

# VALORISATION DES BOUES DE STEP ET SECURITE SANITAIRE

*Des vertus et des risques....*



Jean Duchemin  
Agence de l'Eau  
Seine Normandie

## **Vertus des boues de STEP et bon sens écologique**

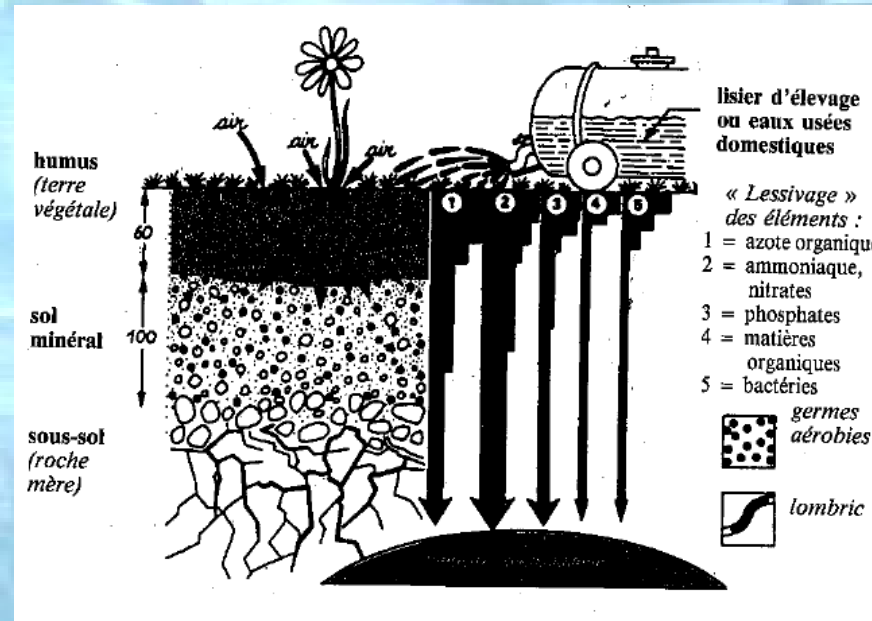
**Rendre à la terre ce qui en vient, et garder diffus ce qui est diffus**

**Issues à plus de 90% des déchets organiques, animaux et végétaux, il est naturel que les boues d'épuration domestiques et agro-alimentaires restituent au sol :**

- le carbone organique (30 à 50 % de leur M.S.),**
- l'azote, le phosphore et la potasse qu'en ont extrait leur matières premières (5 à 8 % de leur teneur en M.S)**

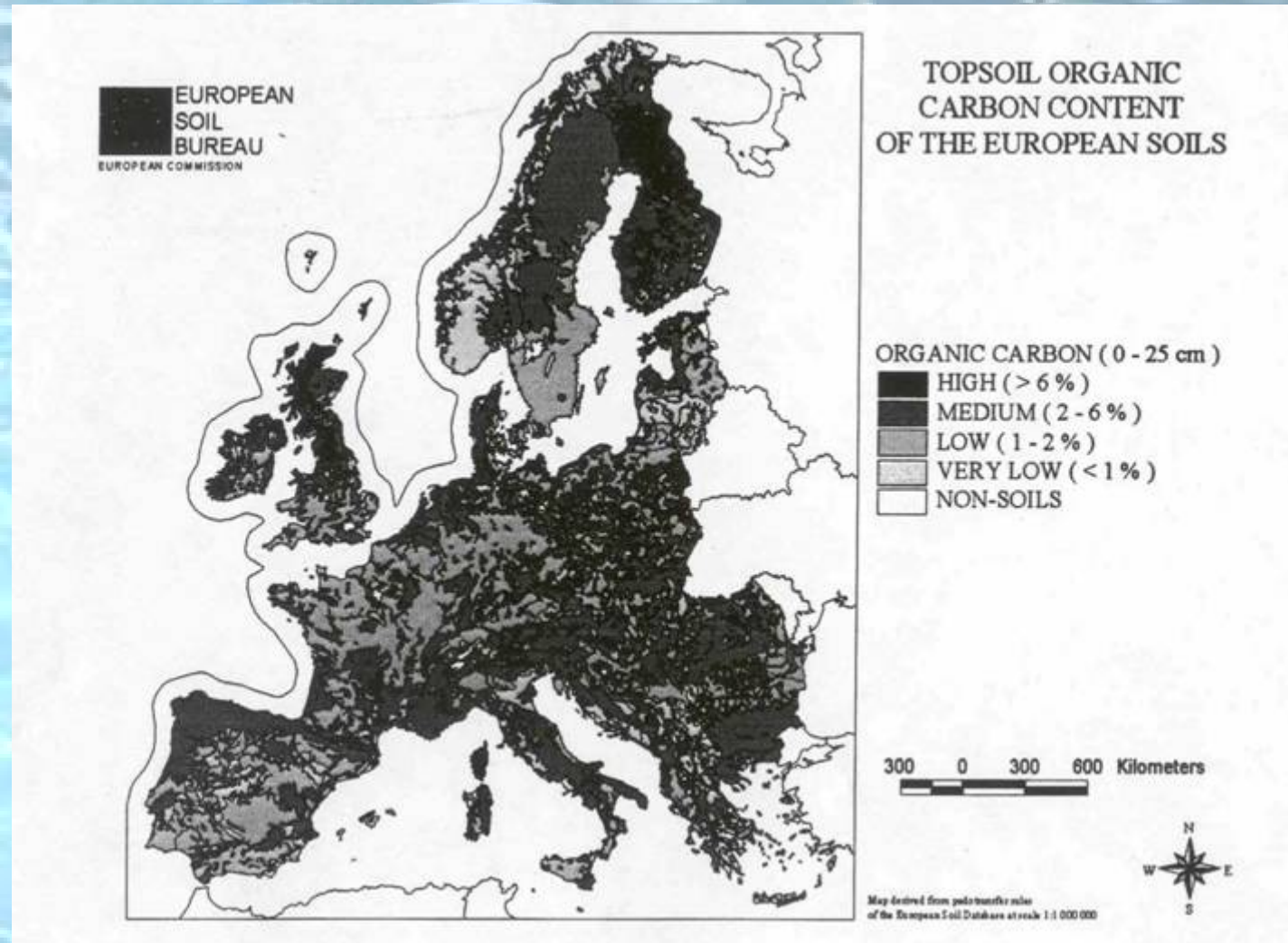
- **Matières Organiques et Humus :**

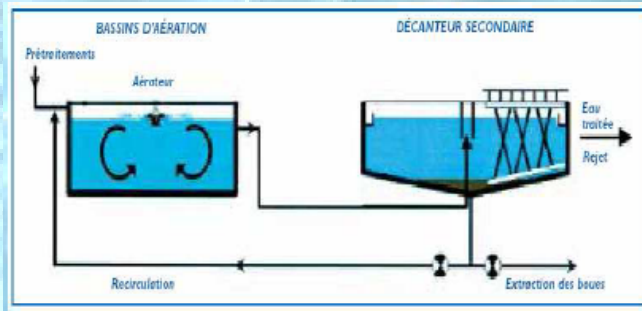
favorables à la structure des sols, à la rétention de son humidité, au stockage des nutriments, à l'activité biologique des sols, au blocage (adsorption) des micropolluants qui pourraient percoler avec l'eau.



# Humus des sols agricoles d' Europe

- **Culture intensive, engrais chimiques, pesticides, labours profonds, exportation des pailles : la teneur en humus des sols est menacée**  
(souvent < 1,5 % , autrefois > 3-4 %).
- > **L 'épandage de boues, comme l 'enfouissement de pailles, fumiers ou composts, peut fournir des matières organiques pour le reconstituer.**

