des essais au champ de longue durée actuellement en place, permettant l'acquisition de données de terrain en conditions réalistes, couplée au développement et à l'application de modèles mathématiques de transfert des contaminants, apparaît donc essentielle pour l'amélioration des connaissances et la détermination des paramètres de transferts, dans une démarche prédictive d'évaluation des risques sanitaires et environnementaux liés à l'épandage.

➤ **Risques sanitaires et impacts environnementaux**

Les limites actuelles de la démarche d'évaluation des risques et les besoins d'avancées sont connus. L'amélioration des connaissances sur les composés traces organiques non réglementés dans les boues doit permettre l'amélioration de l'évaluation des risques liés à l'épandage de boues. Bien qu'applicable à d'autres substances, la démarche est en effet très souvent limitée par la qualité, voire l'inexistence des données bibliographiques servant à déterminer les valeurs des différents paramètres : concentrations (dans les boues et les sols), paramètres de transferts ou encore valeurs toxicologiques de référence.

La nécessité de poursuivre les efforts de recherche pour améliorer la qualité des données bibliographiques et des paramètres et modèles de transfert nécessaires aux travaux d'évaluation des risques sanitaires et environnementaux apparaît donc encore une fois comme essentielle.

Une meilleure prise en compte du transfert des substances vers les eaux souterraines a également été identifiée comme piste d'amélioration.

➤ **Conclusions communes à toutes les thématiques**

L'analyse et la synthèse des informations et des données récoltées grâce à ces recherches a permis de faire le point sur l'état des connaissances actuelles sur les différentes thématiques étudiées. Ce travail s'est par ailleurs attaché à identifier les perspectives d'action et de R&D qui pourraient être engagées à court et moyen termes. Il en ressort notamment les points essentiels suivants.

Beaucoup de données et de travaux sont disponibles sur les substances réglementées en France : éléments traces métalliques, hydrocarbures aromatiques polycycliques et polychlorobiphényles.

Les travaux sur la spéciation, la biodisponibilité, la mobilité des substances dans la matrice boues et la matrice sol après épandage sont nécessaires pour la compréhension des phénomènes dans toutes les thématiques, autant dans les études concernant les procédés de traitement des boues que dans l'étude des transferts des polluants dans l'environnement et les végétaux après épandage.

De manière générale, la transformation éventuelle des composés en métabolites de toxicité comparable, voire supérieure et l'interaction entre les substances sont très peu étudiées, que ce soit dans les études sur les procédés, les transferts ou les impacts.

Peu de données permettent d'évaluer de manière robuste le devenir des polluants considérés aux différentes étapes de traitement des boues. Les données disponibles sont souvent reportées en teneurs (parfois uniquement à l'échelle du laboratoire) et non en bilans de matières et flux globaux.

Au niveau français, quelques grands programmes structurants tels qu'AMPERES et ARMISTIQ, les études ADEME passées et en cours ainsi que les expérimentations au champ longue durée de l'INRA ont permis et continuent de permettre l'acquisition de données et l'amélioration des connaissances.

On note enfin un fort besoin de connaissances nouvelles sur :

- le devenir de certaines substances, notamment les résidus médicamenteux et les perturbateurs endocriniens (exemple : phtalates, alkylphénols, ...)
- les transferts des polluants après épandage vers les différents compartiments de l'environnement, notamment vers les nappes, afin d'intégrer ces connaissances dans une démarche d'évaluation des risques environnementaux et sanitaires plus complète.

BIBLIOGRAPHIE

- ADEME (2001). Les boues d'épuration municipales et leur utilisation en agriculture.
- ADEME, CIRSEE, Agence eau Loire Bretagne, Agence eau Rhin Meuse, Agence eau Seine Normandie, Agence eau Adour Garonne, Agence eau Artois Picardie, Agence eau Rhone Méditerranée Corse et Ministère Environnement (2000). Micropolluants organiques et germes pathogènes dans les boues d'eaux résiduaires. Bonnin C, Leboucher G, Ducray F, Acobas F, Potty F, Huyard A, Galvez L, Dumoutier N, Bruchet G, Allain M, Jourdain MJ, Bispo A, Rodriguez C, Haag JL, Schwartzbrod J, Thiriat L, Gaspard P, Colin F, Henry AL, Mallez I, Coulom T, Probst L, Dehondt M.
- ADEME et CNITV (2005). Cellule de veille sanitaire vétérinaire sur les épandages de boues d'épuration, Bilan d'activité n°7 (Février 2004 – Février 2005).
- ADEME, INRA Bordeaux et FNDAE (1995a). Les micropolluants métalliques dans les boues résiduaires des stations d'épuration urbaines. Juste, C. ; Chassin, P. ; Gomez, A. ; Lineres, M. ; Mocquot, B. ; Feix I. ; Wiart, J., ADEME.
- AGHTM (2002a). Impact du futur projet européen sur la valorisation des boues en agriculture : Analyse statistique des données ETM et CTO de boues de stations d'épuration. Huyard, A.
- AGHTM (2002b). Impact du futur projet européen sur la valorisation des boues en agriculture : Campagne d'analyses sur 60 boues de STEP. Ducray, F. ; Huyard, A.
- ANR - Projet DIGUE (2008). Nouvelles filières de DIGestion anaérobie des boUes pour la gestion des risques Environnementaux (maîtrise des substances prioritaires et valorisation des produits finaux). Agence Nationale de la Recherche.
- ANR - Projet ECHIBIOTEB (2010). Outils innovants d'Echantillonnage, d'analyses CHImiques et BIOlogiques pour le suivi de Traitements avancés des Eaux usées et des Boues (Programme ECOTECH). Agence Nationale de la Recherche.
- Baize, D., Courbe, C., Suc, O., Schwartz, C., Tercé, M., Bispo, A., Sterckman, T. et Ciesielski, H. (2006). Epandages de boues d'épuration urbaines sur des terres agricoles : impacts sur la composition en éléments en traces des sols et des grains de blé tendre. *Courrier de l'environnement de l'INRA*, 53, 35-61.
- Benabdallah El-Hadj, T., Dosta, J. et Mata-Alvarez, J. (2006). Biodegradation of PAH and DEHP micro-pollutants in mesophilic and thermophilic anaerobic sewage sludge digestion. *Water Science and Technology*, 53(8), 99-107.
- Bispo, A. et Feix, I. (2002). Evaluation des risques écotoxicologiques liés à l'épandage de produits dérivés en agriculture - Les résultats du programme national de recherche VADETOX de l'ADEME. Journées nationales de l'étude des sols, Orléans, 22 - 24 octobre 2002. Actes des 7èmes Journées, Association française pour l'étude des sols (AFES).
- Bispo, A., Grand, C. et Galsomies, L. (2009). Le programme ADEME "Bioindicateurs de qualité des sols" : Vers le développement et la validation d'indicateurs biologiques pour la protection des sols. *Étude et Gestion des Sols*, 16,(3/4), 145-158.
- Bodineau, G., Rampon, J. N., Benoit, P., Le Villio-Poitrenaud, M. et Houot, S. (2007). Essai Qualiagro (Feucherolles, 78) : présentation du protocole. Retour au sol des produits résiduaires organiques. Des essais au champ de longue durée : intérêt d'un réseau (Actes de la Journée technique - Colmar, 27/07/2007), ADEME ; INRA: 9-12.
- Brandli, R. C., Bucheli, T. D., Kupper, T., Mayer, J., Stadelmann, F. X. et Tarradellas, J. (2007). Fate of PCBs, PAHs and their source characteristic ratios during composting and digestion of source-separated organic waste in full-scale plants. *Environmental Pollution*, 148(2), 520-528.
- Cai, Q. Y., Mo, C. H., Wu, Q. T., Zeng, Q. Y., Katsoyiannis, A. et Ferard, J. F. (2007). Bioremediation of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs)-contaminated sewage sludge by different composting processes. *Journal of Hazardous Materials*, 142(1-2), 535-542.
- Cambier, P., Benoit, P., Bodineau, G., Jaulin, A., Trouvé, A., Barriuso, E., Rampon, J. N., Labat, C., Vachier, P., Le Villio-Poitrenaud, M., Guérin, A., Proix, A. et Houot, S. (2007). Lixiviation des ETM et des produits phytosanitaires après épandages répétés de produits résiduaires organiques. Retour au sol des produits résiduaires organiques. Des essais au champ de longue durée : intérêt d'un réseau (Actes de la Journée technique - Colmar, 27/07/2007), ADEME ; INRA: 108-122.
- Carballa, M., Omil, F., Alder, A. C. et Lema, J. M. (2006). Comparison between the conventional anaerobic digestion of sewage sludge and its combination with a chemical or thermal pre-treatment concerning the removal of pharmaceuticals and personal care products. *Water Sci. Technol.*, 53 (8), 109-117.

- CEDRE (2004). Chlorure de vinyle - Guide d'intervention chimique. Centre de Documentation, de Recherche et d'Expérimentations sur les Pollutions Accidentelles des Eaux (CEDRE), ATOFINA et TOTAL.
- Cemagref, INRA, ENSIACET Toulouse, CReeD, Véolia Anjou Recherche, Ecobilan, Orval et ADEME (2005). Impacts environnementaux de la gestion biologique des déchets : bilan des connaissances. Mallard, Pascal ; Rogeau, Didier ; Gabrielle, Benoît ; Vignoles, Mireille ; Sablayrolles, Caroline ; Le Corff, Véronique ; Carrere, Matthieu ; Renou, Sébastien ; Vial, Estelle ; Muller, Olivier ; Pierre, Nelly ; Coppin, Yves. Données et références. ADEME.
- Chassin, P., Baize, D., Cambier, P. et Steckerman, T. (1996). Les éléments traces métalliques et la qualité des sols, impact à moyen et à long terme. *Etude et Gestion des Sols*, 3(4), 297-306.
- Cheng, H. F., Kumar, M. et Lin, J. G. (2008). Degradation kinetics of di-(2-ethylhexyl) phthalate (DEHP) and organic matter of sewage sludge during composting. *Journal of Hazardous Materials*, 154(1-3), 55-62.
- CNAM - Institut d'Hygiène Industrielle et de l'Environnement Ouest (2003). Teneurs des plantes à vocation alimentaire en éléments traces suite à l'épandage de déchets organiques : Synthèse d'essais agronomiques français et modélisation des transferts sol-plantes. Pinet, Claire ; Lecomte, James ; Vimont, Véronique ; Auburtin, Guy. ADEME.
- Coquery, M., Pomies, M., Martin-Ruel, S., Budzinski, C., Miège, C., Esperanza, M., Soulier, C. et Choubert, J.-M. (2011). Mesurer les micropolluants dans les eaux usées brutes et traitées (Dossier spécial - Micropolluants et eaux usées : les résultats du projet Amperes). *Techniques, Sciences, Méthodes*, 106(1/2), 25-43.
- Deschamps, M., Brochier, V., Schaub, A., Montenach, D., Bodineau, G., Le Villio-Poitrenaud, M. et Houot, S. (2007). Bilan des composés traces organiques dans des parcelles de grande culture recevant des produits résiduels organiques. Retour au sol des produits résiduels organiques. Des essais au champ de longue durée : intérêt d'un réseau (Actes de la Journée technique - Colmar, 27/07/2007), ADEME ; INRA: 95-107.
- Díaz-Cruz, M. S., García-Galán, M. J., Guerra, P., Jelic, A., Postigo, C., Eljarrat, E., Farré, M., López de Alda, M. J., Petrovic, M. et Barceló, D. (2009). Analysis of selected emerging contaminants in sewage sludge. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 28(11), 1263-1275.
- Dinh, T., Moreau-Guigon, E., Tournebize, J., Labadie, P., Alliot, F. et Chevreuil, M. (2010). Contamination en antibiotiques des sols agricoles par les déchets de l'assainissement urbain : évaluation des transferts potentiels vers le réseau hydrographique par le drainage agricole et les processus de ruissellement. Programme PIREN-Seine 2009.
- Donner, E., Seriki, K. et Revitt, M. (2010). Production, treatment and disposal of priority pollutant contaminated sludge. Source Control Options for Reducing Emissions of Priority Pollutants (projet ScorePP).
- Eriksson, E., Christensen, N., Ejbye Schmidt, J. et Ledin, A. (2008). Potential priority pollutants in sewage sludge. *Desalination*, 226(1-3), 371-388.
- European Commission (2001). Organic contaminants in sewage sludge for agricultural use. European Commission, Joint Research Center.
- Fang, M. et Wong, J. W. C. (1999). Effects of lime amendment on availability of heavy metals and maturation in sewage sludge composting. *Environmental Pollution*, 106(1), 83-89.
- Feix, I. et Wyart, J. (1998). Connaissance et maîtrise des aspects sanitaires de l'épandage des boues d'épuration des collectivités locales. ADEME Ed.
- Fent, K. (1996). Organotin compounds in municipal wastewater and sewage sludge: contamination, fate in treatment process and ecotoxicological consequences. *The Science of the Total Environment*, 185(1-3), 151-159.
- Garcia, C., Moreno, J. L., Hernandez, T., Costa, F. et Polo, A. (1995). Effect of Composting on Sewage Sludges Contaminated with Heavy-Metals. *Bioresource Technology*, 53(1), 13-19.
- Gavala, H. N., Alatrisme-Mondragon, F., Iranpour, R. et Ahring, B. K. (2003). Biodegradation of phthalate esters during the mesophilic anaerobic digestion of sludge. *Chemosphere*, 52, 673-682.
- Gibson, R. W., Wang, M. J., Padgett, E., Lopez-Real, J. M. et Beck, A. J. (2007). Impact of drying and composting procedures on the concentrations of 4-nonylphenols, di-(2-ethylhexyl)phthalate and polychlorinated biphenyls in anaerobically digested sewage sludge. *Chemosphere*, 68(7), 1352-1358.
- Golet, E., Xifra, I., Siegrist, H., Alder, A. et Giger, W. (2003). Environmental exposure assessment of fluoroquinolone antibacterial agents from sewage to soil. *Environmental Sciences and Technology*, 37(15), 3243-3249.
- Gottschall, N., Topp, E., Edwards, M., Russell, P., Payne, M., Kleywegt, S., Curnoe, W. et Lapen, D. R. (2010). Polybrominated diphenyl ethers, perfluorinated alkylated substances, and metals in tile drainage and groundwater following applications of municipal biosolids to agricultural fields. *The Science of the total environment*, 408(4), 873-83.

