RISQUES SANITAIRES LIES AUX BOUES D'EPURATION DES EAUX USEES URBAINES

Contribution à l'élaboration des recommandations du

Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France

--0Oo--

Rapport pour la Section des Eaux

1 - Groupe de Travail "Biologie"

Coordinateur:

Madame SCHWARTZBROD

Participants:

Madame ARNAUD Monsieur BALEUX Monsieur COURTOIS

Monsieur DOR Monsieur KECK Monsieur PETER Monsieur LARBAIGT Madame LEGEAS Monsieur WIART

- 1 INVENTAIRE DES AGENTS PATHOGÈNES DANS LES BOUES URGAINES
- 2 Evaluation des risques
- 3 LÉGISLATIONS
- 4 -LES PERFORMANCES DES FILIÈRES DE TRAITEMENT DES BOUES
 - 4-1 Traitements physiques
 - 4-2 Traitements biologiques4-3 Traitements chimiques

 - 4-4 Classement des traitements selon l'US EPA
- 5 Gestion du Risque
 - 5-1 Principes
 - 5-2 Recommandations possibles
- 6 RÈGLES D'UTILISATION

ANNEXES

INTRODUCTION -

L'Union européenne produit plus de 6.10⁶ tonnes de boues d'épuration urbaines par an exprimées en matière sèche. En France, le volume annuel des boues résiduaires s'élève à 8.10' tonnes de matière sèche. Ces boues sont actuellement :

- soit incinérées (15 %)
- soit mises en décharge (35 %)
- soit épandues sur terrains agricoles et forestiers (50 %)

Ce volume devrait considérablement augmenter d'ici 2005 avec la transcription en droit français de la directive européenne du 21 Mai 1991 sur le traitement des eaux **usées** qui impose le raccordement à une station d'épuration (STEP) pour les villes de plus de 2000 habitants et la déphosphatation dans les zones sensibles.

Au niveau français, le parc de stations d'épuration s'élève à 11 310 unités dont 7 000 stations d'épuration de petite taille. La capacité moyenne est de 7 000 équivalents habitants. Enfin 80 % des eaux usées en France sont traitées par seulement 7 % des stations d'épurations (Hydroplus, 1994)

Le problème de l'élimination de ces boues va donc se poser de façon cruciale dans un proche avenir d'autant que les textes d'application de la loi sur l'eau du 3 janvier 1992 (article 35) obligent les communes à Climiner les boues qu'elles produisent avec notamment l'interdiction de mise en décharge si le déchet n'est pas réduit au stade de résidu ultime (réf. décret déchets).

Dans cette optique, une nette augmentation du recyclage des boues en agriculture devrait être observée car ces boues ont une composition qui permet de couvrir plus ou moins partiellement les besoins des végétaux en azote, phosphore... Elles peuvent également contribuer avec leurs composés organiques au maintien du stock humique des sols.

Cette pratique se traduit en revanche par un risque sanitaire qui demande à être correctement évalué et maîtrisé aussi bien sur le plan biologique (bactéries, virus, parasites...) que du point de vue chimique (métaux lourds...).

1. INVENTAIRE DES AGENTS PATHOGÈNES DANS LES BOUES URBAINES

Les agents pathogènes dans les eaux usées sont majoritairement associés aux particules en suspension. Ils appartiennent à 4 principales catégories : bactéries, virus, protozoaires et helminthes (tableau nº 1)

Tableau n°1: Principaux Agents Pathogènes pour l'Homme et/ou l'Animal d'Intérêt Sanitaire pouvant être Retrouvés dans les Boues Résiduaires (d'après EPA, 1992)