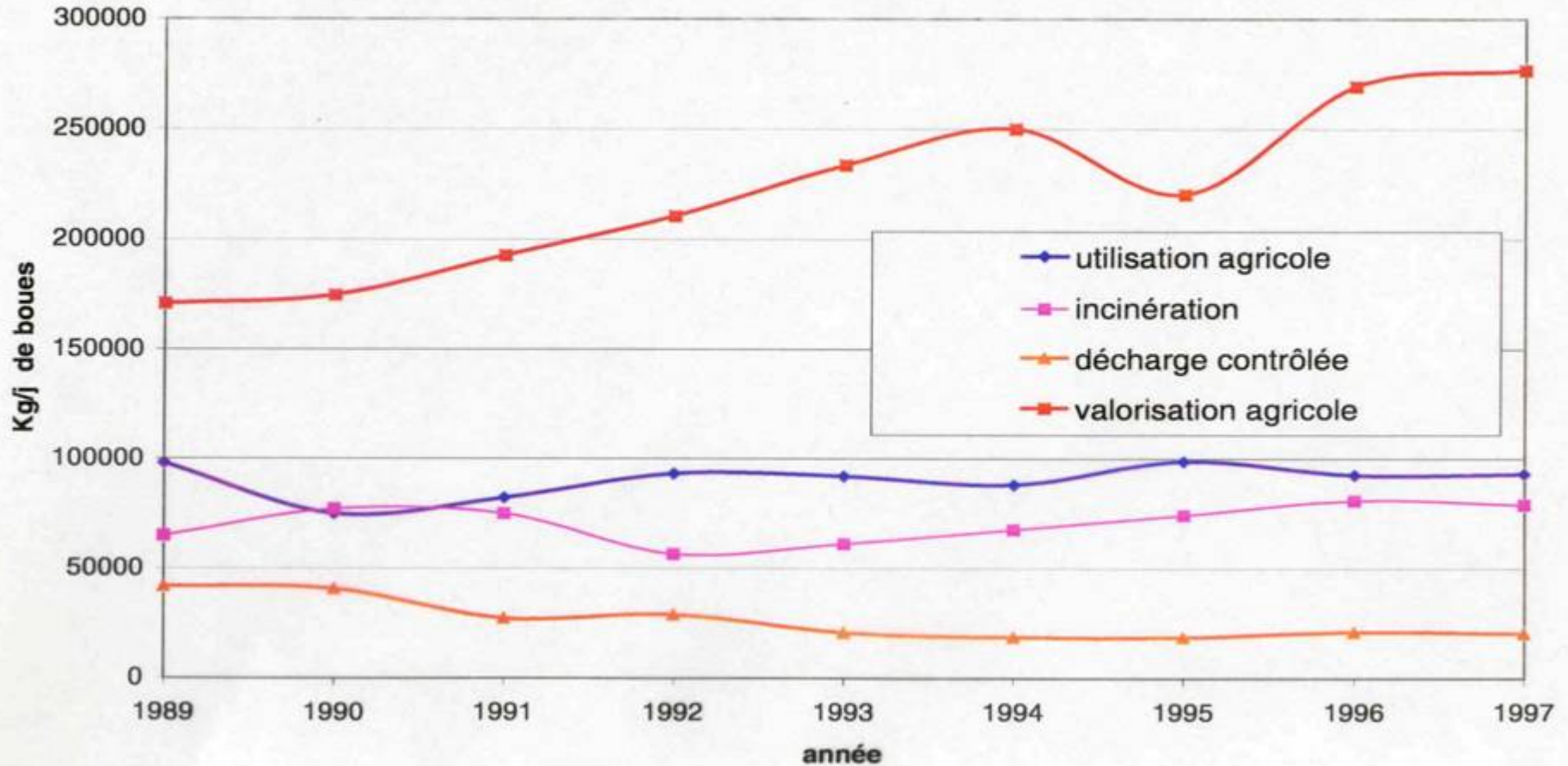




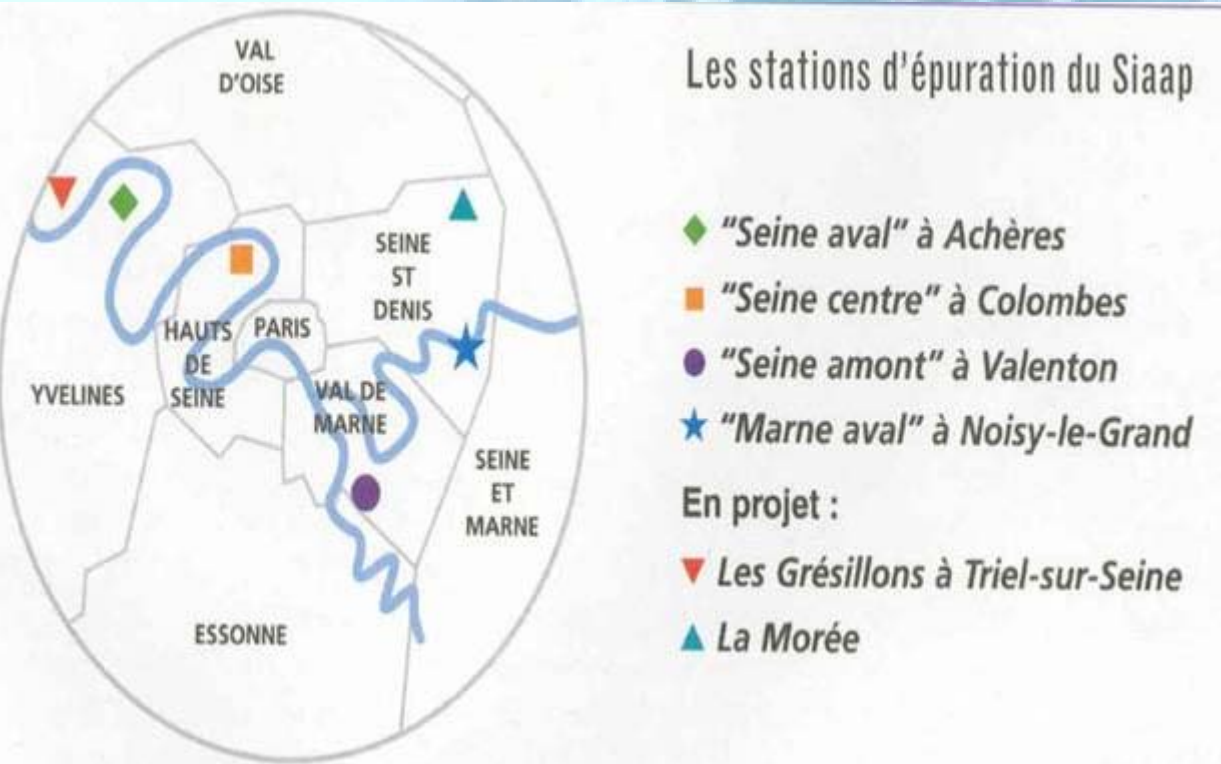
- Seine Normandie : 2 200 STEP, 220 000 T de boues MS (pour 4 millions de tonnes d 'engrais minéraux et > 50 millions de tonnes de déjections animales, en matière humide, soit plusieurs millions de T en MS).
- La Seine et Marne reçoit 32 000 tonnes de boues (M.S), l 'Eure 20 000 tonnes et la Marne 18 000 tonnes : 40% des boues du bassin épanchés dans ces 3 départements.
- Les apports moyens en N et P des boues sur le bassin sont de 1 kgN/ha/an et 1,5 kgP/ha/an pour une fertilisation moyenne de 140 kgN/ha/an et 60 kgP<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/ha/an

# Evolution destination des boues Seine Normandie

répartition dans le temps des MS produites sur les STEP en fonction des principales voies de destination des boues



## SIAAP : avoir plusieurs cordes à son arc

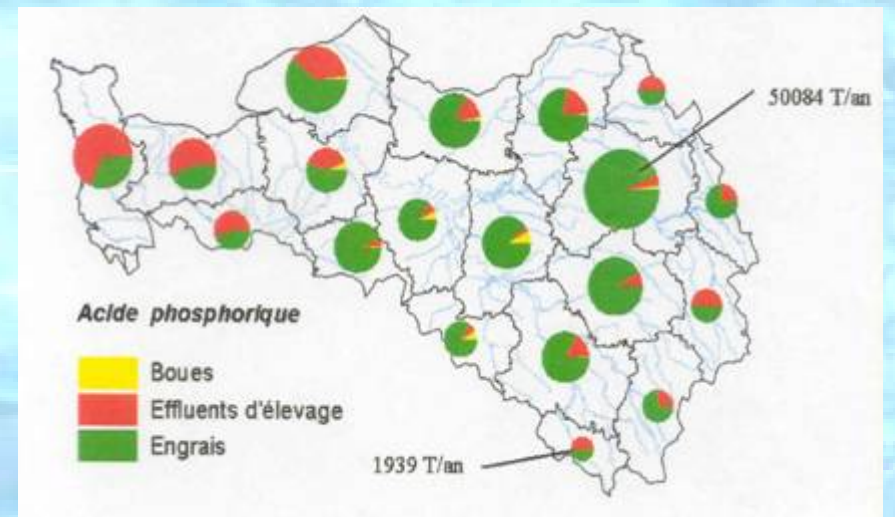
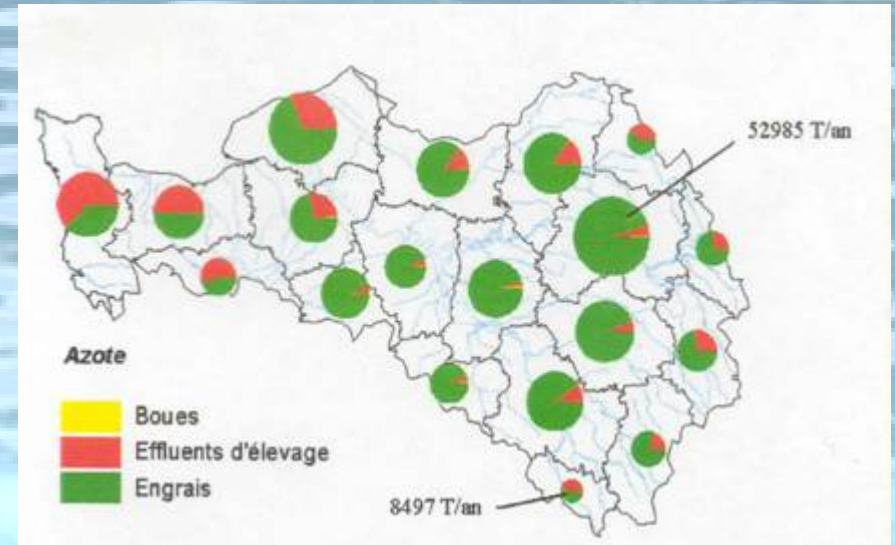


- (matières sèches boues)
- Epandage agricole (50 000 T./an)
- Compostage (33 000 T/an)
- Mise en CET (25 000 T/an)
- Incinération (25 000 T/an),
- Cimenteries (12 000 T/an)
- Pyrolyse (2000 T/an)

*En 2011, 1<sup>ère</sup> tranche Grésillons réalisée, 2<sup>ème</sup> en construction)*

# Apports de fertilisants (N, P) Bassin Seine Normandie

- Les **engrais** représentent plus de 90 % des apports dans l'est du Bassin
- Les **lisiers et fumiers** apportent la moitié de l'azote et du phosphore normands,
- les **boues de STEP** ne représentent que quelques % des apports d'azote comme de phosphore aux champs



# VALORISATION AGRICOLE DES BOUES :

## Quels risques sanitaires ? I

- Des microbes bien éliminés par compostage  
(Plusieurs ↗ tempér. > 70°C - Contrôle par Cl. Perfringens), ou par chaulage (pH > 10).
- Enfouissement direct dans le sol, épandage sur prairie et attente 6 semaines avant d'y mettre des animaux : aucun cas de pathologie du bétail recensé depuis 1986 par la cellule de veille sanitaire vétérinaire
- A comparer aux épidémies (fièvre aphteuse, blue tongue, peste porcine ou aviaire...) ou à la douve (30 % ovins Pays de Bray) propagées par les déjections animales (épandage ou pâturage)...

## RISQUES SANITAIRES II

- Peut-être un seul risque parasitologique résiduel, à surveiller :

**Taenia Saginata** (toucherait 0.3 % des Français, et 1 à 3 % des bovins ?)

Adulte chez l'homme (intestin), cysticerques chez le bovin (estomac->cœur puis muscle) - 1 œuf/g M.S. de boues en moyenne.

-mais attente 6 semaines après épandage sur prairie ->pas d'infestation  
(cf étude J.Cabaret- INRA 2003)

(NB: en France métropolitaine, les ascaris ne sont plus qu'un souvenir chez l'homme, et taenia solium a presque disparu chez le porc)



## RISQUES SANITAIRES III

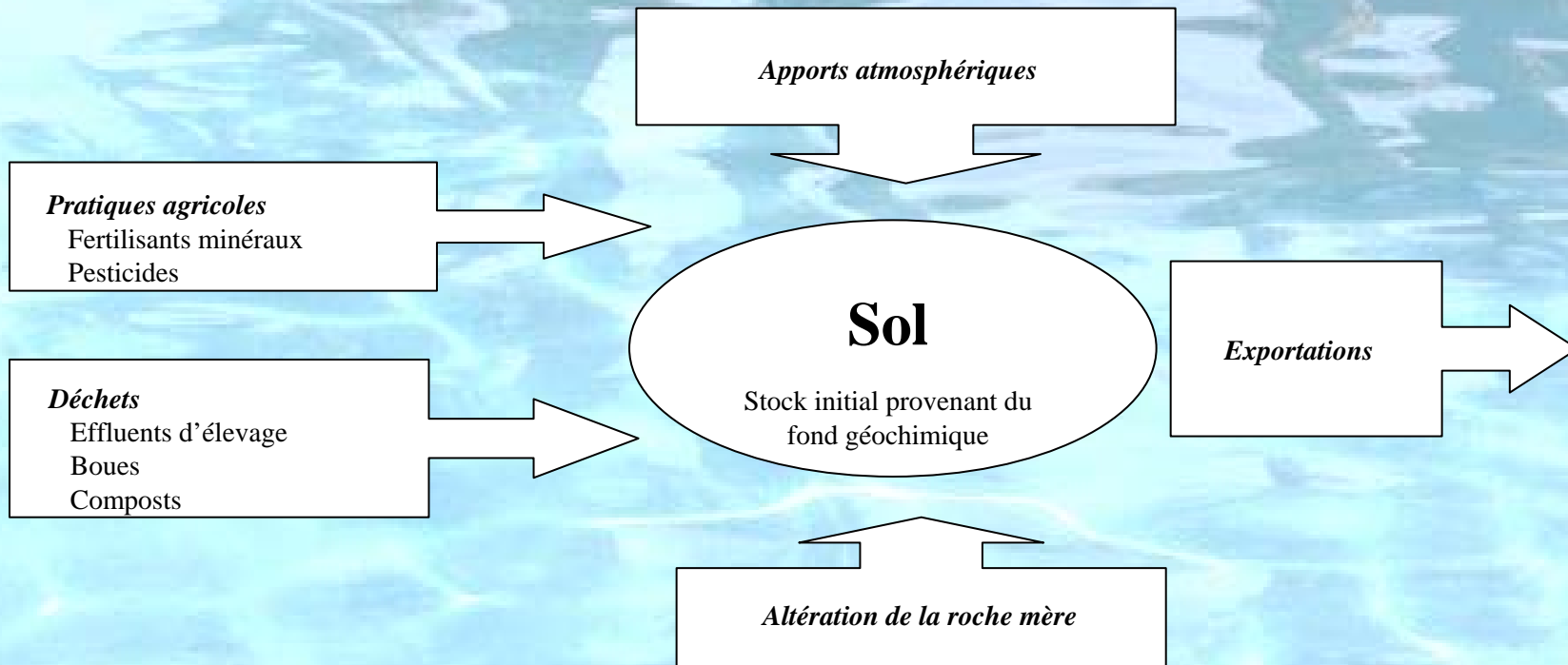
### Les micropolluants (« classiques » et « émergents » :

- On retrouve bien sûr dans les boues, largement dégradées par la microflore des stations d'épuration, des traces des 100 000 produits chimiques de notre vie courante.

Mais....