- Gouin, T. et Harner, T. (2003). Modelling the environmental fate of the polybrominated diphenyl ethers. *Environment International*, 29(6), 717-724.
- Harrison, E. Z., Hysell, M. et Hay, A. (2006). Organic chemicals in sewage sludges. *Science of the Total Environment*, 367(2-3), 481-497.
- Hernandez-Raquet, G., Soef, A., Delgenes, N. et Balaguer, P. (2007). Removal of the endocrine disrupter nonylphenol and its estrogenic activity in sludge treatment processes. *Water Research*, 41(12), 2643-2651.
- Hydromantis Inc., University of Waterloo et Trent University (2009). Emerging substances of concern in biosolids : concentrations and effects of treatment processes. Final Report – Literature Review. CCME Project # 447-2009. CCME Project # 447-2009. Canadian Council of Ministers of the Environment (CCME).
- Hydromantis Inc., University of Waterloo et Trent University (2010). Emerging substances of concern in biosolids : concentrations and effects of treatment processes. Final Report – Field Sampling Program. CCME Project # 447-2009. Canadian Council of Ministers of the Environment (CCME).
- ICON (2001). Pollutants in urban waste water and sewage sludge (Final report).
- IFEN (1998). Ifen - Scees - agences de l'Eau, Enquête Eau 1998.
- IFEN (2004). Ifen-Scees, Enquête Eau 2004.
- IFEN (2007). <http://www.stats.environnement.developpement-durable.gouv.fr/Eider/tables.do>.
- INERIS (2006). Etat de l'art : Problématique des substances prioritaires dans les boues d'épuration. Rapport d'étude INERIS - DRC – 05 – 66015 – CHEN – 06.0086 / BLe. Lepot, Bénédicte.
- INERIS (2007). Evaluation des risques sanitaires des filières d'épandage des boues de station d'épuration. Gay, Guillaume et Denys, Sébastien. ADEME / SYPREA / FP2E / INERIS.
- INERIS (2008). Public health risk assessment of sludge landspreading (Final report). Rapport d'étude DRC-07-81117-09289-C. Gay, Guillaume. EFAR.
- INERIS (2009a). Normalisation eau/boues, Synthèse des travaux 2008 – méthodes physico-chimiques. DRC-09-95687-04458A. Strub, Marie-Pierre. DRC-09-95687-04458A. ONEMA.
- INERIS (2009b). Les substances émergentes dans l'environnement : Note de synthèse sur l'état de l'art concernant les produits pharmaceutiques, les cosmétiques et les produits d'hygiène corporelle (document final, version C). DRC-09-95687-06381C. Dulio, Valeria ; Morin, Anne. http://www.aquaref.fr/system/files/R_09_06381C_Action29_VF.pdf. DRC-09-95687-06381C. ONEMA ; INERIS ; AQUAREF.
- INERIS (2009c). Risques sanitaires liés à l'injection de biogaz issu de boues de STEP dans un réseau de gaz naturel – travaux préliminaires (Programme DRA-DRC-93, opération C). Rapport d'étude N°DRC-09-104115-15569A. Zdanevitch, Isabelle.
- INERIS (2010a). Normalisation eau/boues, Synthèse des travaux 2009 – méthodes physico-chimiques. DRC-10-102844-04902A. Strub, Marie-Pierre. DRC-10-102844-04902A. ONEMA.
- INERIS (2010b). Substances organiques à considérer en priorité dans les boues d'épuration (Rapport final). DRC-09-102844-15161A. Féray, Christine. ONEMA.
- INERIS (2011a). Risques sanitaires liés à l'injection de biogaz issus de boues de STEP dans un réseau de gaz naturel – acquisition de données sur site (Programme DRA-DRC-93, opération D). Rapport d'étude N°DRC-11-111890-01505A. Zdanevitch, Isabelle ; Collet, Serge.
- INERIS (2011b). Présence et devenir des substances dangereuses des boues de stations d'épuration des eaux usées urbaines en valorisation agricole, analyse des enjeux sur les eaux souterraines et la santé humaine. Rapport d'étude n°INERIS DRC-11-112577-00674A. Onjamalala, Elarimisa ; Rebuschung, Flore.
- INRA (2004). Etude d'un secteur agricole pollué par des épandages d'eaux usées : Bilan environnemental et possibilités de reconversions végétales. Projet EPANDAGRI (Janvier 2000 - Décembre 2003). Rapport final - Document de synthèse. LAMY, Isabelle. INRA.
- INRA et Mission Recyclage Agricole du Haut-Rhin (2007). Retour au sol des produits résiduels organiques. Des essais au champ de longue durée : intérêt d'un réseau. Journée Technique, Colmar ADEME ; INRA.
- IRH Environnement (2007). Contamination potentielle des échantillons de stations d'épuration (eaux brutes, eaux traitées, boues) et effluents d'élevage par des molécules pharmaceutiques à usage humain et vétérinaire (Rapport final). Programme d'étude ADEME. Algros, Emilie ; Jourdain, Marie-José. ADEME.
- IRSTEA (Cemagref), INERIS et NUMTECH (2008). Projet EMISITE : Évaluation sur site de différentes méthodes de mesure des émissions gazeuses d'une installation de compostage. Pascal MALLARD, Isabelle ZDANEVITCH, Frédéric PRADELLE, Émeric FREJAFON.
- Jones, F. W. et Westmoreland, D. J. (1998). Degradation of nonylphenol ethoxylates during the composting of sludges from wool scour effluents. *Environmental science & technology*, 32(17), 2623-2627.
- Kannan, N., White, S. M. et Whelan, M. J. (2007). Predicting diffuse-source transfers of surfactants to surface waters using SWAT. *Chemosphere*, 66(7), 1336-1345.

- Kim, C. (2010). Traitement des boues ; la digestion fait enfin recette. *Hydroplus*.
- Knoth, W., Mann, W., Meyer, R. et Nebhuth, J. (2007). Polybrominated diphenyl ether in sewage sludge in Germany. *Chemosphere*, 67(9), 1831-1837.
- Laboratoires Wolff Environnement et Laboratoire SAS (2000). Bilan entre micropolluants organiques, éléments traces métalliques, paramètres agronomiques, pH et matière sèche des boues de station d'épuration d'effluents urbains (données de janvier 1998 à avril 2000) : Rapport et annexes.
- Laurent, C., Feidt, C. et Laurent, F. (2002). État de l'art sur les transferts de polluants organiques et métalliques du sol vers l'animal. ADEME.
- Laurent, C., Feidt, C. et Laurent, F. (2005). Contamination des sols - Transfert des sols vers les animaux., EDP Science, ADEME.
- Lazzari, L., Sporni, L., Salizzato, M. et Pavoni, B. (1999). Gas chromatographic determination of organic micropollutants in samples of sewage sludge and compost: Behaviour of PCB and PAH during composting. *Chemosphere*, 38(8), 1925-1935.
- Liu, Y. S., Ma, L. L., Li, Y. Q. et Zheng, L. T. (2007). Evolution of heavy metal speciation during the aerobic composting process of sewage sludge. *Chemosphere*, 67(5), 1025-1032.
- Mars, A., Kasberg, T., Kaschabek, S., vanAgteren, M., Janssen, D. et Reineke, W. (1997). Microbial degradation of chloroaromatics: Use of the meta-cleavage pathway for mineralization of chlorobenzene. *Journal of bacteriology*, 179(14), 4530-4537.
- Martin Ruel, S., Choubert, J. M., Ginestet, P. et Coquery, M. (2008). Semi-quantitative analysis of a specific database on priority and emerging substances in wastewater and sludge. *Water Science and Technology*, 57(12), 1935-1944.
- MEEDDAT (2009). Éléments de contexte et réglementation française relatifs à la valorisation des boues issues du traitement des eaux usées. Ministère de l'écologie, de l'énergie, du développement durable et de l'aménagement du territoire (MEEDDAT).
- Miege, C., Choubert, J. M., Ribeiro, L., Eusebe, M. et Coquery, M. (2009). Fate of pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment plants - Conception of a database and first results. *Environmental Pollution*, 157(5), 1721-1726.
- Milieu Ltd, WRc et Risk & Policy Analysts (RPA) (2008a). Environmental, economic and social impacts of the use of sewage sludge on land : Consultation report on options and impacts. European commission.
- Milieu Ltd, WRc et Risk & Policy Analysts (RPA) (2008b). Environmental, economic and social impacts of the use of sewage sludge on land : Draft summary report 1 - Assessment of existing knowledge. European commission.
- Milieu Ltd, WRc et Risk & Policy Analysts (RPA) (2010). Environmental, economic and social impacts of the use of sewage sludge on land - Final Report, Part III: Project Interim Reports.
- Moeller, J. et Reeh, U. (2003). Degradation of DEHP, PAHs and LAS in source separated MSW and sewage sludge during composting. *Compost Science & Utilization*, 11(4), 370-378.
- Muller, M., Combalbert, S., Delgenes, N., Bergheaud, V., Rocher, V., Benoit, P., Delgenes, J. P., Patureau, D. et Hernandez-Raquet, G. (2010). Occurrence of estrogens in sewage sludge and their fate during plant-scale anaerobic digestion. *Chemosphere*, 81(1), 65-71.
- Nakanoa, Y., Miyazakia, A., Yoshidaa, T., Onoa, K. et Inoueb, T. (2004). A study on pesticide runoff from paddy fields to a river in rural region—1: field survey of pesticide runoff in the Kozakura River, Japan. *Water Research*, 38(13), 3017–3022.
- Nordic Council of Ministers (2004). Musk compounds in the nordic environment. Bügel Mogensen, Betty ; Pritzl, Gunnar ; Rastogi, Suresh ; Glesne, Ola ; ; Hedlund, Britta ; Hirvi, Juha-Pekka ; Lundgren, Alf ; Sigurdsson, Albert.
- Nouvelles Techniques Environnementales (NTE). "Séchage des boues urbaines et industrielles." Retrieved 07/06/2012, 2012, from <http://www.ntenvironnement.com/sechage.asp>.
- Orgaterre (2001). Inventaire national des essais agronomiques réalisés avec des matières organiques et minérales d'origines urbaine et industrielle. ADEME.
- Pakou, C., Kornaros, M., Stamatelatos, K. et Lyberatos, G. (2009). On the fate of LAS, NPEOs and DEHP in municipal sewage sludge during composting. *Bioresource Technology*, 100(4), 1634-1642.
- Patureau, D., Delgenes, N. et Delgenes, J. P. (2008a). Impact of sewage sludge treatment processes on the removal of the endocrine disrupters nonylphenol ethoxylates. *Chemosphere*, 72(4), 586-591.
- Patureau, D. et Hernandez-Raquet, G. (2008b). La digestion anaérobie et les xénobiotiques. La méthanisation. R. Moletta, Tec&Doc (Lavoisier).
- Patureau, D., Hernandez-Raquet, G., Balaguer, P., Delgenes, N., Muller, M., Dagnino, S. et Delgenes, J. P. (2008c). Relevant approach to assess performances of wastewater biosolids composting in terms of micropollutants removal. *Water Science and Technology*, 58(1), 45-52.
- Patureau, D. et Trably, E. (2006). Impact of anaerobic and aerobic processes on PolyChloroBiphenyl removal in contaminated sewage sludge. *Biodegradation*, 17(1), 9-17.