Bactéries	Pathologie	_	Cible
		Homme	Animal
Salmonella sp	Salmonellose	+	www (vemx
Shigella sp	Dysenterie bacillaire	1	autros espèces)
Yersinia sp	Gastroentérite	+	±
Vibrio cholerae*	Choléra	+	+
Campylobacter jejuni	Gastroentérite	+	1
Escherichia coli	Gastroentérite	+	+
(souches pathogènes)		+	+++ (toutes espèces)
Virus Entériques			
77' 1 HYY/ 1. A . Total	Hépatite infectieuse	+	
Virus de l'Hépatite A et E*	Gastroentérite	+	
Virus de Norwalk et apparentés	Gastroentérite	•	+
Rotavirus			(veaux, porcelets
Entérovirus	Poliomyélite		
- Poliovirus	Méningite, Pneumonie, Hépatite	+	
- Coxsackievirus	Méningite, Paralysie, Diarrhée	+	•
-Echovirus	Infection respiratoire, Gastroentérite	+	
Réovirus	Gastroentérite	+	±
Astrovirus	Gastroentérite ,	+	
Calicivirus	,		
Parasites]			
 Protozoaires 			
Cryptosporidium sp	Gastroentérite	+	+ + + (vcau)
Giardia intestinalis	Diarrhée	+	++ (chien)
Entamoeba histolytica	Dysenterie	+	
Balantidium coli	Diarrhée et Dysenterie	+	+ (porc)
Toxoplasma gondii	Toxoplasmose	+	+ (chat)
II-1:41			
• Helminthes	Troubles gastrointestinaux	+	
Ascaris lumbrico•des	Diarrhée, Douleurs abdominales	+	
Trichuris trichiura	Diarrhée, Douleurs abdominales	+	+ (chien)
Toxocara sp	Nervosité. Insomnie, Troubles	+	+++ (bov)
Taenia sp	digestifs, Anorexie	•	(50.)
II	Nervosité, Insomnie, Troubles digestifs,	+	
Hymenolepis	Anorexie		

+++ : très sensibles

++ : moyennement sensibles + : faiblement sensibles • DOM TOM

± : sensibilité douteuse - : non sensibles

Les espèces rencontrées et les concentrations observées dans les eaux usées dépendent de divers facteurs dont le niveau sanitaire de la population raccordée. Elles peuvent varier au cours du temps. Les procédés de traitement primaires des eaux usées concentrent ces particules avec les boues, par conséquent les boues brutes primaires ont des concentrations en agents pathogènes supérieures aux eaux usées d'entrée. Par ailleurs le taux de pathogènes présents dans les boues résiduaires dépend du type de traitement. Les résultats souvent exprimés par kilo ou litre de boues humides rendent les comparaisons délicates (tableau n°2).

ANNEXES

Contrôle et Méthodes

L'analyse quantitative des micro-organismes présents dans un milieu (boues résiduaires par exemple) consiste à estimer l'effectif dune population donnée.

Malgré son caractère conceptuel très simple, l'évaluation du niveau de contamination bactérienne d'une boue résiduaire rencontre des difficultés certaines souvent ignorées quelquefois évoquées mais rarement prises en compte :

- (i) problèmes techniques : mode de prélèvements et de conservation des échantillons
- (ii) problèmes de raisonnement statistique induits par l'hétérogénéité des boues résiduaires.

Les boues résiduaires réceptacles des particules en suspension dans les eaux usées contiennent de très nombreux micro-organismes y compris, tous les micro-organismes présents initialement dans l'eau usée.

Se retrouveront donc dans les boues résiduaires sur le plan bactériologique la plus grande partie des microorganismes produits par le système biologique auxquelles s'ajouteront les bactéries en provenance des matières fécales et des urines parmi lesquelles pourront être présentes toutes les bactéries pathogènes transitant par le tube digestif ou les reins des individus porteurs (malades ou sains) et éventuellement d'animaux. Seront également présentes toutes les bactéries "naturelles" du tube digestif avec entre autres *Escherichia coli*, les coliformes thermotolérants (CTT) et les entérocoques (SF).