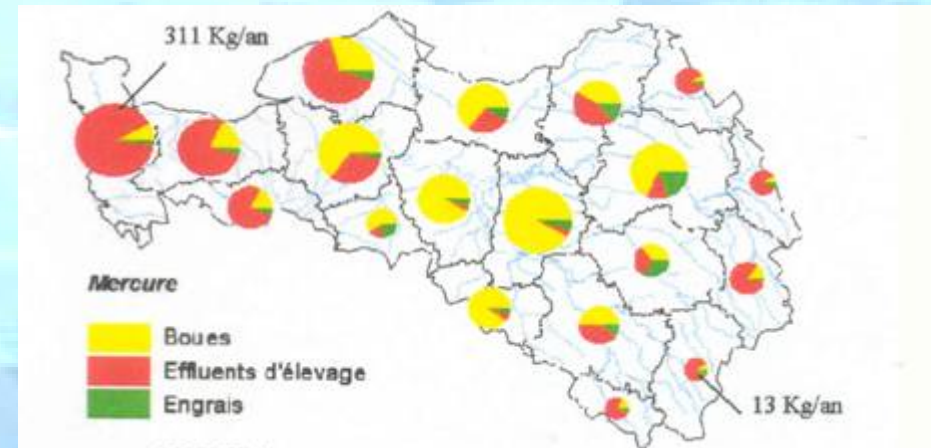
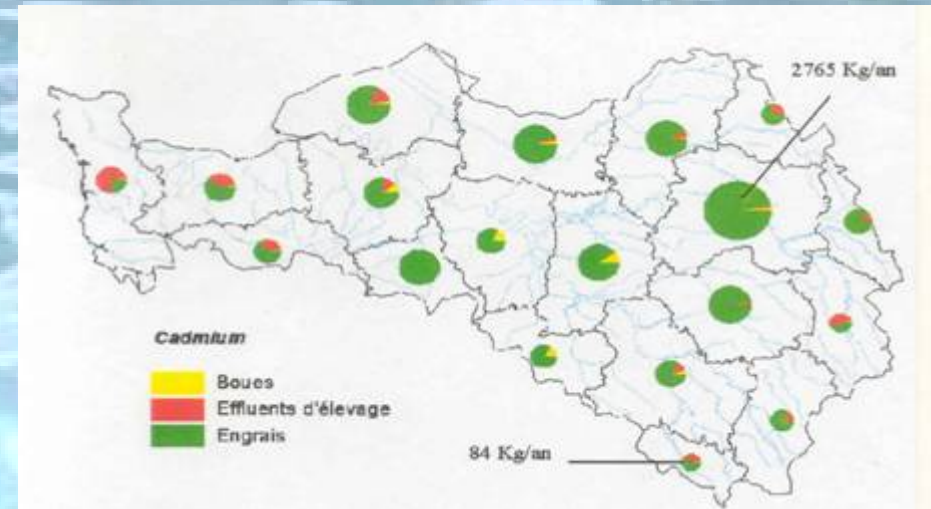
# Les origines des éléments traces (ETM, CTO) dans les sols

(d'après Robert et Juste, INRA, 1997)



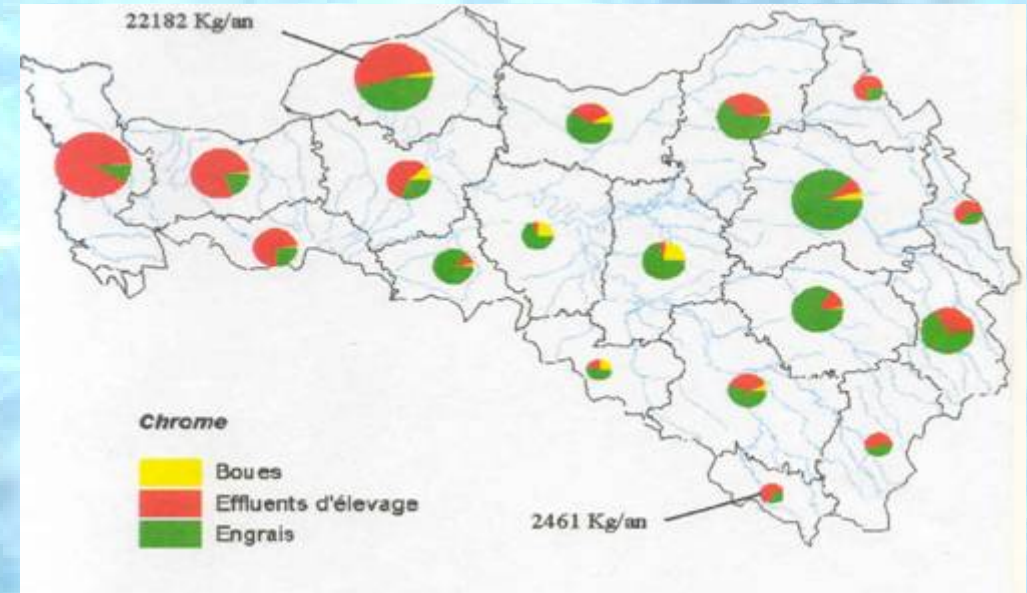
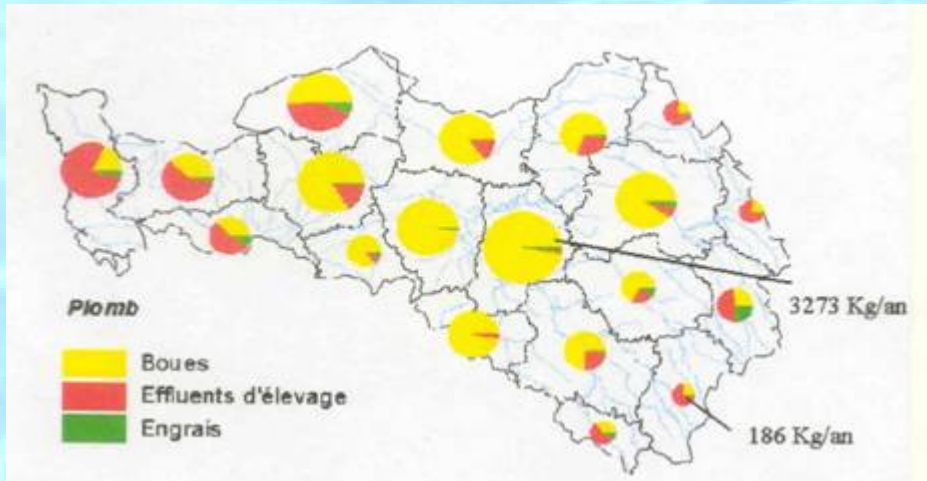
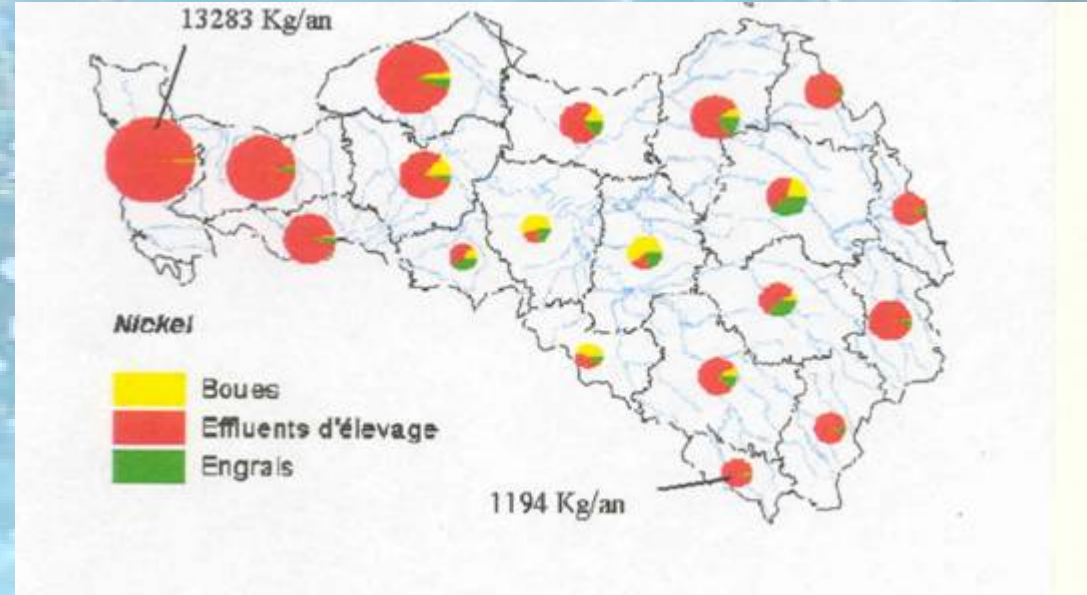
## Les apports des boues sont souvent marginaux :

- en pesticides, par rapport aux traitements directs des sols agricoles
- en métaux, par rapport aux résidus dans les engrais (Cd, Ra, U des phosphates) et les lisiers (Cu, Cr, Zn), les pesticides (Cu-90 % ?, As) et aux dépositions atmosphériques (Pb, Cd) - (sauf Hg)
- en antibiotiques, par rapport aux usages vétérinaires



## Nickel, Chrome, :

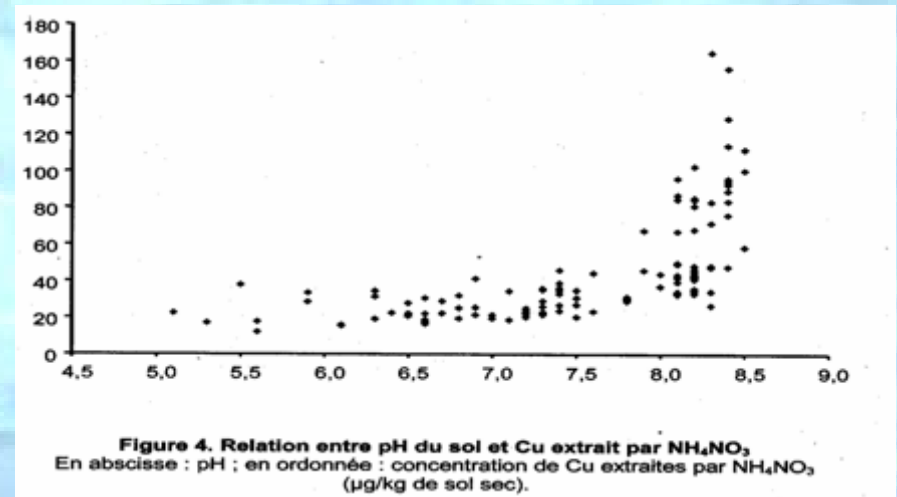
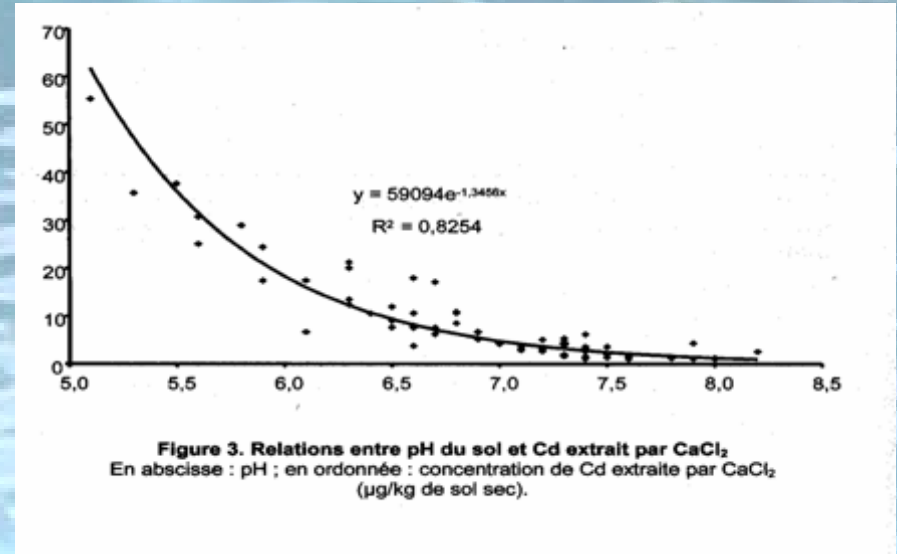
- Une majorité d'apports des effluents d'élevage en Normandie
- La part principale pour les engrais en Beauce ou Champagne
- **Plomb:**
- influence des STEP de l'agglomération Parisienne-réseau unitaire- (mais faible/retombées atmosphériques)



## Reprise limitée par les cultures alimentaires (hors tubercules)

- La plus grande partie de ce qui est incorporé au sol n'est pas reprise par les plantes (mais influence pH du sol) (Exemple : HAP, PCBs, Pb, Zn, Cd, ...)
- + de 400 études pour le confirmer - cf. études AESN, et récents ateliers ADEME - INRA

Ex : Etude Blé et betterave - 2 rotations boues de STEP (Beghin-Say et Soufflet/AESN) : Pas de différence pour Métaux dans les grains et racines avec parcelles témoins