- Prats, D., Rodriguez, M., Muela, M. A., Llamas, J. M., Moreno, A., De Ferrer, J. et Berna, J. L. (1999). Elimination of xenobiotics during composting - A case study: LAS (Linear Alkylbenzene Sulfonate). *Tenside Surfactants Detergents*, 36(5), 294-298.
- Quilbé, R. (2002). Transferts de polluants inorganiques par ruissellement en terre de grande culture : Approche interdisciplinaire et multi-échelle. Thèse de doctorat, ENS Lettres et Sciences Humaines Lyon ; ADEME: 274.
- RECYVAL SA et ADEME (2000). Composts de boues de stations d'épuration municipales : qualité, performances agronomiques et utilisation. Jeuch, Corinne ; Joly, Yves ; Sage, Stéphane ; Wiart, Jacques. Données et références. n°3276. ADEME Éditions.
- RITTIMO Agroenvironnement, INERIS, FIBL, UTEAM, LDAR, CRT, Institut Carnot MICA et ADEME. Qualité agronomique et sanitaire des digestats. Rapport à paraître. ADEME.
- Sabourin, L., Beck, A., Duenk, P. W., Kleywegt, S., Lapen, D. R., Li, H. X., Metcalfe, C. D., Payne, M. et Topp, E. (2009). Runoff of pharmaceuticals and personal care products following application of dewatered municipal biosolids to an agricultural field. *Science of the Total Environment*, 407(16), 4596-4604.
- Sanz, E., Prats, D., Rodriguez, M. et Camacho, A. (2006). Effect of temperature and organic nutrients on the biodegradation of linear alkylbenzene sulfonate (LAS) during the composting of anaerobically digested sludge from a wastewater treatment plant. *Waste Management*, 26(11), 1237-1245.
- Schaub, A., Imhoff, M., Valentin, N., Montenach, D., Bodineau, G., Le Villio-Poitrenaud, M. et Houot, S. (2007). Bilan des éléments traces sur des parcelles de grande culture recevant des produits résiduels organiques. Retour au sol des produits résiduels organiques. Des essais au champ de longue durée : intérêt d'un réseau (Actes de la Journée technique - Colmar, 27/07/2007), ADEME ; INRA: 80-94.
- SFT (2006). Screening of selected pharmaceuticals and cosmetics. Møskeland, T. 2156/2006. Statens forurensningstilsyn (SFT) (Norwegian Pollution Control Authority).
- SFT (2007). Occurrence of selected pharmaceuticals in wastewater effluents from hospitals (Ullevål and Rikshospitalet) and VEAS wastewater treatment works. Thomas, Kevin V. TA-2246/2007 / ISBN : 978-82-577-5111-1. Statens forurensningstilsyn (SFT) (Norwegian Pollution Control Authority).
- Smith, S. R. (2008). The Implications for Human Health and the Environment of Recycling Biosolids on Agricultural Land (Final report for discussion). Imperial College London ; ICON.
- Smith, S. R. (2009). Organic contaminants in sewage sludge (biosolids) and their significance for agricultural recycling. *Philosophical transactions of the Royal Society A*, 367, 4005-4041.
- Smith, S. R. et Riddell-Black, D. (2007). Sources and impacts of past, current and future contamination of soil. Appendix 2 : Organic contaminants. Imperial College London ; ICON.
- Solagro (2002). Effets de la digestion anaérobie sur les micropolluants et germes pathogènes. Couturier, Christian.
- Soulier, C., Gabet, V., Lardy, S., Lemenach, K., Pardon, P., Esperanza, M., Miège, C., Choubert, J.-M., Martin, S., Bruchet, A., Coquery, M. et Budzinski, C. (2011). Zoom sur les substances pharmaceutiques : présence, partition, devenir en station d'épuration (Dossier spécial - Micropolluants et eaux usées : les résultats du projet Amperes). *Techniques, Sciences, Méthodes*, 106(1/2), 63-77.
- Staples, Mihaich, Naylor et Huntsman (2002). A preliminary assessment of ecological risks from NP in municipal sewage sludge following wastewater treatment.
- SYPREA (2000). Qualité des boues, quoi de neuf ? *La lettre du Syprea* (Mars 2000).
- SYPREA (2004). Qualité des boues d'épuration : résultats de l'enquête réalisée auprès des adhérents du SYPREA. *Lettre du SYPREA*, 8-11.
- Tercé, M. Agriculture et épandage de déchets urbains et agro-industriels (AGREDE). *Dossier de l'environnement de l'INRA n25*.
- Topp, E., Monteiro, S., Beck, A., Ball-Coelho, B., Boxall, A., Duenk, P., Kleywegt, S., R. Lapen, D., Payne, M., Sabourin, L., Li, H. et Metcalfe, C. (2008). Runoff of pharmaceuticals and personal care products following application of biosolids to an agricultural field. *Sci Total Environ*, 396, 52-59.
- Trably, E. et Patureau, D. (2005). Successful treatment of low PAH-contaminated sewage sludge in aerobic bioreactors. *Environmental Science and Pollution Research*, 13(3), 170-176.
- Trably, E., Patureau, D. et Delgenes, J. P. (2003). Enhancement of polycyclic aromatic hydrocarbons removal during anaerobic treatment of urban sludge. *Water Science and Technology*, 48(4), 53-60.
- Tremel-Schaub, A. et Feix, I. (2005). Contamination des sols - Transfert des sols vers les plantes., EDP Science, ADEME.
- US EPA (2009a). Targeted National Sewage Sludge Survey : Sampling and analysis technical report. EPA-822-R-08-016. US Environmental Protection Agency.

- US EPA (2009b). Targeted national sewage sludge survey : Statistical analysis report. US Environmental Protection Agency.
- Veolia Anjou Recherche et Suez Environnement (2006). Présence et devenir des perturbateurs endocriniens dans les stations de traitement des eaux résiduaires urbaines. Castillo, Luis ; Huyard, Alain ; Bruchet, Auguste ; Esperanza, Mar ; Janex-Habibi, Marie-Laure ; Herry, Gaela ; Pasanau, Jacqueline. ADEME.
- Vieno, N., Tuhkanen, T. et Kronberga, L. (2007). Elimination of pharmaceuticals in sewage treatment plants in Finland. *Water research*, 41(5), 1001 – 1012.
- VKM (2009). Risk assessment of contaminants in sewage sludge applied on norwegian soils : Opinion from the Panel on Contaminants in the Norwegian Scientific Committee for Food Safety. Sundstøl Eriksen, Gunnar ; Einar Amundsen, Carl ; Bernhoft, Aksel ; Eggen, Trine ; Grave, Kari ; Halling-Sørensen, Bent ; Källqvistn, Torsten ; Sogn, Trine ; Sverdrup, Line. Norwegian Scientific Committee for Food Safety (VKM).
- WERF (1993). Document long-term experience of biosolids land application programs : Project 91-ISP-4. Stukenberg, J. R. Water Environment Research Foundation (WERF).
- WERF (2010). Trace organic chemicals in biosolids-amended soils : State-of-the-science review (Executive summary). SRSK5T09. Water Environment Research Foundation (WERF).
- Wilson, S. C., DuarteDavidson, R. et Jones, K. C. (1996). Screening the environmental fate of organic contaminants in sewage sludges applied to agricultural soils .1. The potential for downward movement to groundwaters. *Science of The Total Environment*, 185(1-3), 45-57.
- Wong, J. W. C. et Selvam, A. (2006). Speciation of heavy metals during co-composting of sewage sludge with lime. *Chemosphere*, 63(6), 980-986.
- Yi, S. M., Pagilla, S. R., Seo, Y. C., Mills, W. J. et Holsen, T. M. (2008). Emissions of polychlorinated biphenyls (PCBs) from sludge drying beds to the atmosphere in Chicago. *Chemosphere*, 71(6), 1028-1034.
- Zorpas, A. A., Vlyssides, A. G., Zorpas, G. A., Karlis, P. K. et Arapoglou, D. (2001). Impact of thermal treatment on metal in sewage sludge from the Psittalias wastewater treatment plant, Athens, Greece. *Journal of Hazardous Materials*, 82(3), 291-298.

LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Pages
Annexe I	Analyse bibliométrique	11 pages
Annexe II	Listes des mots clés « procédés » et « substances » recherchés dans le corpus de références bibliographiques dans le cadre de l'analyse bibliométrique	2 pages
Annexe III	Questionnaire élaboré pour les entretiens	1 page
Annexe IV	Modes de production des différents types de boues et présentation de la filière épandage	3 pages
Annexe V	Description de la méthodologie ERS	1 page

Annexe I : Analyse bibliométrique

1. OBJECTIFS DE L'ANALYSE BIBLIOMETRIQUE

Selon Rostaing [1996], « la bibliométrie est l'application de méthodes statistiques ou mathématiques sur des ensembles de références bibliographiques ».

La bibliométrie permet en effet de produire des indicateurs quantitatifs autour de la communication scientifique, et notamment la publication d'articles scientifiques.

Les analyses bibliométriques sont utilisées pour différents objectifs comme l'évaluation de la recherche, mais aussi, et c'est dans cette optique que nous l'utilisons ici, pour dresser des états de la recherche dans différents domaines et/ou pour un pays particulier [Giovannini, 2010, Leiser, 2009, Taty, 2010a et 2010b, OST, 2004, Zhang, 2010, Yi, 2008, Wang, 2010], ou encore pour aider à la veille technologique et à la détection de tendances [Roche, 2007, Besagni, 2009].