L'estimation de la densité bactérienne d'un milieu "semi-solide" tel qu'une boue résiduaire à des fîns sanitaires est orientée le plus souvent vers la surveillance de l'évolution du niveau de contamination bactérienne avec le temps **ou/et** motivée par le contrôle de la qualité bactériologique de la boue conformément à des valeurs de référence.

Toute campagne de prélèvements pose le problème des modalités de l'échantillonnage à savoir : où, quand et combien d'échantillons faut-il prélever ?

'Le nombre d'échantillons à prélever est parfois entièrement déterminé en fonction de "l'étendue" du milieu étudié (EPA, 1977). Les résultats qui en découlent reposent sur des conditions purement intuitives sans fondement mathématique rigoureux.

La distribution dans. l'espace et /ou dans le temps des bactéries se traduit formellement par une variabilité, entre les titres **bactériens** des différents échantillons analysés suivant une loi de probabilité spécifique propre à la configuration de cette **hétérogénéité** spatiale ou temporelle (Maul et El Shaarawi, 1985). L'étude de la loi de distribution du nombre de bactéries dans l'échantillon permet :

- (i) d'apprécier le degré de l'hétérogénéité
- (ii) de faciliter l'exploitation statistique des résultats
- (iii) de définir les modalités d'une stratégie d'échantillonnage.

Une stratégie d'échantillonnage peut être définie comme Ctant la réponse à la question suivante : combien faut-il obtenu d'unités d'échantillonnage d'une taille déterminée et où (quand) les situer pour une ou plusieurs échelles d'observation afin de répondre au(x) but(s) de l'étude ? (Troussellier *et af.*, 1989)

L'étude de la mise en place d'une stratégie d'échantillonnage en vue de définir la précision du dénombrement bactérien dans des sédiments, ces derniers pouvant être rapprochés des boues résiduaires, a montré que la variabilité intra-échantillon étant très faible la pression de l'estimation du nombre moyen de bactéries par unité de surface (cas de l'épandage) se joue au niveau de la multiplication des échantillons plutôt que de celle des ensemencements (Baleux et Troussellier, 1982).

Au sujet de la stratégie d'échantillonnage des boues résiduaires c'est le "guide de bonnes pratiques" du Québec qui décrit le plus en détail cette approche : il est prévu à la fois un échantillonnage temporel et un échantillonnage spatial.

En référence à ce document, comme exemple sur le plan temporel, et dans le cadre des boues déshydratées, il est prévu un prélèvement quotidien réalisé à intervalles réguliers sur l'ensemble de la période de déshydratation au moment du démarrage de la production de boues déshydratées. Par la suite un contrôle mensuel est prévu. Si celui-ci est supérieur aux normes fixées un échantillon de plus doit être prélevé.

Contrairement à un échantillon d'eau dans lequel la distribution des micro-organismes tend vers une répartition régulière ou uniforme, dans un échantillon de boue résiduaire cette répartition est exceptionnelle pour être supplantée par une répartition contagieuse ou agrégative.

Si les micro-organismes dans la phase aqueuse sont plutôt présents sous forme libre ou liée à de très petites particules, ceux-ci sont essentiellement fixes sur les particules plus grosses qui constituent les boues résiduaires.

Pour ces deux raisons il est nécessaire d'utiliser un protocole d'extraction de la totalité des bactéries présentes dans l'échantillon de boues **résiduaires** en vue de leur analyse quantitative et qualitative (IUNG, 1993).

La recherche de routine des bactéries témoins de contamination fécale (BTCF: *E. coli*, C.T. et S.F.) dans les boues résiduaires fraîchement produites paraît superfétatoire puisque les boues résiduaires urbaines peuvent être considérées comme des matières fécales diluées.

A terme, il sera en outre veillé à ce que se développent une bibliothèque de références, des procédures d'intercalibration de mesures entre organismes accrédités et une normalisation adaptée.