## Mercure:

- Des teneurs déjà très faibles (avec des exceptions comme certaines petites STEP avec maisons de retraite...), qui vont encore diminuer...
- Substance dangereuse prioritaire de la DCE -> interdit d'usage d'ici 2020

## HAP, dioxines, PCBs :

- Peu solubles, peu biodisponibles pour plantes (cf exp. Raffinerie Donges),
- dégradation intéressante dans certains compostages (ex. déchets verts + boues STEP - cf. exp. INRA/prog. AGREDE)

Boues de STEP urbaines: teneurs en Mercure

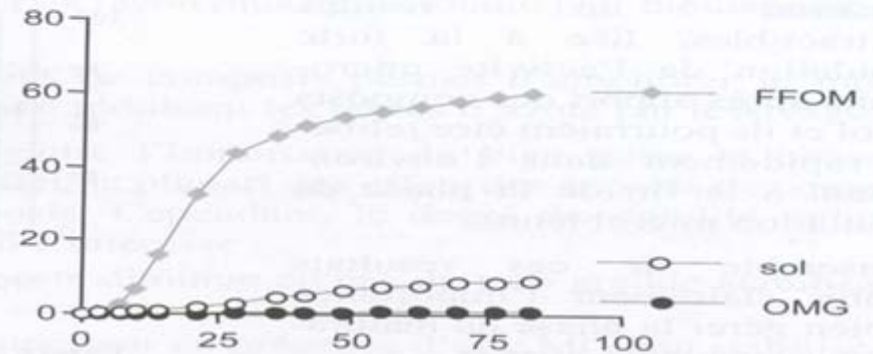
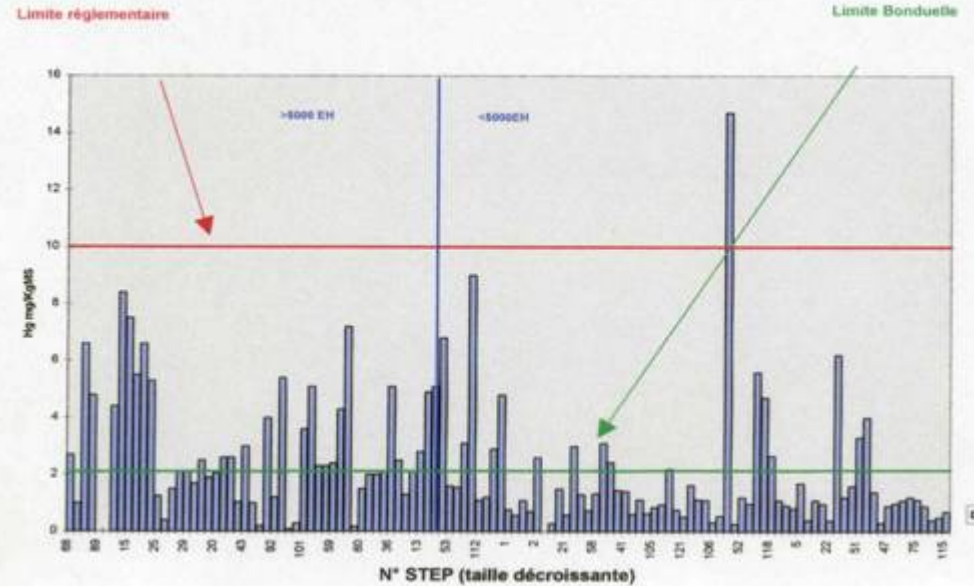
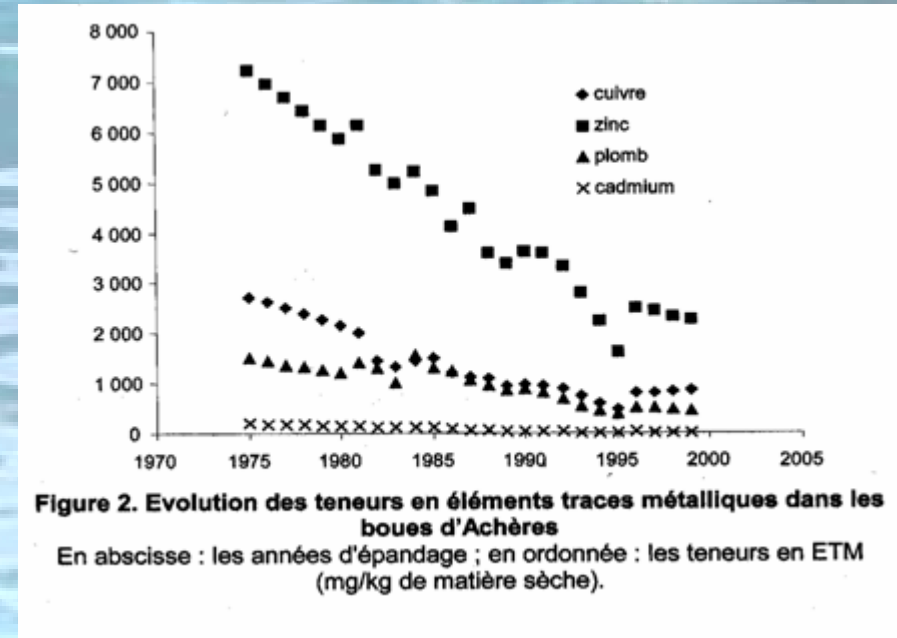


Figure 7. Cinétique de minéralisation du  $^{14}\text{C}$ -fluoranthène au cours d'incubations avec un compost FFOM ou OMG  
 En abscisse : temps (j) ;  
 en ordonnée :  $^{14}\text{C}$  -  $\text{CO}_2$  (%  $^{14}\text{C}$  initial).

## Les teneurs en micropolluants

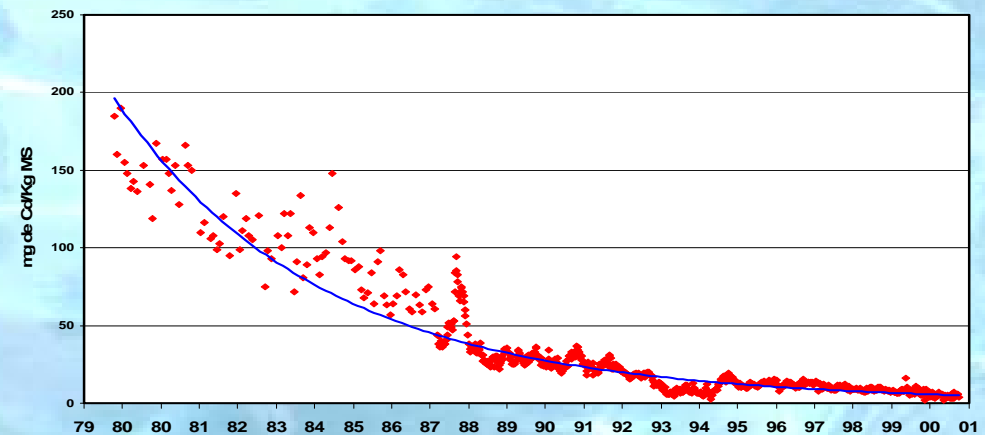
persistants ne cessent de décroître dans les boues urbaines, grâce à une **prévention efficace à la source** :

- - plomb des poussières d 'essence ÷3 en 20 ans,
- -mercure des amalgames dentaires et thermomètres,
- -Cd des industries raccordées, toits de zinc, tuyaux PVC...,
- - solvants chlorés des pressings



## ETM Achères, dont Cadmium

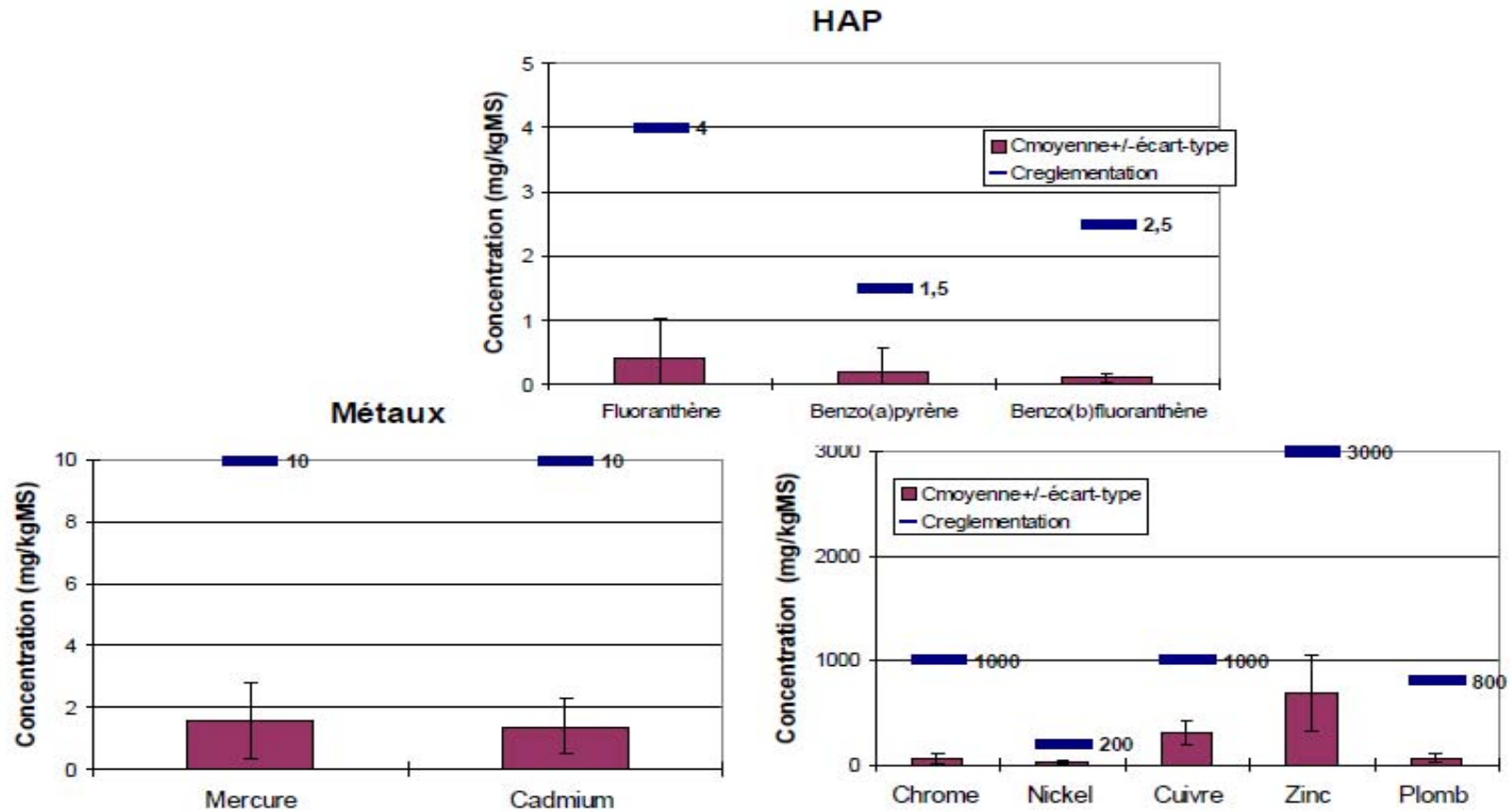
Effets d'une politique de contrôle des rejets sur la concentration en Cd des boues  
(sources: SIAAP, station d'Achères)



- Micropolluants « classiques »: Résultats AMPERES (16 STEP)

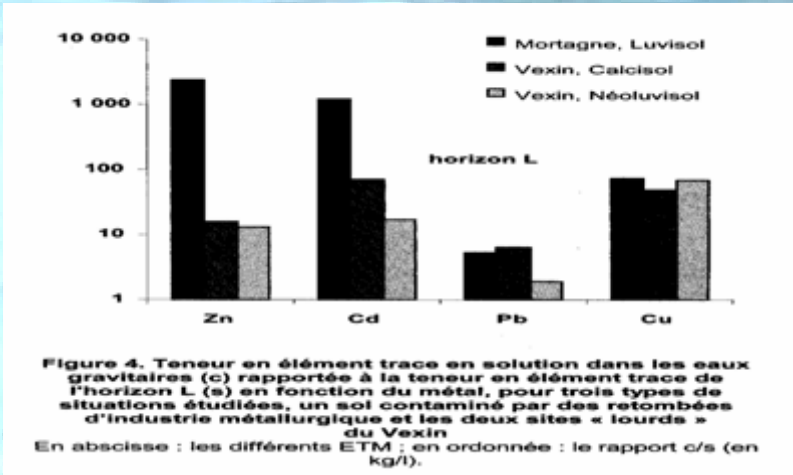


## Concentrations dans les boues de sortie et seuils réglementaires



Source : Marina Coquery, CEMAGREF

Exemple d'apports répétés de boues chargées en ETM sur 60 km<sup>2</sup> du Vexin de 1975 à 1999 (d'après Gaultier et al., INRA/AGREDE, 2004)