2. DEMARCHE ADOPTEE

Les étapes suivies et les outils utilisés sont résumés dans la **Figure 2** : les références récupérées depuis la base ISI dans EndNote sont triées puis le corpus final de références d'intérêt est analysé avec le logiciel « SPHINX Plus² » avec Option « Lexica ».

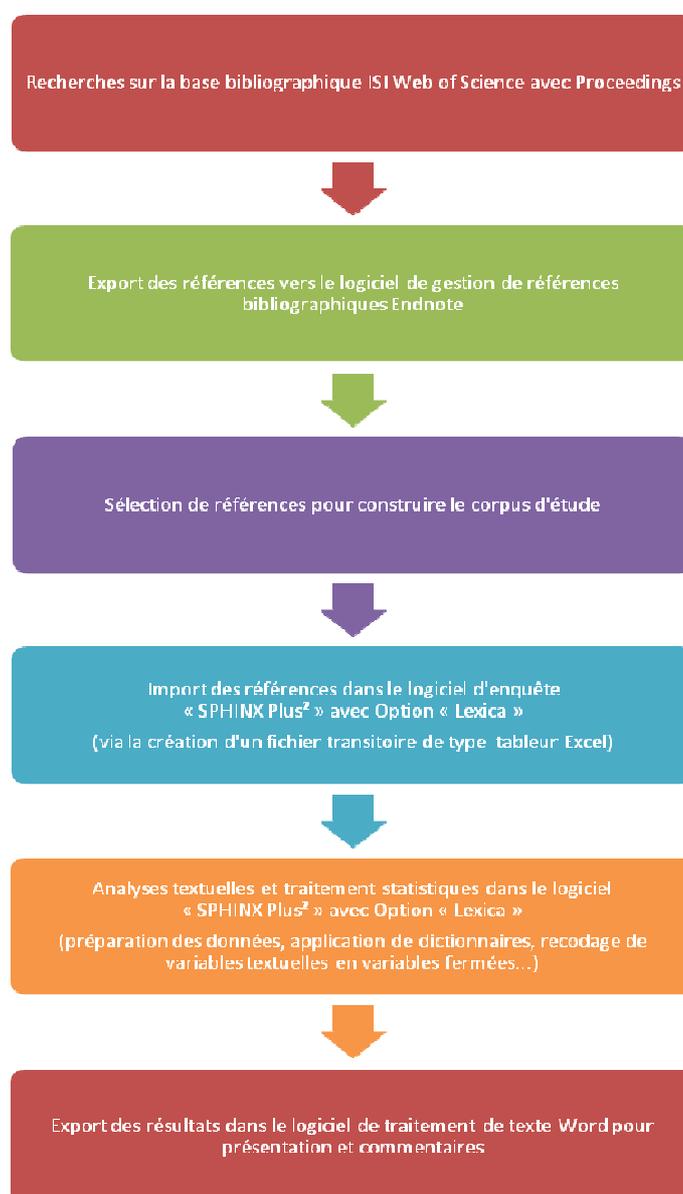


Figure 2 : Démarche méthodologique adoptée pour l'étude bibliométrique

2.1 Recherches dans la base ISI Web of Science

➤ Présentation de la base

Les recherches ont été faites sur la base de données bibliographiques « Science Citation Index Expanded », un des composants du « Web of Science » de l'Institute for Scientific Information (ISI)⁶⁹.

Cette base couvre plus de 6500 revues [Thomson Reuters, 2009], et fournit des informations publiées dans le monde entier (42 langues sont représentées, même si l'essentiel des écrits est en Anglais), dans le domaine des sciences (biologie/médecine, physique, chimie, mathématiques, ingénierie, etc.). Les articles sont de différentes natures (article, review, compte-rendu, éditorial, etc.).

Cette base bibliographique est très utilisée dans les études bibliométriques [Giovannini, 2010, Menéndez-Manjón, 2011, Hu, 2010, Multon, 2002, Archambault, 2003, Observatoire des Sciences et des Techniques (OST), 2004; Kostoff, 2006]⁷⁰.

Les bases d'extraits d'actes de congrès ou de conférence (Conference Proceedings Citation Index - Science (CPCI-S) et Conference Proceedings Citation Index - Social Sciences & Humanities (CPCI-SSH)) ont également été interrogées. Il nous a semblé pertinent d'élargir la recherche à ces bases de congrès dans la mesure où les références issues de telles bases constituent des sources d'information importantes [Lisée, 2008] et peuvent être incluses dans des études bibliométriques [Glänzel, 2006]. Ces bases de congrès permettent également d'augmenter le nombre de références, notamment sur des sujets plus récents qui n'auraient pas encore fait l'objet de communication sous forme d'article scientifique [Bar-Ilan, 2010].

➤ Principe de recherche

Les mots-clés identifiés autour du concept de boue ont été associés à ceux du concept de substance (produit, famille de produit, type de produit). **Les résultats de la recherche sont donc les références comprenant à la fois les mots-clés associés aux « boues » ET ceux associés aux « substances ».**

La liste des mots-clés utilisés dans le cadre de cette recherche est présentée dans le **Tableau 1**.

⁶⁹http://apps.webofknowledge.com/UA_GeneralSearch_input.do?product=UA&SID=Y2gamfDeL1eaNHOFH8c&search_mode=GeneralSearch

⁷⁰ Cependant, il faut noter qu'il existe deux versions, la base « Science Citation Index », et sa version étendue que nous utilisons ici (mais qui n'est pas toujours utilisée dans les études précédemment citées).

Tableau 1 : Liste des mots-clés utilisés dans le cadre de la recherche sur ISI Web of Science

Concept	Mots-clés associés
Boue	Sludge* Bio-solid* Biosolid*
Substance	Micropollutant*, "micro-pollutant**", microcontaminant*, "micro-contaminant**" Nanopollutant*, "nano-pollutant**", nanocontaminant*, "nano-contaminant**" "Dangerous substance**", "dangerous contaminant**", "dangerous pollutant**", "dangerous compound**" "Micro compound**", "micro-compound**", microcompound* "Hazardous substance**", "hazardous compound**", "hazardous pollutant**", "hazardous contaminant**" "Priority substance**", "priority pollutant**", "priority contaminant**", "priority compound**" "Emerging substance**", "emerging pollutant**", "emerging contaminant**", "emerging compound**" Alkylphenol*, nonylphenol*, octylphenol*, "nonyl-phenol**", "octyl-phenol**", "alkyl-phenol**", "APE", "APEs**", "APEO", "APEOs", "NP", "NPOH", "NP1EO", "NP2EO", "OP", "OPOH", "OP1EO", "OP2EO", bisphenol* Phthalate*, DEHP Dioxin*, furan*, PCDD* "Linear alkylbenzene sulfonate**", "LAS", "Linear alkyl sulfonate**", "linear alkylbenzene sulfonic acid**", "linear alkylbenzene sulphonic acid**" Organic Halogen Derivative Compound**", "adsorbable, ganic halogen**" "adsorbable, ganically bound halogen**", "AOX", "AOXs" Hormon*, endocrine* "Personal care**", "PPCP**" Drug*, pharmaceutic* "Diphenyl ether**", PBDE*, BDE*, "flame retardant**", hexabromocyclododecane, HBCD, HBCDD, "TBBP-A", TBBPA, bromobisphenol*, "bromo-bisphenol**", tetrabromobisphenol*, "tetra-Bromobisphenol**", "tetra-bromo-bisphenol**", "tetrabromo-bisphenol**" Organotin*, OTC*, tributyltin* Chloroanilin*, "chloro-anilin**" "Tributyl phosphate**", tributylphosphate*, "tributyl-phosphate**", TBP* Pentachlorophenol*, monochlorophenol*, triclosan* Nitrobenzene*, "nitro-benzene**" Hexachlorobutadiene*, HCBd PFOS*, SPFO*, perfluorinated*, perfluorooctane* "Chlorinated paraffin**", SSCP*, "polychlorinated paraffin**" Chlorobenzene*

Nota : les mots-clés associés aux ETM, HAP et PCB ont été exclus des équations de recherche dans la base de données ISI Web of Knowledge, compte tenu du nombre trop important de références obtenues.

Afin de limiter le bruit (c'est-à-dire le taux de références non pertinentes trouvées lors de la recherche) et après une première étude rapide des résultats, les documents dont le titre évoquait de manière évidente les concepts de boues industrielles, de bioréacteurs à membrane ou de boues activées ont été éliminés.

Les recherches sont effectuées sur le titre de l'article, le résumé, les mots clés des auteurs ainsi que sur les autres mots clés (les « Keywords Plus ») générés par le système en s'appuyant sur la liste des références citées dans l'article⁷¹.

L'étude a été limitée aux publications de la période 2000-2011 (cf. section 2.3).

⁷¹ Requête sur le champ « Topic » sur l'interface « ISI Web of Knowledge ».
INERIS – DRC-12-118975-02397A

2.2 « Nettoyage » du corpus de publications

La sélection manuelle est chronophage, mais permet de sélectionner les réponses pertinentes entrant dans la thématique d'étude. Cette opération s'est principalement basée sur le titre, ainsi que sur les résumés des articles lorsque cela était nécessaire.

A noter que les publications concernant les procédés de traitement des eaux usées (wastewater) ont été conservées dans la sélection lorsqu'elles présentaient également des teneurs en micropolluants dans les boues en sortie de STEU. Il se peut donc qu'il reste dans le corpus final des références qui ne concernent pas spécifiquement les boues.

2.3 Analyse sous « SPHINX Plus² » avec option « lexica » du corpus constitué

« SPHINX Plus² » est un logiciel d'enquête (génération de questionnaire, dépouillement et analyse des résultats), doté d'un module d'analyse textuelle (Option « Lexica »). Il permet de traiter des corpus variés, notamment des listes de références bibliographiques (déjà structurées). Ce logiciel est d'ailleurs utilisé pour différentes études bibliométriques [Giovannini, 2010, Leiser, 2009, Tatry, 2010a et 2010b].

La recherche s'est effectuée en juin 2011. La recherche initiale a abouti à 2 547 références. Après « nettoyage du corpus » par les experts du domaine, 762 références pertinentes ont été sélectionnées (742 articles et 20 extraits d'ouvrages), soit environ 30 % du corpus initial.

C'est sur ce corpus sélectionné de 762 références que les indicateurs quantitatifs suivants ont été recherchés :

- Production par date (année de publication), au niveau mondial et au niveau français,
- Production par pays (pays d'affiliation des auteurs),
- Analyse du corpus par procédés,
- Analyse du corpus par substances (par familles)

La méthode de comptage utilisée dans le cadre de cette étude est celle dite « whole counting » (appelée aussi « full counting », « integer counting » ou « normal counting ») : chaque objet d'étude (pays...) est crédité d'une unité s'il est retrouvé au moins une fois dans la métadonnée concernée (champs d'adresse, résumé...) des notices du corpus de références. Cette méthode est également utilisée dans d'autres études [European Commission, 2003].

3. LIMITES DE L'ÉTUDE

➤ Limites à propos des mots clés choisis

Il faut noter que la recherche sur la base de données a été effectuée sur une liste de substances définie, en ciblant les substances déjà retrouvées dans les boues. Cette étude nous permet alors d'analyser les travaux menés sur ces substances. Elle ne permet toutefois pas de cibler particulièrement les études réalisées sur d'autres substances (moins étudiées) et d'identifier les « sujets nouveaux ».

Par ailleurs, la recherche avec le nom des substances chimiques peut poser problème dans certains cas, car bien souvent une substance possède plusieurs noms (UIPAC, nom usuel, nom commercial, acronymes...).