Bibliographie

- ADEME, ENSP, ENVN, 1994. Les germes pathogènes dans les boues résiduaires des stations d'épuration urbaines. Collection "Valorisation agricole des boues d'épuration", 89 p.
- ANONYME, 1994. Les stations d'épuration en France. Hydroplus, 49, 46.
- CLARKE C.S., BJORNSON H.S., SCHWARTZ-FULTON J., HOLLAND J. w., GARTSIDE P.S., 1984. Biological health risks associated with the composting of wastewater treatment plant sludge.J. W.P.C.F., 56, 12, 1269-1276.
- DOBY J.M., 1983. Les parasitoses intestinales chez les égoutiers. Arch. Mal. Prof., 44, 1, 21-25.
- E.P.A., 1992. Control of pathogens and vector attraction in sewage sludge (including domestic septage) under 40 CFR Part. 503. EPA/625/R-92/013
- GASPARD P. P., 1995. Contamination parasitaire dans l'environnement : Prospective pour une gestion des risques sanitaires. Thèse Université Henri Poincaré, Nancy 1,228 p.
- GOLDSTEIN N., YANKO W.A., WALKER J.M., JAKUBOWSKI W., 1988. Determining pathogens levels sludge products. Biocycle, Mai-Juin, 1988, 44-47.
- UNECHE N., 1989. Helminth **ova** in **soil** from children's playground in **Calabar** Nigeria. Cent. Afr. J. Med., 35, 7, 432-434.

2 - Groupe de Travail "Eléments traces"

Evaluation des risques résultant de la présence d'éléments-traces dans les boues résiduaires

C1. BOUDENE, A.B. DELMAS, L. ORSINI (avec la collaboration de Mmes Petit et Rouban et de M. Bédékovic)

- 1 EVALUATIONS DU RISQUECHIMIQUE
 - 1.1 CHOIX DES ÉLÉMENTS-TRACES RETENUS POUR LEUR ÉVENTUELLE TOXICITÉ
 - 1.2 Facteurs déterminant la présence d'éléments-traces DANS LES BOUES
 - 1.2.1 Notions de typologie
 - 1.2.2 Teneurs des boues
 - 1.3 Epandage
 - 1.4 METABOLISME DANS LE SOL
 - 1.4.1 Les grands traits de la localisation des métaux lourds dans le sol
 - 1.4.2 Les sources de métaux polluants
 - 1.4.3 Les transferts entre compartiments du sol
 - 1.4.4 Transfert dans la plante

Conclusion

- 1.5 Modes d'exposition de l'homme
 - 1.5.1 Respiratoire
 - 1.5.2 Cutané
 - 1.5.3 Digestif
- 1.6 RECOMMANDATIONS

BIBLIOGRAPHIE

ANNEXE

L EVALUATIONS DU RISQUE CHIMIQUE

Cette Cvaluation relève de l'application de l'équation générale que l'on retrouve dans un nombre sans cesse croissant de publications anglo-saxonnes :

$RISK = HAZARD \times EXPOSITION$

On peut dire, en français, que le risque que subit un individu, ou une population, au contact d'un polluant est le produit de deux facteurs : le danger au sens absolu du terme (intrinsèque) qui correspond au terme de "hazard", et l'exposition.

- Cette toxicité intrinsèque est surtout à envisager pour le toxicologue sous l'angle de la toxicité chronique, la plus insidieuse, qui résulte de la pénétration, longtemps prolongée dans l'organisme, de petites doses, apparemment anodines, mais dont la sommation peut être à l'origine de l'apparition de lésions organiques graves, parfois irréversibles.
- En ce qui concerne l'exposition, son aspect quantitatif, c'est à dire la concentration du polluant dans la boue dune part, et la fréquence de ses contacts avec l'organisme d'autre part, joue évidemment un rôle important, mais il ne faut pas négliger son aspect qualitatif qui, suivant la destination de la boue, conditionne les possibilités de pénétration d'un polluant dans l'organisme (voies respiratoire, cutanée, digestive). Le rendement de cette pénétration varie en effet suivant la nature de ces différentes voies.
- Enfin, un autre facteur est également à prendre en compte dans l'évaluation du risque, celui de la "spéciation" du polluant.