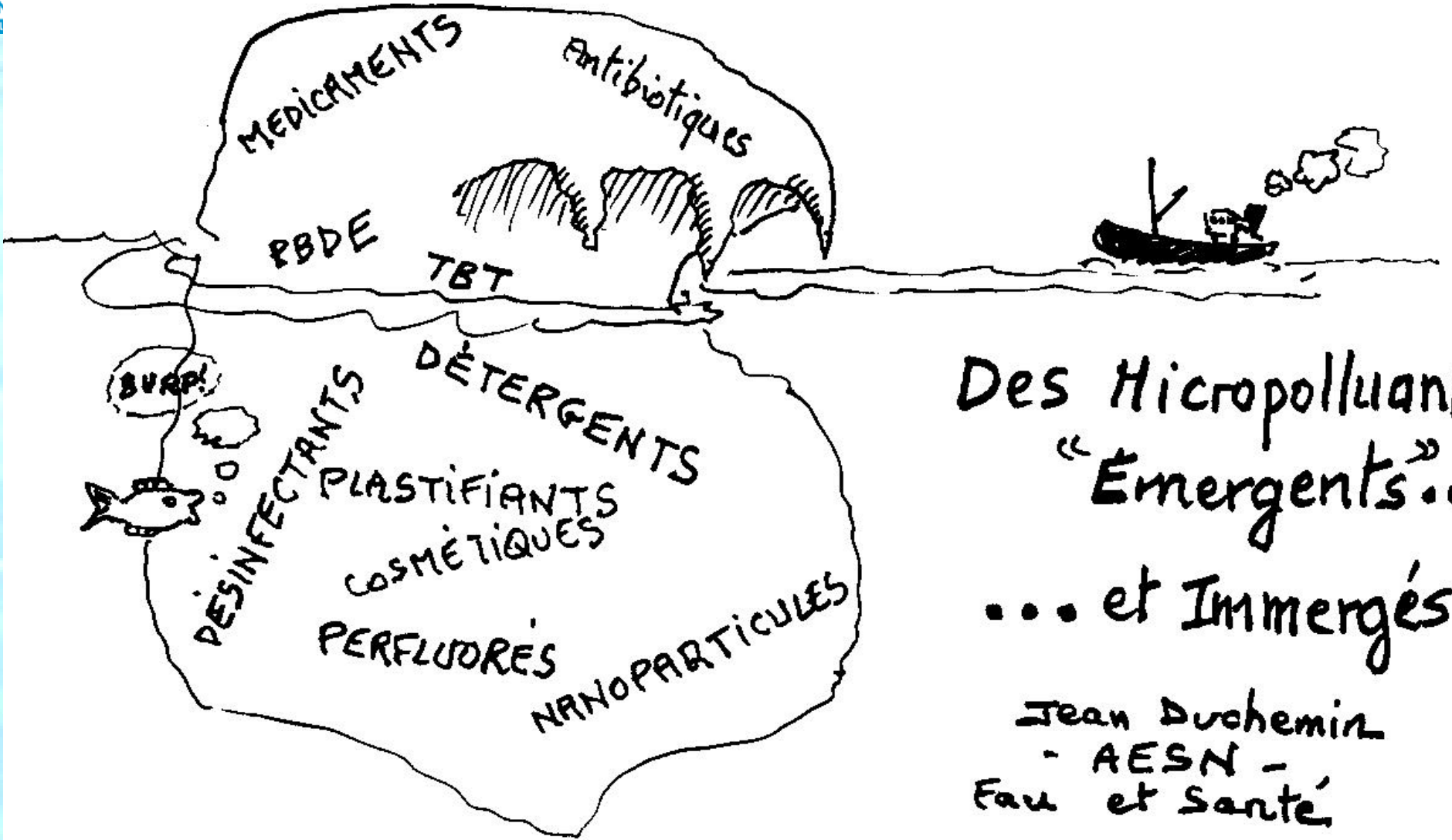
- (cette région reçoit notamment des boues de Cergy et Achères: 150 000 t en 25 ans)
- -les zones les plus contaminées sont celles qui ont reçu les boues les plus anciennes (hors normes)
- -la moyenne des différences pour le cadmium avec parcelles témoins (même type de sol, non épandues) n'est que de 0,06 mg/kg, pour un fond géochimique (naturel) de 0,1 à 0,25 mg/kg

Tableau VI. Teneurs en éléments traces métalliques dans l'horizon de surface des sols non contaminés (fond géochimique) (en mg/kg de sol sec)

	Planosol (UC 84)	Calcisol (UC 114)	Néoluvisol (UC 45)	Luvisol typique (Maudétour-en-Vexin)
Cd	0,07	0,8	0,25	0,2
Cu	4,3	10,6	13,4	6,3
Cr	15,8	60,1	49,3	34,1
Ni	4,9	23	22,1	12,8
Pb	41,5	41,7	28,1	34,3
Zn	19,6	65,5	57,6	47,3

Tableau III. Estimation des quantités totales d'éléments traces métalliques apportés aux sols agricoles depuis 1975 (t)

Cd	Cu	Pb	Zn	Ni	Cr
1,3	44	29	141	2,7	6,2

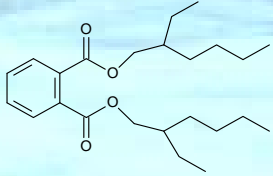


Des Micropolluants  
"Emergents" ...  
... et Immergés!

Jean Duchemin  
- AESN -  
Eau et Santé

# Plastifiants-Effets sur la santé-

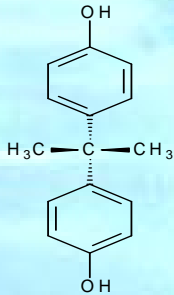
## Phtalates: Quels effets suspectés ?



DEHP

- atrophie testiculaire, baisse de la fertilité
- diminution du poids fœtal
- activité anti-androgène
- + adénome et de carcinome hépatocellulaire DEHP - DINP (peroxysomes)

*Principales préoccupations chez l'homme :  
effets sur la fertilité et le développement des nouveau-nés  
(DEHP, DINP > DBP)*

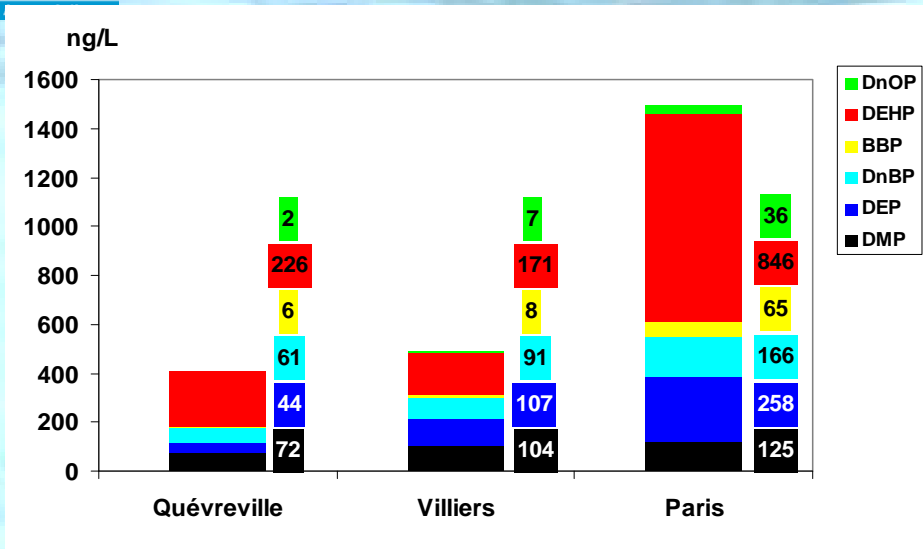


Bisphénol A

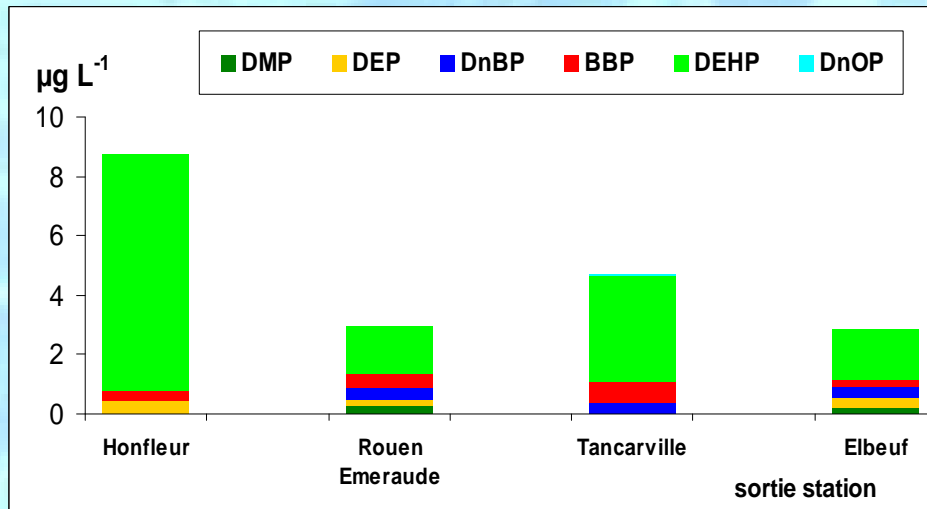
- Et qu'en est-il du **Bisphénol A** ?
- plastifiant des polycarbonates des bonbonnes d'eau de source (où on en trouve parfois 100 µg/l d'eau) ou des biberons- + fabrication de CD, résines époxy, pièces plastique automobiles, emballages alimentaires...
- 1µg/l mesuré dans l'eau du Pô- Qu'en est-il chez nous ?

*Quelle concentration dans les boues de STEP (pas mesuré dans AMPERES) ?  
Quelle durée de vie dans boues et sols ? (comme dans sédiments, absence dégradation par UV...)  
Choix d'organismes sentinelles dans sols pour mesurer les effets P.E. ?*

# Les Phtalates

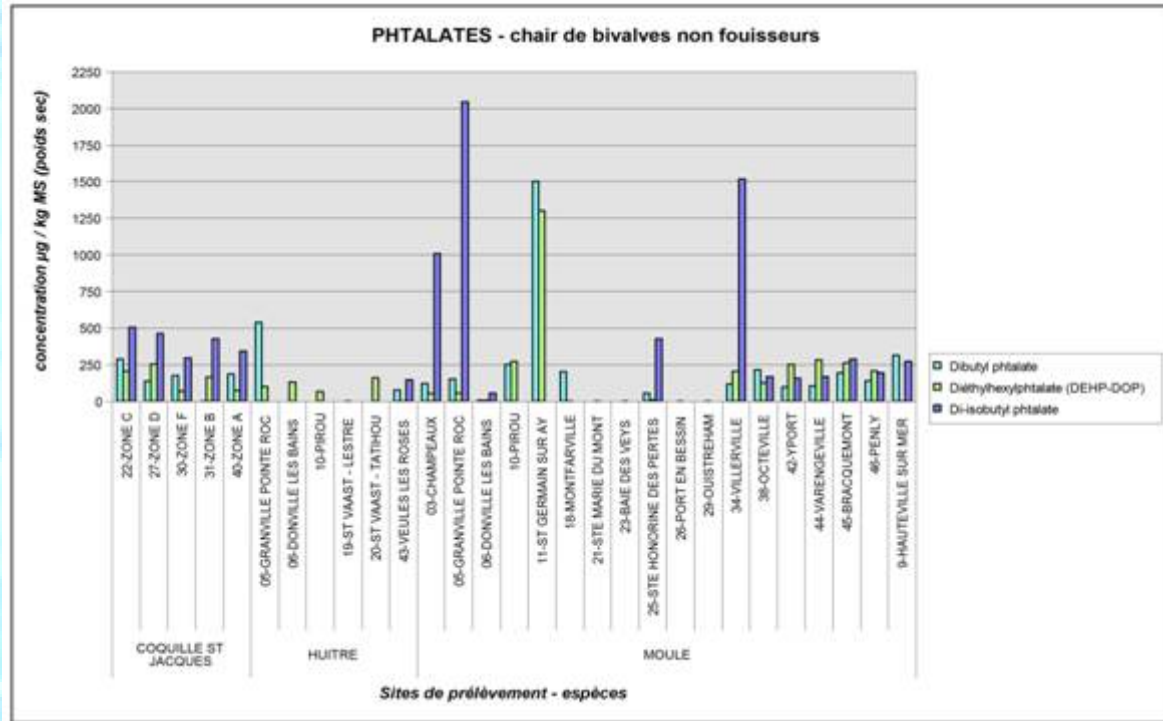


- Plus de **600 000 t de DEHP** produits au niveau européen, pour < 50 000t chacun des autres phtalates, mais le rapport évolue



- Volatilité - cycle air  eau : présence dans eaux de pluie urbaines **1 à 2 µg/l** (dont 60 % DEHP), 3 fois plus qu'en milieu semi-rural
- Présence moyenne de **2 à 10 µg/l** dans effluents de STEP (et **dizaines de µg/l dans les boues liquides**)-
- (étude EPHE Jussieu- 2008- pour AESN/DDD-)

# Phtalates dans les écosystèmes aquatiques et produits de la mer



Présence de « points chauds » en phtalates dans les moules de l'Ouest Cotentin (rejet ponctuel industriels ?)