Pour viser l'exhaustivité, il faudrait faire une recherche préalable de tous les synonymes et de leurs différentes écritures pour une même substance. De même, si l'on étudie une famille de produit, il faudrait prendre en compte les noms de cette famille ainsi que les noms de l'ensemble des composés regroupés sous cette famille.

➤ Bruit potentiel dans les recherches effectuées

Dans le cadre de nos recherches, c'est la présence d'une chaîne de caractères qui est détectée. Le résumé ou les mots-clés (notamment, pour la recherche sur ISI Web of Science, les mots-clés ajoutés par le système, de manière automatique, en se basant sur les références bibliographiques citées dans l'article, les « Keywords Plus ») peuvent mentionner un concept sans qu'il ne soit l'objet principal de

l'article (exemple : le terme « sludge » se retrouve dans les articles traitant du traitement des eaux par boues activées « activated sludge »).

Afin de limiter ce bruit (c'est-à-dire le taux de références non pertinentes trouvées lors de la recherche) et après une première étude rapide des résultats, les documents dont le titre évoquait de manière évidente les concepts de boues industrielles, de bioréacteurs à membrane ou de boues activées ont été éliminés.

➤ **Limites liées au processus de publication**

La procédure de publication peut être longue et un délai relativement important peut exister entre la soumission d'un article et sa publication en ligne ou dans la revue papier. Les travaux les plus récents ne sont donc pas toujours publiés sur ISI Web of Science.

➤ **Limites liées aux métadonnées décrivant les références**

Une limite de l'étude réside dans le fait que certains champs affiliations ne sont pas renseignés et l'information n'a donc pas pu être exploitée dans l'étude.

4. RESULTATS DE L'ANALYSE BIBLIOMETRIQUE

4.1 Analyse des publications mondiales

➤ **Production mondiale par année dans la thématique étudiée (Figure 3)**

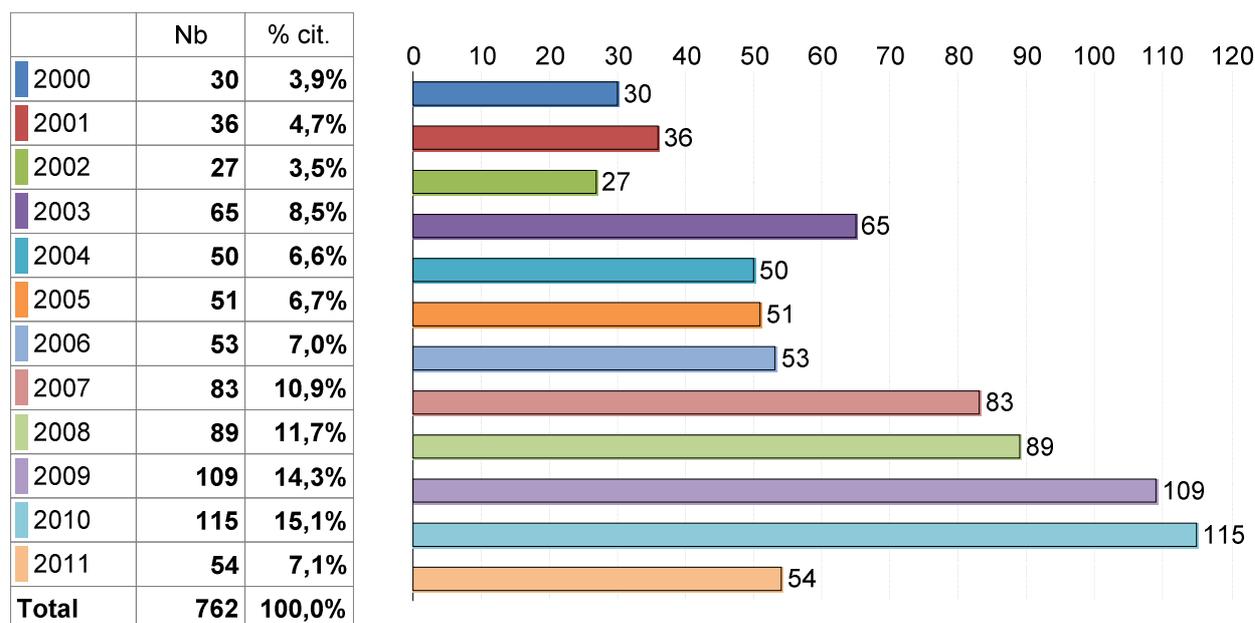


Figure 3 : Évolution annuelle du nombre de publications présentes dans le corpus sélectionné; sur la période 2000-2011

On constate une augmentation de la production au fil des années.

Notons que pour l'année 2011, le nombre de publications n'est pas comparable avec celui des autres années, les recherches sur la base ayant été menées en milieu d'année 2011. Il est donné à titre indicatif uniquement.

Cette augmentation du nombre de publications n'est pas forcément liée à une seule augmentation des études sur le sujet, mais elle peut aussi être associée à une augmentation du nombre d'articles indexés par la base bibliographique étudiée.

➤ **Production par pays (pays d'affiliation des auteurs)**

Le nombre de références produites par chaque pays a été mesuré, en comptant les références attribuables à chaque pays indiqué dans les adresses d'affiliation des auteurs des références.

Il y a 15 références pour lesquelles l'information n'est pas disponible, et qui ne sont donc pas prises en compte pour l'établissement du graphique ci-dessous (**Figure 4**).

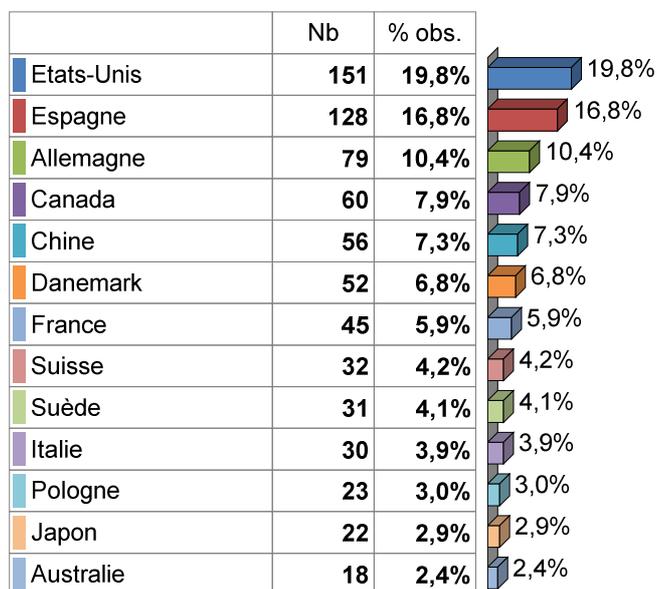


Figure 4 : Répartition par pays (pays des adresses d'affiliation des auteurs) des références du corpus sélectionné, pour les pays ayant publié 15 publications ou plus

La France est placée en 7^{ème} position. Notons que le résultat pour l'Espagne semble élevé comparativement aux autres pays.

➤ Analyse thématique

L'analyse thématique réalisée repose ici sur la recherche de listes de mots-clés ou d'expressions (regroupements de termes désignant un concept - une substance ou une famille de substance, un procédé... -) dans le titre, le résumé et les mots-clés auteurs (nous avons écartés les « KeywordPlus », trop générateurs de bruit).

• Analyse du corpus par procédés

La liste de procédés en annexe II a été recherchée dans le corpus des 762 références sélectionnées. Les résultats sont présentés ci-dessous (**Figure 5**).

Il faut noter qu'une même référence peut traiter de plusieurs procédés.

Nota : 536 références (70 %) ne contiennent pas de mots-clés issus de la liste ci-dessus. Rappelons en effet que les mots-clés recherchés dans la base de données ISI Web of Knowledge étaient associés aux « boues » ET aux « substances », mais non directement aux procédés.

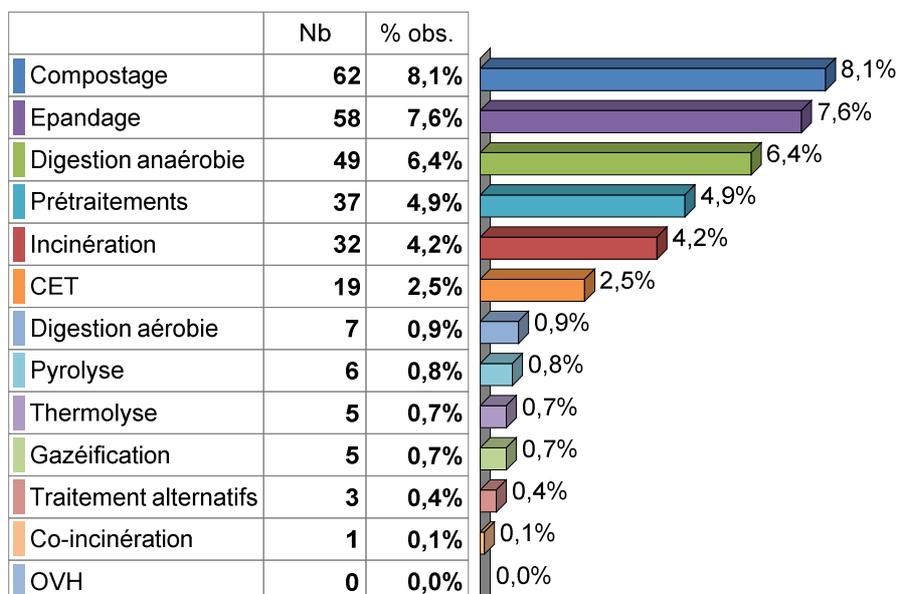


Figure 5 : Répartition selon les différents procédés identifiés des références du corpus sélectionné (une même référence pouvant traiter de plusieurs procédés)

On retrouve les trois voies principales de valorisation / élimination des boues (épandage, puis incinération et mise en décharge), ainsi que le compostage et la digestion anaérobie, procédés en progression en France, dans les procédés les plus étudiés. Suivent ensuite les technologies « émergentes » telles que la pyrolyse, la gazéification, l'OVH...

Ces résultats confirment les observations et conclusions tirées de l'analyse de la littérature grise (cf. section 6.8).

- **Analyse du corpus par substances**

La liste de substances en annexe II a été recherchée dans le corpus des 762 références sélectionnées. Les résultats sont présentés ci-dessous (**Figure 6**).

Rappel : la liste de substances recherchées a été définie en ciblant les substances déjà retrouvées dans les boues. Les résultats associés aux mots-clés « métaux » ont été exclus du corpus de résultats étudié compte tenu du nombre trop important de références obtenues.

Il faut noter qu'une même référence peut traiter de plusieurs substances.

82 références (11 %) ne contiennent pas de mots-clés issus de la liste ci-dessus. Rappelons en effet que des mots-clés génériques tels que « Micropollutant » ou « Dangerous substance » ont été recherchés dans la base de données ISI Web of Knowledge. Des références peuvent donc traiter des substances en général sans avoir cité nommément les substances ou familles de substances recherchées ci-dessous.