Ce terme anglo-saxon, qu'il est impossible de traduire exactement en français, couvre l'ensemble des propriétés physiques et chimiques qui conditionnent les potentialités biologiques et notamment la biodisponibilité d'un polluant aussi bien dans un organisme végétal ou animal, que dans un sol.

Rappelons succinctement que, parmi les <u>propriétés physiques</u> qui intéressent le toxicologue, il faut citer la volatilité, l'hydrosolubilité, la liposolubilité, 'sans oublier, pour les polluants particulaires, la granulométrie et la forme cristalline qui peuvent être à l'origine de phénomènes de réactivité de surface pouvant donner lieu à la formation de radicaux libres.

Les <u>propriétés chimiques</u> qui intéressent le toxicologue sont principalement la valence pour les polluants minéraux, mais surtout, pour les organiques, la ou les fonctions, ainsi que la configuration moléculaire, qui conditionnent la relation structure / activité.

Mais la connaissance de cette "spéciation" d'un polluant dans un milieu complexe, tel qu'un sol contaminé, exige la mise au point de techniques analytiques nouvelles, non dénaturantes, permettant, sans extraction préalable, de préciser sous quelle forme physico-chimique le polluant étudié se trouve lié aux différents ligands de son substrat.

On peut citer comme exemple de ce type de techniques, trouvées dans la littérature récente, celui de la résonance magnétique nucléaire (RMN) dont les applications à l'analyse de la matière organique du sol a fait récemment l'objet d'un article de synthèse très détaillé (1). Cette technique moderne a déjà été employée pour la "spéciation" de l'aluminium dans les végétaux (2) et du mercure dans différents milieux biologiques (3). Mais la résonance magnétique nucléaire présente l'inconvénient d'être une technique encore rare et coûteuse.

D'où l'utilisation dans le même but d'autres techniques modernes, plus abordables, également performantes mais moins respectueuses de l'intégrité de la matrice organique.

On peut citer à leur sujet :

- -l'utilisation de résines échangeuses d'ions pour la "spéciation" des métaux lourds dans des effluents de décharge (4),
- -l'emploi de la spectrométrie d'absorption atomique sous différentes formes (5) (6) pour les métaux lourds également,
- -enfin celui de la spectroscopie d'absorption (XAS) ou de fluorescence (EXAFS) des rayons X pour la "spéciation" du sélénium (7) ou du plomb (8) dans les sols.

Cette notion de "spéciation" est extrêmement importante dans le cas des métaux dont elle ne conditionne pas seulement la biodisponibilité mais aussi la réglementation. Il ne faut pas oublier en effet que la réglementation européenne a eu jusqu'alors tendance à privilégier, par exemple, la classification comme cancérogène d'un "élément métallique" sans distinguer l'"espèce chimique" sous laquelle il se présente dans l'environnement de l'homme.

• 1.1. Choix des éléments-traces retenus **pour** leur éventuelle toxicité

Une première indication dans la recherche d'une certaine priorité dans ce choix a **été** fournie en France par la norme NF U **44-041** (juillet 1985) concernant les matières fertilisantes - boues des ouvrages de traitement des eaux usées urbaines.

Rappelons qu'elle concerne les éléments suivants : mercure, plomb, cadmium, cuivre, chrome, nickel, zinc.

L'année suivante, la directive européenne n° 86/278/CEE du 12 juin 1986, relative à la protection de l'environnement, et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues des stations d'épuration, publie une liste concernant les mêmes éléments, en y ajoutant le sélénium.

Il faut d'abord remarquer que cette liste restreinte peut constituer un premier choix déjà pleinement justifié sur le plan toxicologique. Elle renferme en effet un certain nombre de métaux dits "lourds" qui retiennent l'attention de l'OMS depuis plusieurs décennies.