-La consommation de **250 g par mois** de moules de ce site suffit pour atteindre la DMT du diéthylhexylphthalate (DEHP), fixée à 900 µg.

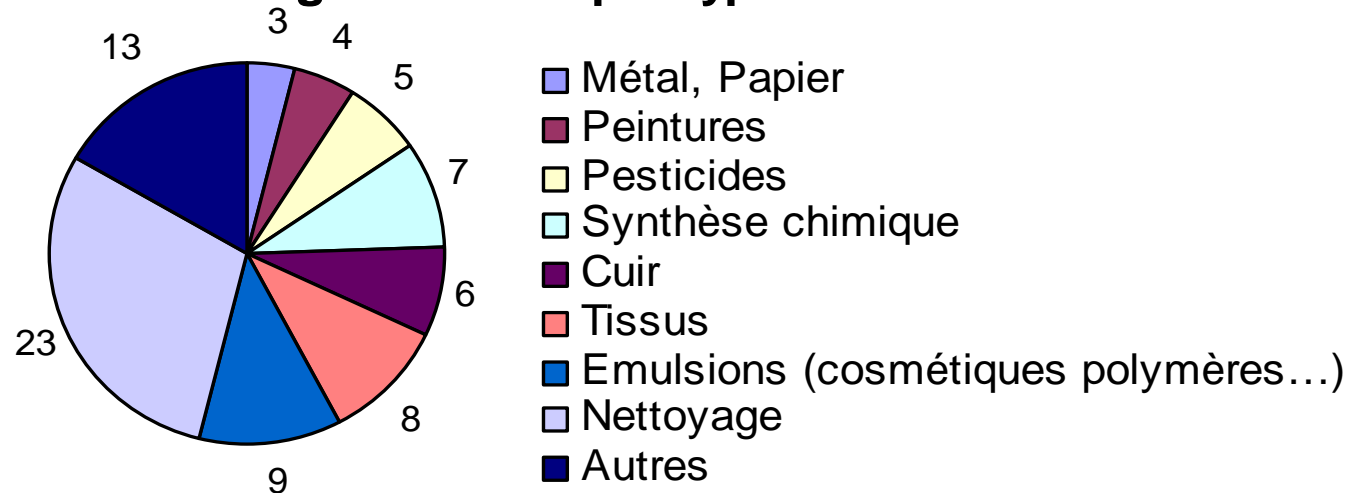
--on trouve souvent dans les moules plus de di-isobutyl-phthalate que de DEHP, seul sur la liste des substances dangereuses de la DCE



# Détergents: Les alkylphénols (éthoxylates)

- Agents de nettoyage (détergents non ioniques), ou dispersants ou émulsifiants, très utilisés depuis les années 80 :
- 700 000 t/an dans le monde, dont pour l'Europe 80 000 t/an de nonylphénoléthoxylates et autant d'octylphénoléthoxylates (NPE). Les nonylphénols et octylphénols sont leurs produits de dégradation.

Répartition des usages de NPE par type d'activités



## Les alkylphénols dans l'environnement

- Ils persistent :
  - 1 jour ou 2 dans l'atmosphère,
  - quelques semaines dans l'eau d'un estuaire,
  - **30 à 60 ans dans les sédiments marins (et quid dans les sols et boues de STEP ?).**
- Leur limite de non toxicité chronique est de quelques  $\mu\text{g/l}$  pour les poissons et les invertébrés aquatiques. Ils s'accumulent dans les graisses de la faune et la flore aquatique, mais peuvent y être métabolisés.
- Ils ont des propriétés oestrogéniques (**perturbateurs endocriniens**) prouvées chez le rat, la truite, et sur cultures cellulaires humaines (10 000 fois plus faibles, à concentration égale, que l'estradiol, hormone stéroïde naturelle).

# Alkylphénols

- Concentrations dans l'environnement :

Diffusion par l'eau



Relargage sédiments

**Eau de rivière** : de quelques  $\mu\text{g/l}$  à plusieurs  $\text{mg/l}$ .

**Sédiments** : de 0.02 à 50  $\text{mg/kg}$ .

Dans le bassin Seine Normandie :

3  $\text{mg/kg}$  en site urbain,

0,5  $\text{mg/kg}$  en site industriel,

0,2  $\text{mg/kg}$  en zone agricole

En comparaison : Grands lacs USA : 40  $\text{mg/kg}$

**Qu'en est-il des relargages depuis les boues de STEP dans les sols (+ percolation eau) et plantes ?**

# Détergents et lessives

- L.A.S.(Linear Alkylbenzene sulfonates):**

-Les plus utilisés des détergents anioniques dans les lessives :

**270 000 T/an** en Europe en 2000 (Alkyl sulfates : 260 000T/an)

-**Dégradation aérobie rapide, anaérobie très lente : plusieurs g/kg dans boues de STEP, mg/kg dans sols épandus et sédiments . Relargages ... ?**

-NQE = 25 à 50 µg/l d'après toxicité sur huître, moule, limande

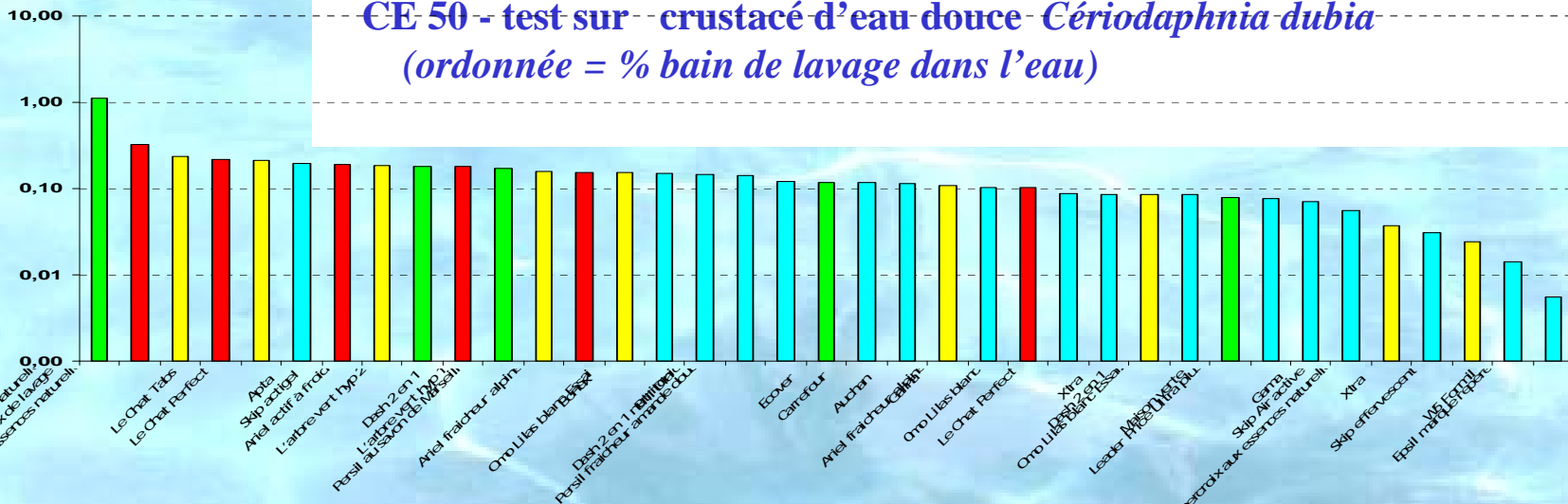
+ **azurants optiques fluorescents, parfums... :**

NOEC de quelques mg/l sur poissons et crustacés

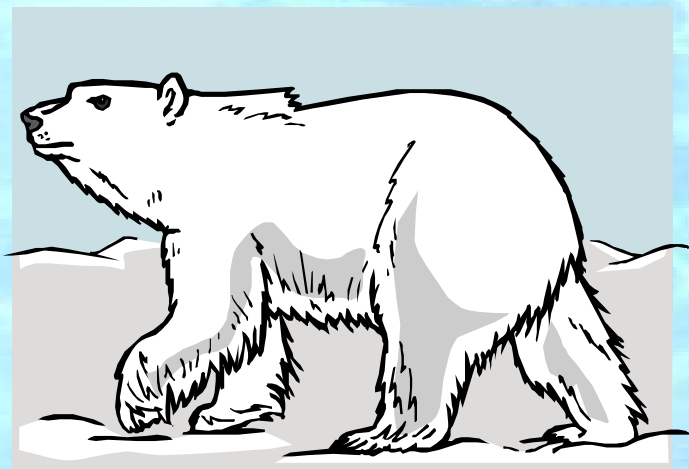
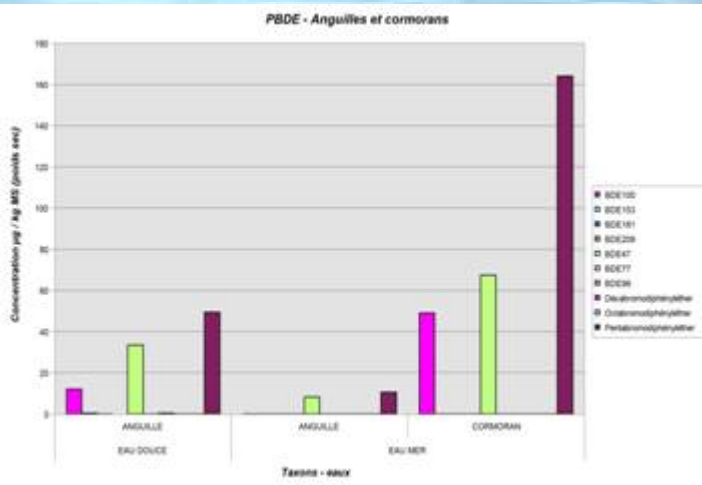
1 lessive = **30 à 50 composants** : tous indispensables ? Synergies ?