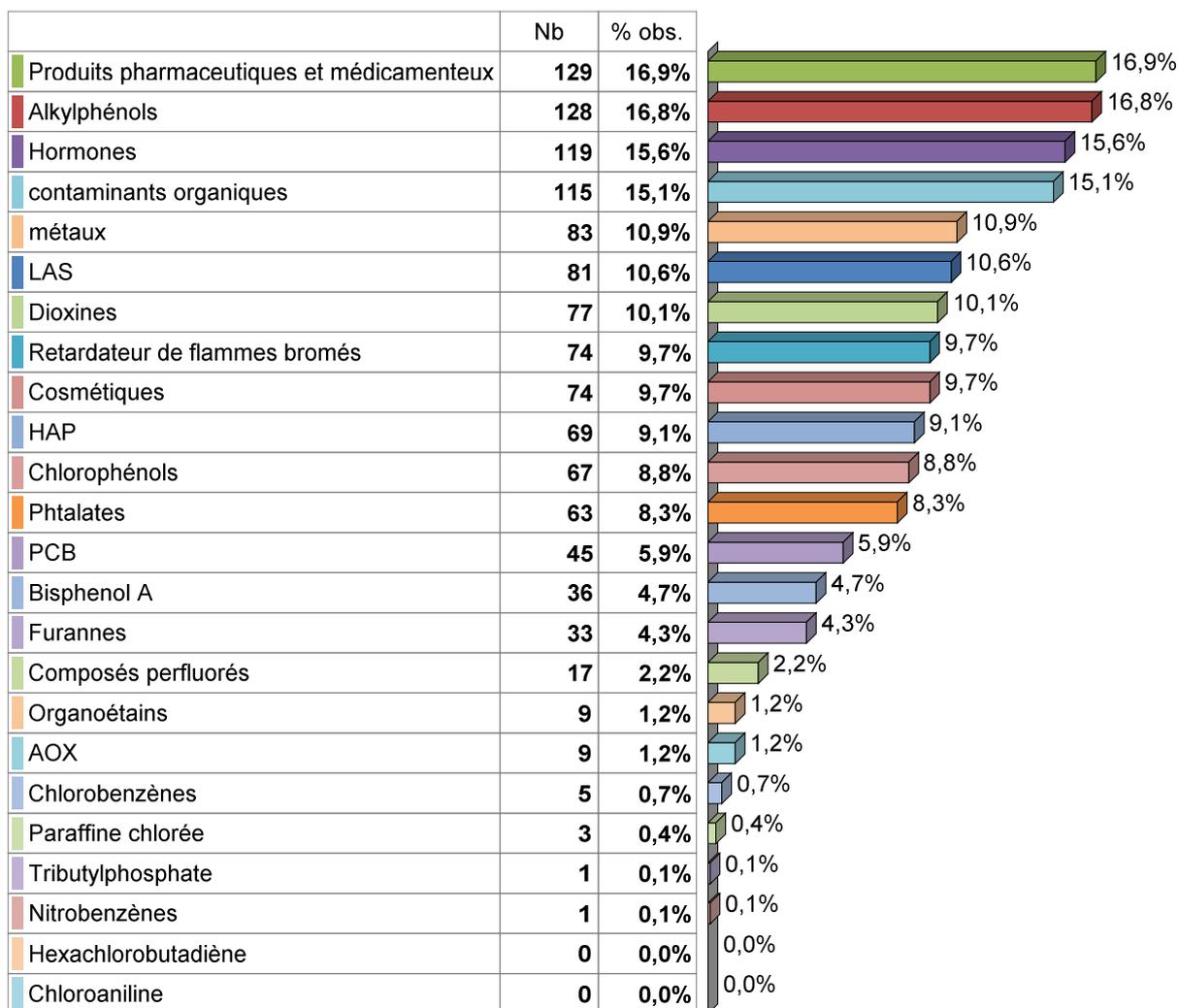


Figure 6 : Répartition par type de substance des références du corpus sélectionné (une même référence pouvant traiter de plusieurs substances)

Les résultats obtenus semblent assez surprenants. Notamment, les produits pharmaceutiques, hormones et alkylphénols apparaissent avant les HAP et PCB.

Ceci peut-être dû aux biais de l'analyse réalisée (notamment concernant les mots-clés choisis, cf. section sur les limites de l'analyse bibliométrique). De plus, rappelons que les mots-clés associés aux ETM, HAP et PCB ont été exclus des équations de recherche dans la base de données ISI Web of Knowledge, compte tenu du nombre trop important de références obtenues.

4.2 Analyse des publications françaises

L'analyse a porté sur les 45 publications françaises (de type « Article de périodique »), identifiées précédemment. Ce corpus de publications françaises étant très restreint, les résultats sont donnés à titre indicatif uniquement.

➤ Production française par année (Figure 7)

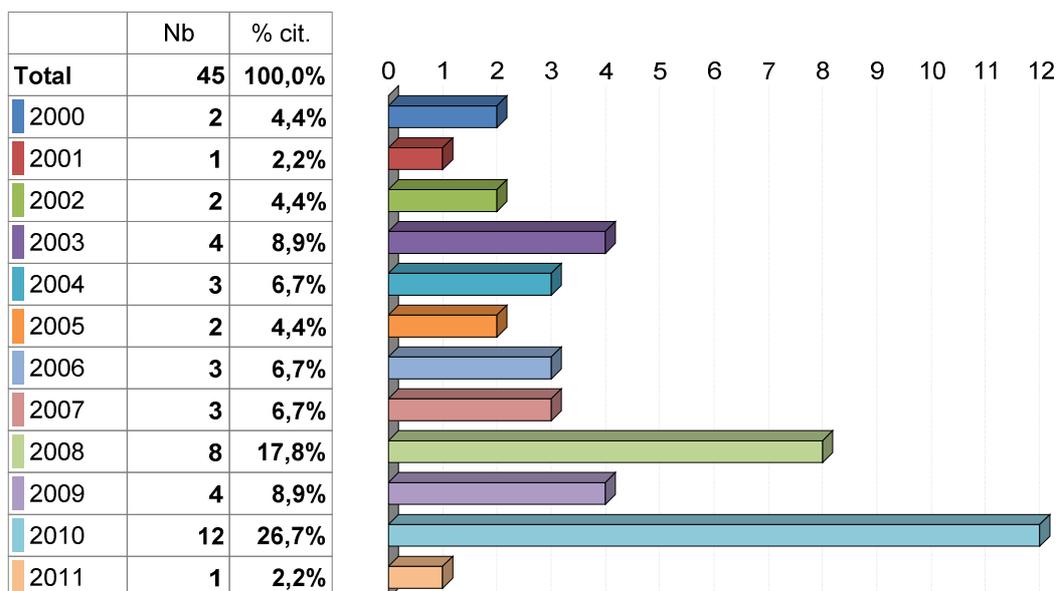


Figure 7 : Évolution annuelle du nombre de publications françaises (pays « France » dans les adresses d'affiliation des auteurs) présentes dans le corpus sélectionné, sur la période 2000-2011

On constate une augmentation globale de la production au fil des années (avec 2 pics en 2008 et 2010).

Notons que pour l'année 2011, le nombre de publications n'est pas comparable avec celui des autres années, les recherches sur la base ayant été menées en milieu d'année 2011. Il est donné à titre indicatif uniquement.

Cette augmentation du nombre de publications n'est pas forcément liée à une seule augmentation des études sur le sujet, mais elle peut aussi être associée à une augmentation du nombre d'articles indexés par la base bibliographique étudiée.

5. PERSPECTIVES

Recherche de l'évolution des thématiques et des thématiques émergentes

Une des poursuites de ce travail pourrait être d'étudier les différents termes utilisés, et notamment les mots-clés choisis par les auteurs, pour voir si d'autres thématiques émergent (procédés ou substances), mais aussi pour analyser l'évolution de ces thématiques au fil des ans.

Extension du corpus

Par ailleurs, d'autres références, issues d'autres bases bibliographiques, pourraient être incluses à ce genre d'étude, de même que les autres types de documents (ouvrages, thèses, rapports), pourraient être utilisés pour l'étude des thématiques, afin de compléter l'analyse des émergences.

De même, outre les types de documents, il pourrait être intéressant d'inclure les références en langue française, la base ISI couvrant davantage les revues anglo-saxonnes (malgré une ouverture croissante à d'autres langues).

Analyse de l'impact

La qualité et l'impact des références n'ont pas été étudiés ici. Nous aurions pu prendre en compte le facteur d'impact des revues dans lesquelles les articles étudiés sont parus, ou le nombre de citations (malgré les biais de ce genre d'étude : auto-citation, citation de références pour les contredire, nombre moins important de citation des articles les plus récents...).

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES (DE L'ANNEXE I)

- Archambault, E., Côté, G. et Gingras, Y. (2003). Analyse bibliométrique de la recherche sur la santé mentale en milieu de travail au Canada : 1991-2002. Montréal (Canada) Observatoire des Sciences et des technologies (CIRST).
- Besagni, D., François, C., Hörlesverger, M., Roche, I. et Schiebel, E. (2009). Les émergences technologiques dans le domaine des dispositifs optoélectroniques : identification et caractérisation. VSST 2009. Nancy : France: 17 p.
- Besagni, D., François, C. et Roche, I. (2007). Détection de techniques prometteuses à partir de méthodes bibliométriques. CIDE 10. Nancy (France): 5 p.
- European Commission (2003). Third european report on science and technology indicators 2003 : Towards a knowledge-based economy. European Commission.
- Gauffriau, M., Larsen, P., Maye, I., Roulin-Perriard, A. et von Ins, M. (2008). Comparisons of results of publication counting using different methods. *Scientometrics*, 77(1), 147-176.
- Giovannini, F., Diane, F. et Gaillard, M. (2010). Les recherches sur l'eau et les milieux aquatiques en France : analyse bibliométrique de la production scientifique 2002-2008. Antony CEMAGREF.
- Glänzel, W., Schlemmer, B., Schubert, A. et Thijs, B. (2006). Proceedings literature as additional data source for bibliometric analysis. *Scientometrics*, 68(3), 457-473.
- Grande, R. et Maye, I. (2007). Analyse bibliométrique de la recherche scientifique en Suisse. Berne (Suisse) Secrétariat de l'Etat à l'éducation et à la Recherche (SER).
- Hu, J., Ma, Y. W., Zhang, L., Gan, F. X. et Ho, Y. S. (2010). A historical review and bibliometric analysis of research on lead in drinking water field from 1991 to 2007. *Science of the Total Environment*, 408(7), 1738-1744.
- Larsen, P. (2008). The state of the art in publication counting. *Scientometrics*, 77(2), 235-251.
- Leiser, H., Aventurier, P., Fournier, D., Dosba, F. et Jeannequin, B. (2009). Tools for producing indicators from a bibliometric study of scientific production: the case of fruit and vegetable publications by the French National Institute for Agricultural Research (INRA). *Fruits*, 64(5), 305-312.
- Lisée, C., Larivière, V. et Archambault, É. (2008). Conference proceedings as a source of scientific information: A bibliometric analysis. *Journal of the American Society for Information Science and Technology*, 59(11), 1776-1784.
- Menéndez-Manjón, A., Moldenhauer, K., Wagener, P. et Barcikowski, S. (2011). Nano-energy research trends: bibliometrical analysis of nanotechnology research in the energy sector. *Journal of Nanoparticle Research*, 13(9), 3911-3922.
- Multon, J.-L., Branca-Iacombe, G. et Doussset, B. (2002). Analyse bibliométrique des collaborations internationales de l'INRA. 9^{ièmes} journées d'études sur les systèmes d'information élaborée : Bibliométrie - Informatique stratégique - Veille technologique. INRA. Ile Rousse, Corse, France.
- Observatoire des Sciences et des Techniques (OST) (2004). Analyse bibliométrique de la recherche sur le cancer au cours de la décennie 90 (Etude commandité par l'INSERM). Etudes thématiques - La recherche sur le cancer. Paris Observatoire des Sciences et des Techniques (OST).
- Roche, I., François, C. et Besagni, D. (2007). Les méthodes bibliométriques en soutien d'une approche expert dans la détection de technologies prometteuses. VSST 2007. Marrakech (Marocco): 12 p.
- Rostaing, H. (1993). Veille Technologique et Bibliométrie : Concepts, Outils, Applications, UNIVERSITE DE DROIT ET DES SCIENCES D'AIX-MARSEILLE - Faculté des Sciences et Techniques de Saint Jérôme.
- Rostaing, H. (1996). Des outils au service de la veille technologique, Sciences de la Société / CRRM.
- Tatry, M.-V., Fournier, D. et Jeannequin, B. (2010). Analyse bibliométrique des publications scientifiques mondiales sur les fruits et légumes (F&L) au cours de la période 2000-2009 : premiers résultats. *Innovations Agronomiques*, 9, 115-126.