C'est en 1972 en effet, que le comité mixte FAO/OMS (9) d'experts des additifs alimentaires, réuni à Genève, publia dans son seizième rapport une évaluation de trois contaminants des denrées alimentaires : le mercure, le plomb et le cadmium. Ce même Comité dans son trente-troisième rapport publié à l'issue de la réunion tenue à Genève en 1988 (10) compléta, en les confirmant, les décisions prises en 1972, que l'on peut résumer de la manière suivante :

Ces trois métaux lourds ont retenu l'attention des toxicologues en raison de leur pouvoir cumulatif dans l'organisme, qui est responsable, à long terme, d'une toxicité chronique dont la 'manifestation est souvent insidieuse.

Le Comité mixte FAO/OMS a fixé pour chacun d'eux une Dose Hebdomadaire Tolérable Provisoire (DHTP). La portée pratique d'une telle dose limite amène à en développer les différentes composantes :

- il s'agit d'une dose <u>hebdomadaire</u>, et non journalière, en raison de l'hétérogénéité dans le temps de l'apport alimentaire de ces trois métaux; ils se répartissent en effet de manière très différente suivant la nature de la ration alimentaire journalière.
- le comité a qualifié cette dose du **terme** <u>tolérable</u> et non <u>admissible</u> car il s'agit, non pas d'un additif mais d'un contaminant dont on ne peut que subir la **présence** dans l'alimentation en raison du caractère inévitable de sa présence dans notre environnement.

C'est l'occasion de souligner que ces trois métaux lourds, ainsi d'ailleurs que nombre d'autres contaminants minéraux que nous envisagerons, sont des éléments-traces ubiquitaires qui sont, de ce fait, des contaminants "naturels" de notre alimentation et qui ne peuvent être considérés comme toxiques qu'au delà du dépassement de leur DHTP.

Dans certaines conditions, les parties aériennes des plantes peuvent accumuler des quantités inhabituelles d'éléments-traces. Le cas se produit par exemple lorsque les cultures sont proches d'une source de pollution atmosphérique ou sont irriguées par aspersion avec des eaux riches en éléments-traces. Pour certains éléments-traces (Hg, Se), on a constaté l'absorption de composés volatils (vapeurs, composés biométhylés) émis par le sol.

Des bilans tirés d'expériences de longue durée (pluriannuelles) tendent à montrer que les exportations annuelles des éléments-traces par les végétaux sont de l'ordre du "pour cent" des apports cumulés, ce qui montre qu'ils s'accumulent dans les autres compartiments de l'environnement (sol, eaux, air).

Selon GOMEZ (22), l'apport des boues modifie la répartition des métaux dans le maïs par rapport au fumier : on observe en effet une diminution du pourcentage du cuivre et du zinc affecté au grain et une augmentation concomitante du pourcentage dans les feuilles correspondantes. Par contre, le nickel et le plomb donnent lieu à un transfert accru dans le grain à la suite de l'addition de boue. Malgré le caractère massif des quantités apportées par ces dernières, on ne note pas de changement des allocations de manganèse (boues d'Ambarès) et de cadmium (boues Louis Fargue) dans les différents organes du végétal. Le tableau 5 en annexe donne une indication des quantités de métal qui sont recyclées annuellement par le biais des résidus de récolte. Si on les rapproche des quantités exportées par les récoltes (tableau 7 en annexe), on vérifie l'aptitude du cadmium à donner lieu à un turnover marqué.

En dehors d'études ponctuelles, les données sur les teneurs en éléments traces des productions végétales sont plutôt rares.

Conclusion

Cette synthèse de travaux effectués dans les domaines de l'altération, de l'agronomie, de la géochimie des transferts, montre que le cycle des métaux de la parcelle vers l'exutoire, doit d'abord être envisagé en termes de stabilité ou d'instabilité des compartiments dans lesquels le métal peut être accumulé. Il est ici nécessaire de distinguer les puits géochimiques plus ou moins stables des résidus d'apport anthropique qui ont résisté à l'altération.