**Etude INC /Agences de l'Eau/ INERIS (2006) : toxicité aquatique de 35 bains de lavage avec lessives ménagères, même dilués 1000 à 10 000 fois :**

**CE 50 - test sur crustacé d'eau douce *Cériodaphnia dubia***  
(ordonnée = % bain de lavage dans l'eau)



# Nouveaux « POPs » *(Polluants Organiques Persistants)*

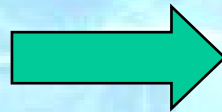


- Concentrations **PBDE** dépassant 100 µg/kg PS dans la chair des cormorans, pour 10-40 µg dans chair anguilles et quelques µg autres poissons mer et eau douce (Seine et littoral Normand)
- D'autres nouveaux POPs pourraient bien justifier une attention particulière: les substances **perfluorées (hydrophobes et lipophobes)** utilisées pour fabriquer le téflon, autres revêtements anti-adhérents, pour imperméabiliser tissus et cartons, et produits de dégradation :
  - -*Acides perfluorocarboxyliques (APFC)*: doublement en 5 ans de leur teneur dans le foie des ours blancs de l' Artique (*Santé Canada*)
  - *Acide perfluorooctanoïque (PFOA)*: 2,6 T/an drainés par Bassin du Pô vers Adriatique; plusieurs dizaines de ng/l (PFOA et PFOS) retrouvés dans certaines nappes-tests du bassin Seine Normandie (*étude DRASS/DDASS/AESN*)
  - *Durée de vie PFOA* : quelques dizaines à centaines d'années (*dégradation accélérée par UV + Fe III*)
  - *Effets reprotox., immunotox. et cancer. avérés sur rongeurs*

# Désinfectants, conservateurs et autres biocides

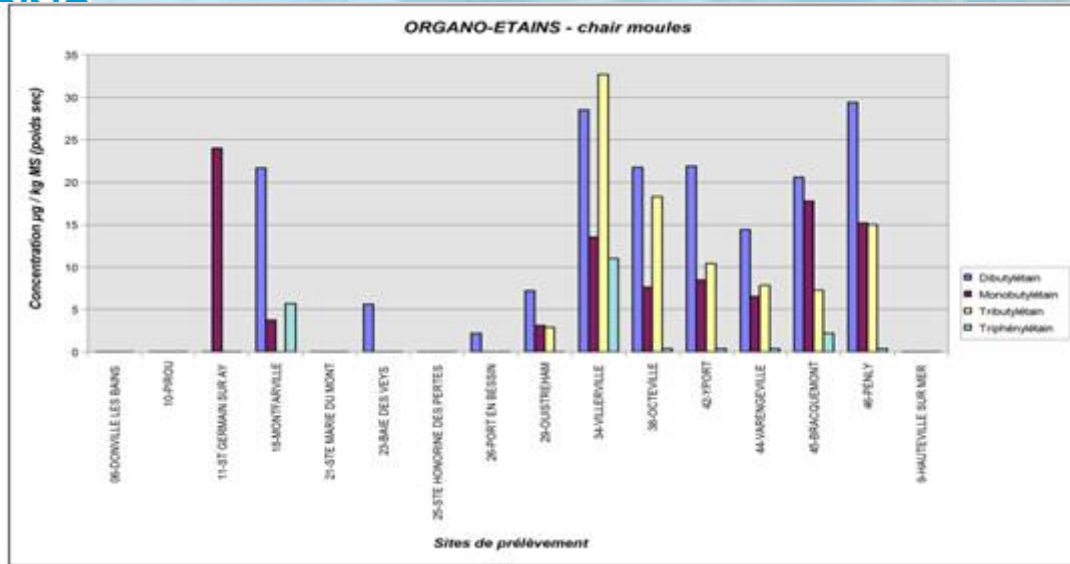
**Biocides, antiseptiques et désinfectants: faits pour tuer la vie ou empêcher sa multiplication, par définition :**

- **Chlore et autres oxydants-> Sous-produits avec mat. org. (ex. trihalométhanes), réactions avec anti-microbiens non oxydants (triclosan des savons...)**
- **Aldéhydes : formol (piscicultures !) et glutaraldéhyde (hôpitaux : ex. désinfection endoscopes), cancérigènes : combien d'hôpitaux neutralisent leurs solutions désinfectantes à l' ammoniacale avant rejet au réseau collectif ?**
- **Organo-étains et autres « anti-salissures » (50 000T/an) : des effets perturbateurs endocriniens insidieux (cf *spicule de larve d'oursin* ci-dessous- photos A.S. Allonier-AESN)**

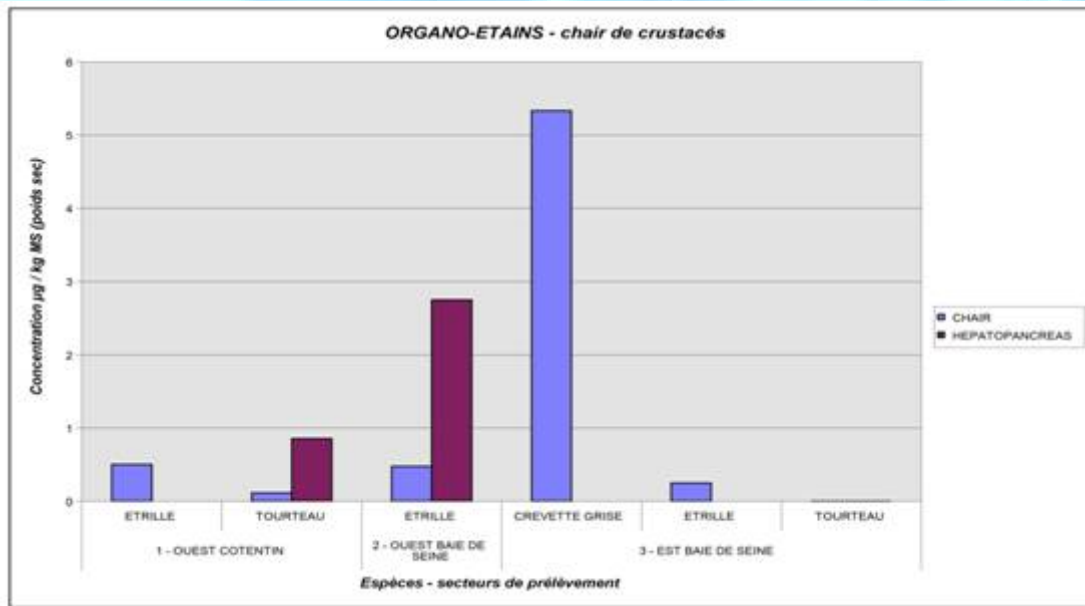


- **Lutte contre les légionelles dans circuits de refroidissement : devenir et effet des sous-produits de purge ?**

# Organo-étains : TBT et métabolites



Si on trouve dans les moules le tributyl-étain (TBT-anti-salissures pour coques bateaux- en **jaune** sur graphe) surtout dans le panache de la Seine, ses produits de dégradation (DBT, en **bleu**, MBT en **rouge**) imprègnent le biote de l'ensemble de la Baie de Seine

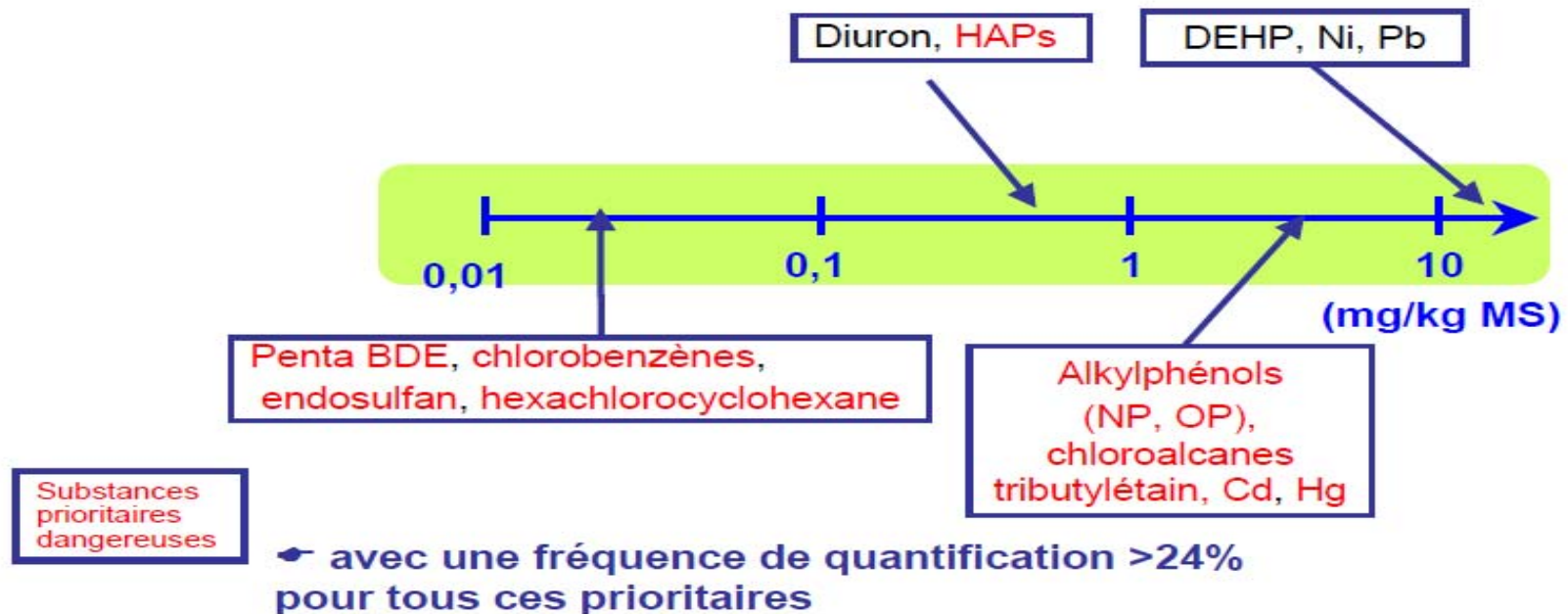


L' **hépatopancréas** des tourteaux et étrilles (« matière brune ») les reconcentre 5 fois plus que la **chair**... C'est le meilleur du crabe, mais ne pas en abuser... !

# Substances prioritaires DCE : échelles de concentration selon AMPERES



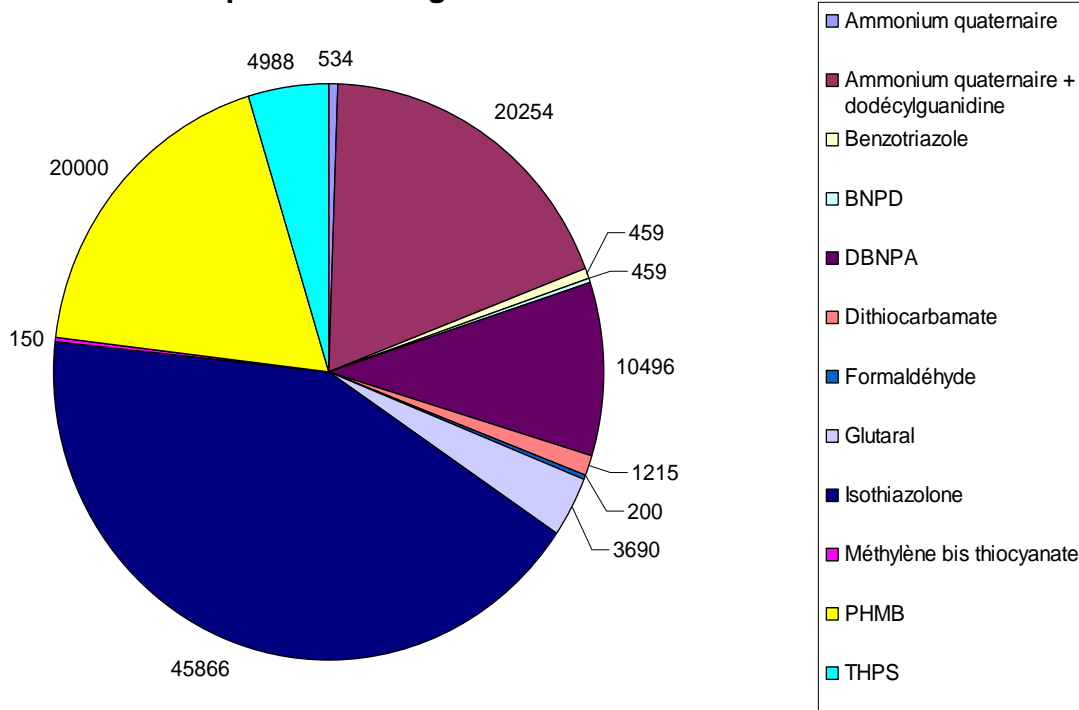
Concentrations moyennes des subst. prioritaires DCE - boues de sortie



# TAR industrielles Seine Normandie

## Tonnages biocides utilisés annuellement

Répartition des biocides non-oxydants en poids (kg) parmi les entreprises interrogées



Extrapolation au niveau des TAR du bassin Seine Normandie:

Pour les oxydants:

**Chlore 17 000 t**

Pour les non-oxydants:

**Isothiazolone 485 t**

**DBNPA 109 t**

**Ammonium quaternaire 193 t**

**Glutaral 109 t**

Enjeux pour le bassin:

**DBNPA → augmente [C] en AOX et THM**

**NB: Eaux rarement traitées avant rejet (purges)**

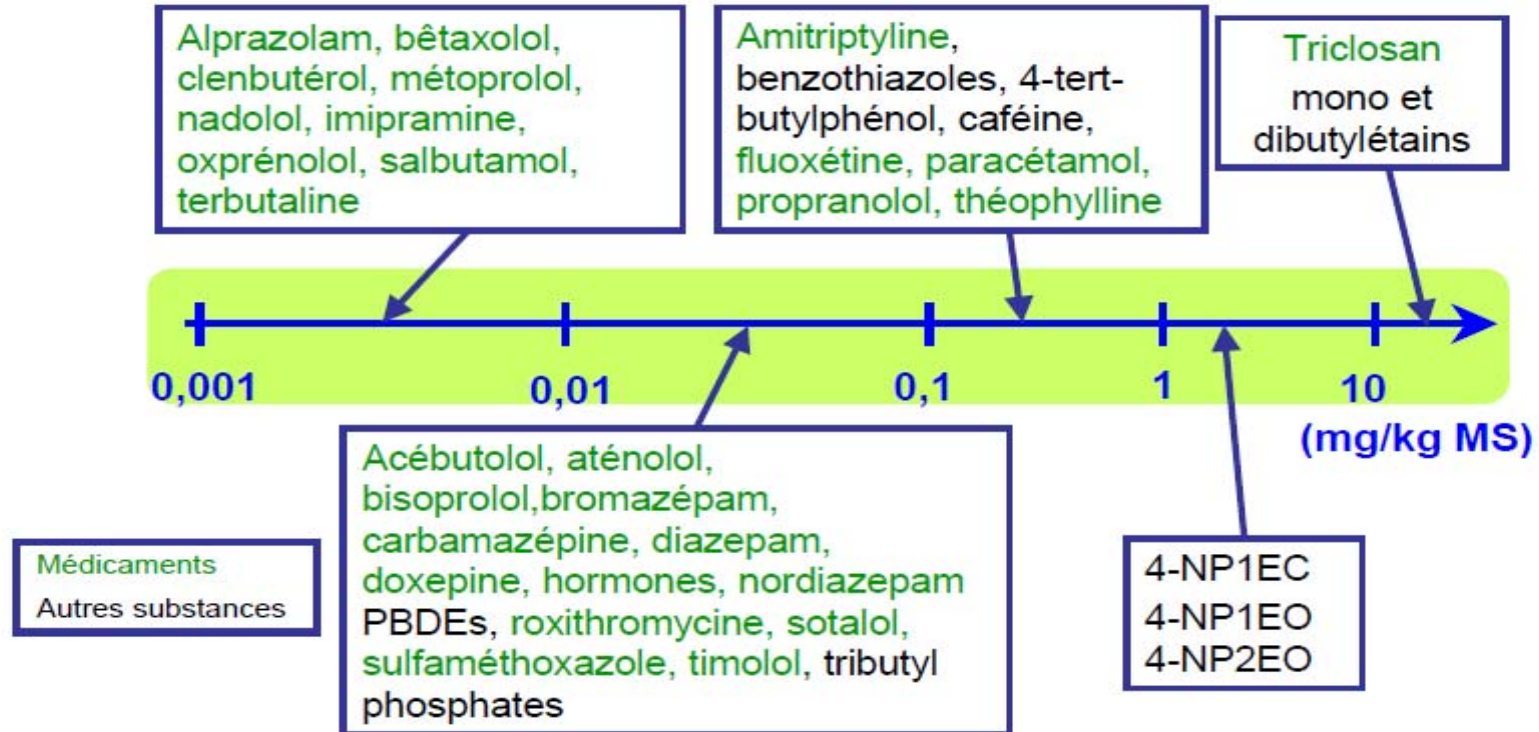
*D'après P.C. Caldera -Ecole des Mines Albi- stage AESN-2005  
Enquête sur 89 entreprises/500 tours aéro-réfrigérantes*

**Et qu'en est-il des organochlorés dans les boues de STEP, issus de l'usage ménager d'eau de javel ?**

# Substances « émergentes » : concentrations selon AMPERES



Concentrations moyennes des autres subst. - boues de sortie



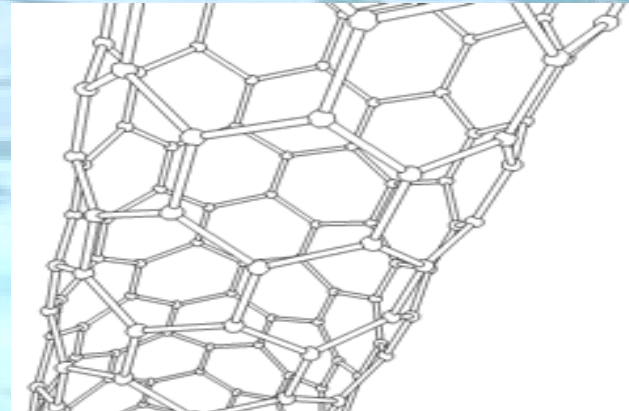
➤ fréquence de quantification >29% pour la plupart de ces substances, dont les médicaments

19

Source: Marina Coquery, CEMAGREF

# Nanoparticules

- **Utilisées dans l'industrie du médicament ou en cosmétologie mais aussi applications militaires, énergétiques, électroniques, et en alimentation animale...**
- **Liposomes, micelles, fullerènes...  
NTC , Fe<sup>0</sup>, TiO<sub>2</sub>, Si, Al, Sb, Mn ....**



- **Meilleure solubilisation, passage facilité au travers des membranes biologiques....  
(comme les fibres d'amiante) :  
Effets pulmonaires? Sanguins ? (oui sur souris pour NTC)  
Possible accumulation dans tissus du cerveau ?**

# Nanoparticules: que de questions...

- **Quels outils pour mesurer :**
  - les surfaces actives ? (à cette échelle la concentration en masse n'a plus de sens, la réactivité change complètement, la toxicité aussi)
  - l'efficacité des systèmes de filtration d'eau potable ?
  - la persistance, les relargages et le maintien de réactivité de ces particules dans le milieu (dont boues de STEP, sols et sédiments) ou les aliments ?
- > 300 M€/an consacrés à la R & D publique sur le sujet en France, 100 fois moins à l'évaluation des risques associés (Idem dans le privé et dans le monde) ....  
Un rééquilibrage à imaginer ?

# > 100 000 substances synthétiques : lesquelles suivre ?

- **Mise à l'agenda : Rapprocher Paracelse "Tout est poison, rien n'est sans poison. Seule la dose fait qu'une chose n'est pas un poison."**
- **et Lavoisier (« rien ne se perd, rien ne se crée, tout se transforme »..)** : -mieux connaître métabolisation/sous-produits pertinents/biodisponibilité par familles chimiques de substances (plus que par usages)

➔ *faut-il aller fouiller analytiquement les boues au-dessous de 10 µg/kg MS ?*

➔ *Rééquilibrer la surveillance des résidus selon la part de chaque voie d'exposition humaine: eau/aliments/emballages/inhalation/contact (ex. pesticides ou plastifiants), et la part des boues de STEP /autres apports aux sols agricoles et denrées produites.*

➔ *Promouvoir le « biomonitoring » humain et animal*

## **Connaître pour choisir:**

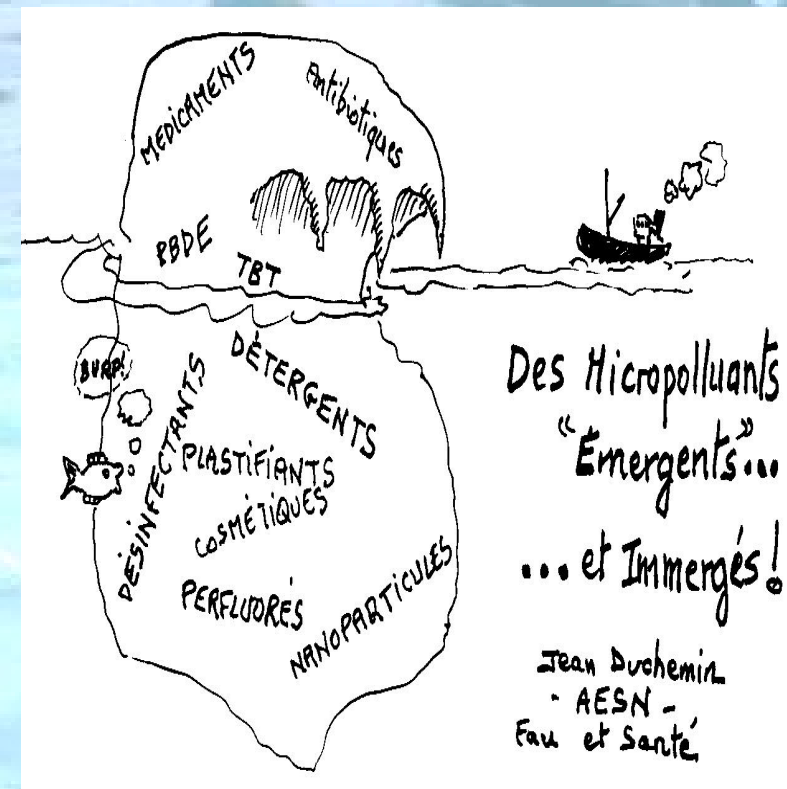
- **Approche graduée « in silico » → « in vitro » → « in vivo » :**
    - *méthode informatique QSAR – Relations Quantitatives Structure-Activité : similitude de structure chimique => similitude d'effets ?*
    - *bioessais sur cultures cellulaires de tissus ou organes-cibles*
    - *Toxicogénomique (puces à ADN)*
- cf REACH et Création de l' ECVAM (validation méthodes alternatives)**

## Pour une « émergence » raisonnée... et non subie : d'autres pistes

- Désinfectants, biocides: aussi importants à surveiller que les pesticides
- Détergents: il n'y a pas que les alkylphénols !
- Obtenir des fabricants listes précises de matières actives adjuvants et métabolites pertinents
- + méthodes dosage traces en routine (dans eau, boues/sédiments, biote)

Anticipation : choix, études, suivis-actions  
et communication organisée auprès du public  
(dont hiérarchisation/relativisation risques)

- Et pour revenir à notre iceberg de micropolluants,
- selon le bon vieux principe d'Archimède,
- Ceux qui émergent le plus, sous les sunlights des médias,
- ne seraient-ils pas souvent les plus légers ?



## Principe de précaution : jusqu'où aller ?

- L'évaluation complète et absolue du risque est impossible :
    - effets cocktails (Ex : Cu et organophosphorés)
    - métabolites et sous-produits
    - des milliers de molécules en traces
- On ne devrait jamais prendre plus de 2 médicaments ensemble : impossible de prévoir leur devenir dans le foie...

Pour les Français, et malgré la pression médiatique entretenue, les boues ne sont pas vues comme si dangereuses et anxiogène en sécurité alimentaire :

Sondage CSA Onyx 2003 : (santé publique et déchets)

déchets nucléaires :	56%
dioxines UIOM	35%
déchets industriels :	28%
boues :	8%

Idem baromètre risques alimentaires (BVA -ANIA), 2002 :

pesticides	19%
vache folle	17%
OGM	14%
boues	3%

=> Un contrefeu médiatique à élaborer, pour relativiser/hierarchiser les risques ?

## Principe de précaution : suite

- Prendre des mesures **proportionnées**, en fonction d'une pré-évaluation du risque
- **Continuer les recherches**

⇒ A défaut d'évaluations absolues, on peut travailler par **comparaison** avec d'autres sources d'exposition et autres risques acceptés:

**Bon Sens** et pragmatisme (cf études UK)...Et **responsabilisation du consommateur/producteur de déchets !**

⇒ Fonds de garantie : l'Allemagne en a un, ..., qui n'a jamais servi !

⇒ **Sortir des surenchères de « précaution »** (publicitaires pour distributeurs), et psychoses entretenues par certains responsables agricoles pour faire payer

l'acceptation de recyclage d'un élément fertile devenu « déchet », et pour que les responsables urbains se préoccupent du monde agricole ?