- Tatry, M.-V., Fournier, D. et Moulliet, C. (2010). Analyse bibliométrique des publications scientifiques vigne et vin sur la période 1999-2008 (Rapport de fin d'étude). INRA ; Institut Français de la Vigne et du Vin (IFV).
- Thomson Reuters. (2009). "Web of Science Help : Web of Science Databases." Retrieved 12/09/2011, 2011, from http://images.webofknowledge.com/WOK46/help/WOS/h_database.html.
- Wang, M. H., Yu, T. C. et Ho, Y. S. (2010). A bibliometric analysis of the performance of Water Research. *Scientometrics*, 84(3), 813-820.
- Yi, H., Ao, X. et Ho, Y.-S. (2008). Use of citation per publication as an indicator to evaluate pentachlorophenol research. *Scientometrics*, 75(1), 67-80.
- Zhang, G. F., Xie, S. D. et Ho, Y. S. (2010). A bibliometric analysis of world volatile organic compounds research trends. *Scientometrics*, 83(2), 477-492.

Annexe II : Listes des « procédés » et « substances » recherchés dans le corpus de références bibliographiques dans le cadre de l'analyse bibliométrique

Les listes de « procédés » et « substances » suivantes ont été recherchées dans le corpus de références bibliographiques dans le cadre de l'analyse bibliométrique.

Remarque : le signe égal (« = ») indique ici le regroupement effectué, il n'indique pas de vraie synonymie. Le premier terme de chaque ligne correspond au titre retrouvé dans les graphiques de résultats de l'analyse bibliométrique (cf. Annexe I, **Figure 5** et **Figure 6**). Les autres termes sont les termes recherchés dans les titres, résumés et mots-clés auteurs des références bibliographiques.

Liste des « procédés »

- Prétraitements = conditioning = stabilization = stabilizations = thickening = liming = lime = dehydration = limes = dehydrations = drying
- Digestion aérobie = aerobic digestion = aerobic digester = aerobic digesters = aerobic digester = aerobic digestors
- Digestion anaérobie = anaerobic digestion = methanation = biogas = anaerobic digester = anaerobic digesters = anaerobic digester = anaerobic digestors
- Pyrolyse = pyrolysis
- Incinération = incineration = incinerations = incinerator = incinerators
- Co-incinération = co-incineration = co-incineration = co-incinerations = co-incinerations
- Thermolyse = thermal destruction = thermal decomposition = thermal degradation = thermal destructions = thermal decompositions = thermal degradations = thermolysis
- OVH = wet oxidation = wet oxidations = wet-oxidation = wet-oxidations
- Gazéification = gasification = gasifications
- Traitements alternatifs = reed bed = reed beds = reed-bed = reed-beds
- Compostage = composting = compost = composts = composter = composters
- CET = waste dumping = waste dump = waste dumps = waste-dumping = waste-dump = waste-dumps = land fill = land fills = land-fill = land-fills = landfill = landfills = land disposal = land disposals = waste disposal = waste disposals = land-disposal = land-disposals = waste-disposal = waste-disposals
- Épandage = land application = land applications

Liste des « substances »

- HAP = PAH = Polycyclic aromatic hydrocarbon = Polycyclic aromatic hydrocarbons = PAHs = poly-aromatic hydrocarbon = poly-aromatic hydrocarbons = polynuclear aromatic hydrocarbons = polynuclear aromatic hydrocarbon
- PCB = PCB = PCBs = Polychlorinated biphenyls = Polychlorinated biphenyl = Poly-chlorinated biphenyl = Poly-chlorinated biphenyls = Polychlorinated-biphenyls = Polychlorinated-biphenyl
- Phtalates = phthalate = phtalates = DEHP = DEHPs
- Dioxines = dioxin = dioxins = -dioxin = -dioxins = PCDD = PCDDs = PCDD/PCDF = PCDD/PCDFs
- Furannes = furan = furans = PCDF = PCDFs = PCDD/PCDF = PCDD/PCDFs
- LAS = linear alkylbenzene sulfonate = linear alkylbenzene sulfonates = linear alkyl sulphonate = linear alkyl sulphonates = linear alkylbenzene sulfonic acid = linear alkylbenzene sulfonic acids = linear alkylbenzene sulphonic acid = linear alkylbenzene sulphonic acid = LAS
- AOX = organic Halogen Derivative compound = organic Halogen Derivative compounds = adsorbable organic halogen = adsorbable organically bound halogen = adsorbable organic halogen = adsorbable organically bound halogens = AOX
- Produits pharmaceutiques et médicamenteux = drug = drugs = pharmaceutical = pharmaceuticals = pharmaceutical = pharmaceuticals = PPCP = PPCPs = antibiotic = antibiotics
- Cosmétiques = personal care = PPCP = PPCPs = musk

- Hormones = hormone = hormones = hormonal = endocrine = endocrine-disrupter = endocrine-disrupters = endocrine-disruptor = endocrine-disruptors = endocrine-disrupting = endocrine-disrupting
- Organoétains = organotin = organotins = OTC = tributyltin = tributyltins
- Chloroaniline = chloroanilin = chloroanilins = chloro-anilin = chloroanilins
- Composés perfluorés = PFOS = perfluorinated = perfluorooctane = perfluorosulfonate = perfluorosulfonates = perfluorosulphonate = perfluorosulphonate = PFOA = PFOAs = perfluorooctanesulphonates = perfluorooctanesulphonate = perfluorooctanesulfonate = perfluorooctanesulfonates
- Chlorobenzènes = chlorobenzene = chlorobenzenes = dichlorobenzene = dichlorobenzenes = trichlorobenzene = trichlorobenzenes = tetrachlorobenzene = tetrachlorobenzenes = pentachlorobenzene = pentachlorobenzenes = hexachlorobenzene = hexachlorobenzenes
- Retardateur de flammes bromés = flame retardant = flame retardants = PBDE = hexabromocyclododecane = HBCD = TBBP = BDE = bromobisphenol = TBBPA = Diphényl-éther = diphenyl ether = diphenyl ethers
- Alkylphénols = alkylphenol = alkylphenols = nonylphenol = nonylphenols = octylphenol = octylphenols = nonyl-phenol = nonyl-phenols = octyl-phenol = octyl-phenol = APE = APEO = NP = NPOH = NP1EO = NP2EO = OP = OPOH = OP1EO = OP2EO
- Bisphénol A = bisphenol = bisphenol-A = BPA
- Tributylphosphate = TBP = Tributyl phosphate = tributyl phosphates = tributylphosphate = tributylphosphates = tributyl-phosphate = tributyl-phosphates
- Chlorophénols = pentachlorophenol = pentachlorophenols = monochlorophenol = monochlorophenols = triclosan
- Nitrobenzènes = nitrobenzene = nitrobenzenes = nitro-benzene = nitro-benzenes
- Hexachlorobutadiène = Hexachlorobutadiene = HCBd
- Paraffine chlorée = chlorinated paraffin = chlorinated paraffins = SSCP = polychlorinated paraffin = polychlorinated paraffins
- Métaux = metal = metals = metallic = organo-metal = organo-metals
- Contaminants organiques = organic contaminant = organic contaminants = organic pollutant = organic pollutants = organic chemical = organic chemicals = organic substance = organic substances = organic compound = organic compounds = organic residue = organic residues

Annexe III : Questionnaire élaboré pour les entretiens

Panorama des projets de recherche et perspectives sur la problématique des micropolluants dans les boues d'épuration des eaux usées urbaines

Interlocuteur	
Coordonnées (tél., mail)	
Affiliation / Organisme	
Date	
Autres personnes du groupe	
Activités principales du groupe (thématiques)	

➤ **Projets en cours** et/ou **Projets achevés** sur la problématique des micropolluants dans les boues auxquels vous participez / avez participé ou dont vous avez connaissance (*Plusieurs projets peuvent être renseignés*) :

- **Nom** du projet : **Dates**, **Financier(s)**, **Partenaire(s)**, **Contexte**, **Objectifs**, **Résultats**
- **Valorisation des résultats** de l'étude : rapports, articles, publications, autres ? Sont-ils accessibles / diffusables ?
- Merci de préciser les **thématiques principales** de chaque projet parmi :
 - Analyse et mesures (Caractérisation des boues, occurrence et teneur en micropolluants)
 - Procédés de traitement / valorisation des boues
 - Transferts des micropolluants dans l'environnement (après épandage de boues)
 - Impacts / Risques pour l'environnement
 - Impacts / Risques pour la santé humaine
 - Autres (merci de préciser)

➤ **Perspectives**

- Selon vous, quels **axes de recherche** serait-il essentiel de développer dans les années à venir ?
- Quels sont selon vous les **besoins** / manques identifiés :
 - **Connaissances** supplémentaires à acquérir ?
 - **Verrous scientifiques** à lever ?
 - **Outils** à développer ? Si oui, de quel type et pour répondre à quel besoin ?
- Selon vous, quelles **évolutions réglementaires** serait-il pertinent d'apporter dans les années à venir sur la problématique des micropolluants dans les boues ?
- « **Focus substances** » : D'après vous, quelles sont les substances (hors substances réglementées dans les boues) sur lesquelles des travaux supplémentaires seraient nécessaires ?
- « **Focus développement filières de valorisation** » : D'après vous, quelles sont les filières de traitement / valorisation des boues qui nécessiteraient d'être développées, et sur lesquelles des travaux seraient nécessaires ?

Annexe IV : Modes de production des différents types de boues et présentation de la filière épandage

La figure 8 propose une synthèse des différents modes de production des différents types de boues.

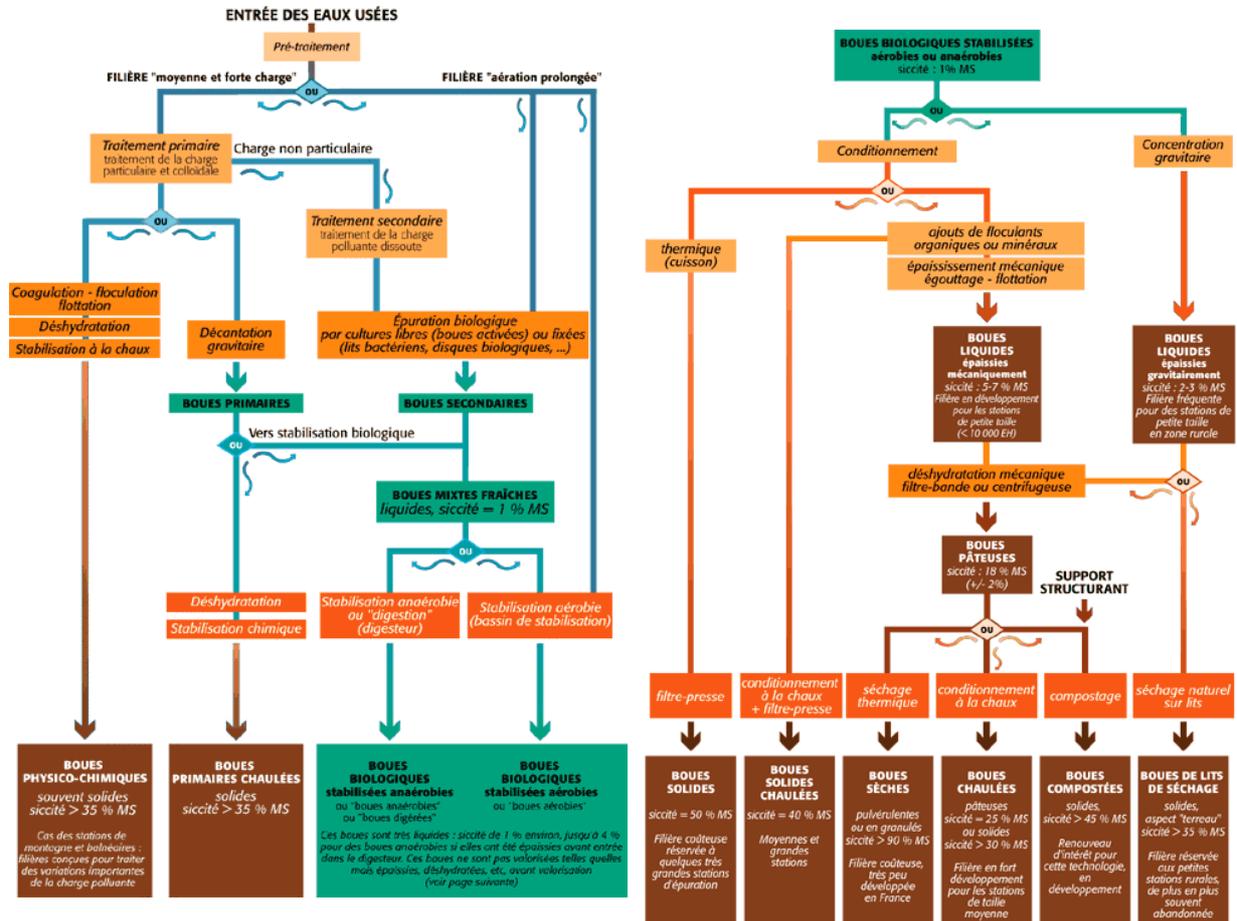


Figure 8. Les différents types de boues produits en France [ADEME, 2001].

Note : les « boues primaires » sont issues de l'étape de traitement primaire des eaux usées (décantation), les « boues secondaires » (également appelées « boues biologiques » ou « boues activées ») sont issues du traitement secondaire biologique des eaux usées. Les boues primaires et secondaires peuvent être mélangées, et sont alors appelées « boues mixtes ».

Un schéma de la filière épandage est présenté dans la **Figure 9** ci-dessous.

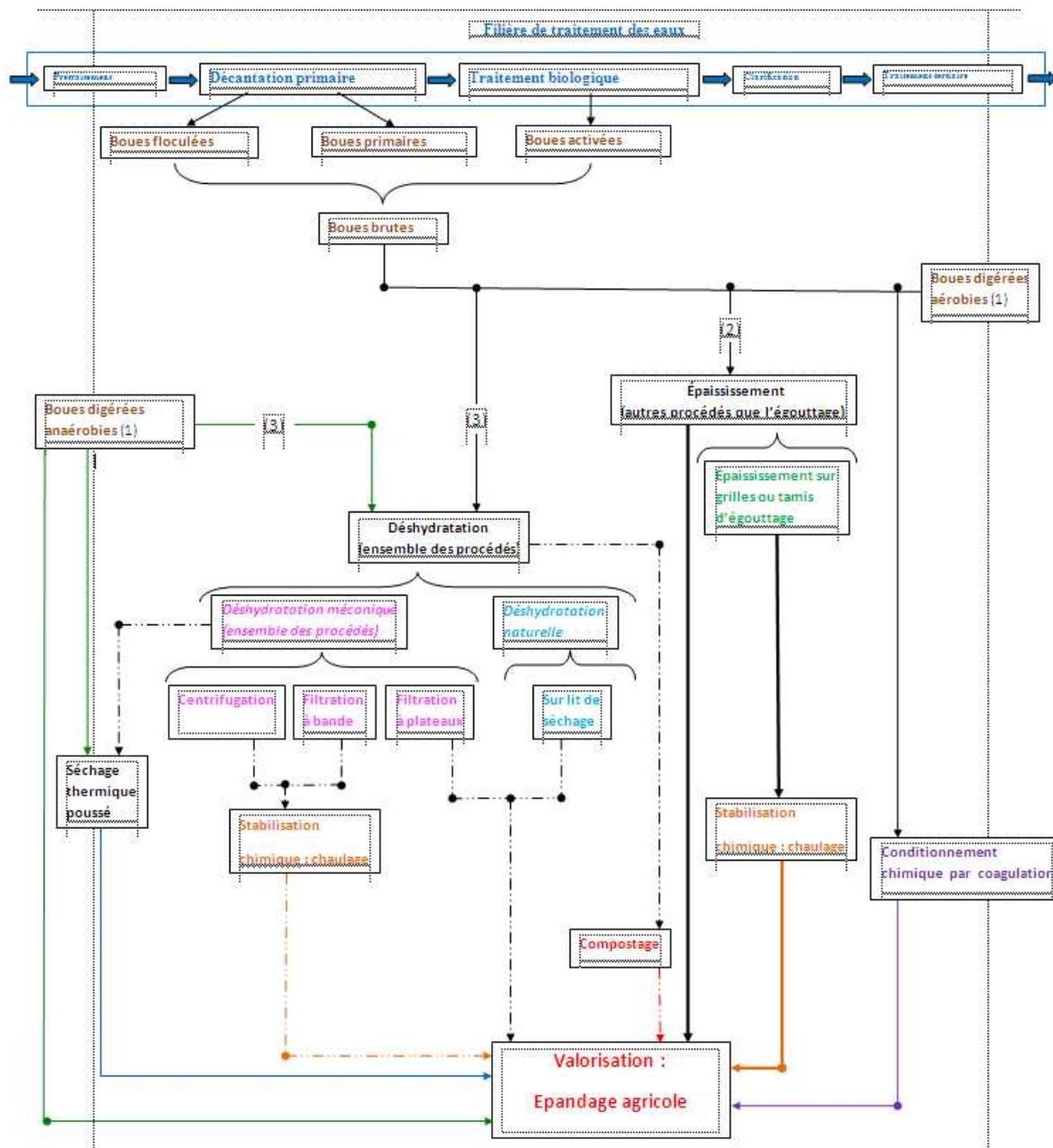


Figure 9 : Schéma de la filière épandage

LEGENDE



Filière de traitement des eaux usées.



Destination des boues brute et des boues digérées aérobies : déshydratation, épauilissement, ou conditionnement chimique par coagulation.



Épandage des boues brutes et des boues digérées aérobies épauillées.



Épandage après chaulage des boues brutes et des boues digérées aérobies, épauillées par grilles.



Épandage des boues brutes et des boues digérées aérobies après conditionnement chimique par coagulation.



Destination des boues digérées anaérobies : déshydratation (puis éventuellement compostage), séchage thermique ou épandage.

-  Boues déshydratées : séchage thermique (boues déshydratées par voie mécanique), chaulage (boues déshydratées par filtration à bande ou centrifugation), compostage (tout type de boues déshydratées) ou épandage (boues déshydratées par filtration à plateaux ou sur lit de séchage).
-  Épandage de boues séchées par voie thermique poussée.
-  Épandage après chaulage de tout type de boues déshydratées par filtration à bande ou centrifugation.
-  Épandage des boues compostées.

⁽¹⁾ *Procédés de digestion des boues issues des eaux usées urbaines non détaillés ici.*

⁽²⁾ *Procédés d'épaississement des boues issues des eaux usées urbaines non détaillés ici.*

⁽³⁾ *Procédés de déshydratation des boues issues des eaux usées urbaines non détaillés ici.*

Annexe V : Impacts et évaluation des risques sanitaires (INERIS, 2007)

En 2007, dans le cadre d'une convention entre l'ADEME, le SYPREA, la FP2E et l'INERIS, ce dernier a été sollicité pour élaborer une méthodologie générale pour évaluer les risques sanitaires liés aux substances chimiques ainsi qu'aux agents pathogènes, potentiellement engendrés par l'épandage des boues urbaines et industrielles. Seul le premier aspect est abordé ici (les agents pathogènes n'étant pas inclus dans le périmètre de la présente étude).

Cette méthodologie a été développée dans le respect des principes généraux d'évaluation des risques définis par l'US-EPA et déjà utilisés dans d'autres méthodologies françaises (demande d'autorisation d'exploiter une installation classée...).

Elle comporte une étape de détermination des caractéristiques initiales du site, suivie par les quatre étapes classiques de l'évaluation des risques sanitaires : l'évaluation des effets toxiques des substances choisies, la sélection de valeurs toxicologiques de référence, l'évaluation de l'exposition, la quantification du risque.

Cette méthodologie est fondée sur une approche spécifique à chaque site. L'évaluateur de risque doit d'abord évaluer les propriétés du site et les méthodes d'épandage pour mener une quantification du risque pertinente. Parmi ces caractéristiques, la composition des boues (le type de substances et les concentrations), les caractéristiques des sols (texture, pH...), les pratiques agricoles (cultures, distribution spatiale et temporelle, application de boues...) doivent être correctement connues pour définir quelles valeurs de certains paramètres seront choisies pendant l'étape de quantification. Cette première étape débouche sur la définition d'un schéma conceptuel décrivant les substances, les voies d'exposition et les récepteurs à considérer pour la quantification des risques.

Les impacts toxicologiques doivent être décrits pour chaque effet des substances étudiées (effets à seuil et sans seuil). Une description complète des différents organes sur lesquels les substances ont un effet doit être proposée. Quand elles sont disponibles, les données quantitatives des effets des substances sur l'être humain seront choisies parmi les valeurs disponibles dans les bases de données toxicologiques internationales. Ces valeurs de référence toxicologiques (VTR) seront utilisées pour la quantification de risque.

L'évaluation de la dose d'exposition (DJE) pour chaque récepteur et chaque voie d'exposition exige l'estimation : de la concentration en substances dans le sol sur lequel la boue est épandue, des valeurs de paramètres intervenant dans le transfert des substances vers l'être humain (par le contact direct ou indirect) et des valeurs de paramètres concernant l'ingestion quotidienne d'aliments et les fréquences d'exposition pour chaque récepteur.

Les récepteurs et les voies d'exposition qui sont considérés dans cette méthodologie par l'évaluateur de risques sont décrits ci-dessous.

Substances chimiques : récepteurs et voies d'exposition

	Agriculteurs	Riverains	Population générale
Contact direct			
ingestion de sol	x	x	
inhalation de poussière	x	x	
Contact indirect			
consommation de produits agricoles	x	x	x

Dans les scénarios prédictifs, la concentration de chaque substance doit être calculée théoriquement en considérant les niveaux de bruit de fond dans les sols et une dilution des boues dans les sols agricoles (fonction de la densité du sol et de la profondeur de labour). L'exposition à l'alimentation générale (non concernée par l'épandage de boues) est aussi estimée pour comparer ces différents niveaux de risque.

L'étape finale permet de calculer, pour les effets à seuil et sans seuil de chaque substance, le risque pour chaque voie d'exposition identifiée.

Afin de vérifier l'applicabilité ou la faisabilité de cette méthodologie, celle-ci a été appliquée sur un cas concret. Il s'agissait d'évaluer les risques sur la santé liés aux substances chimiques sur un plan d'épandage de boues urbaines, pour lequel les terrains étaient entièrement consacrés à la culture de céréales.

Onema
Hall C – Le Nadar
5 square Félix Nadar
94300 Vincennes
01 45 14 36 00
www.onema.fr

Ineris
Parc Technologique Alata
BP 2
60550 Verneuil-en-Halatte
03 44 55 66 77
www.ineris.fr