On est donc conduit à distinguer trois sortes de risques vis à vis d'un transfert vers l'exutoire :

- la fuite sous forme de solution,.
- il y a des risques de flux plus ou moins importants par déstabilisation d'un compartiment d'accumulation instable (sulfures, matière organique),
- il y a enfin des risques de **transport** par érosion de compartiments plus ou moins stables, situés à la surface du sol (matière organique, oxyhydroxydes, phosphates).

Il apparaît d'autre part que, dès lors que l'on ne considère plus seulement une accumulation des métaux dans le sol, mais encore une possible remobilisation, le problème des pollutions métalliques se déplace de l'échelle du profil, comme cela était le cas jusqu'alors, à l'échelle du paysage.

C'est en prenant en compte à la fois la dimension temporelle (stabilité/instabilité) et la dimension spatiale (localisation) que l'on pourra mieux comprendre où se situe le risque sanitaire vis à vis des métaux polluants de la parcelle au bassin et vers la mer et que l'on pourra tenter de le gérer.

• 1.5. Modes d'exposition de l'homme

15.1. Respiratoire:

Ce mode de pénétration dans l'organisme doit être envisagé principalement sous forme de particules inhalées lors de la manipulation, et notamment de l'épandage de boues sous formes pulvérulentes. Il s'agit surtout, dans ce cas, d'une exposition professionnelle dont les risques sanitaires qui peuvent en résulter sont donc réglementairement placés sous le contrôle d'un médecin du travail.

Dans le cas de l'hygiène publique, c'est à dire d'un individu séjournant au voisinage **d'un** champ d'épandage, le risque d'inhalation de poussières paraît, sauf exception, négligeable.

Le risque d'inhalation de certains éléments-traces sous forme de gaz ou de vapeurs paraît également négligeable mais, théoriquement, il ne doit pas cependant être exclu. On sait en effet que certains éléments, métalliques mais surtout métalloidiques, sont capables de donner, sous l'influence de bactéries ou de mycobactéries, des composés organiques volatils.

Le cas du mercure est bien connu depuis le célèbre accident de MINAMATA, mais il a, à notre connaissance, été décrit essentiellement dans le cas d'environnements aquatiques.

Parmi les **métalloïdes** (ou métaux en possédant certaines propriétés), susceptibles de donner des dérivés on doit citer l'arsenic, l'antimoine, le sélénium, le bismuth et le tellure.

Ce n'est que dans le cas de l'arsenic que nous avons retrouvé la mention de travaux faisant référence à la transformation de l'arsenic inorganique en arsines sous l'influence de champignons inférieurs Penicillium brevicaule, Aspergillum, Mucor, Fusarium, etc... ou encore par des bactéries anaérobies du sol telles que Pseudomonas et Alcaligenes (MITCHELL et col. 1995) (23).

15.2.Cutané:

Le rôle, de la peau, envisagée comme voie de pénétration **et/ou** cible de la toxicité des contaminants telluriques avait été jusqu'alors très largement sous-estimé mais l'intérêt porté à l'actualité toxicologique de la dioxine (24) (25) a sans doute contribué à attirer l'attention des hygiénistes sur ce nsque.

D'après JOHNSON et IUSSEL (26), ce risque est le produit de 2 facteurs : la surface de peau exposée et l'adhérence du sol à cette dernière. Ce'second facteur a été particulièrement retenu et étudié par KISSEL, RICHTER et FENSKE (27) qui estiment que la granulométrie du sol est la variable la plus importante : les particules d'une taille inférieure à 150 μ m seraient celles qui 'montrent la plus grande adhérence à la peau.

Des essais de souillure de la peau par le sol ont été effectuées, surtout au niveau des mains qui représentent souvent, pour des raisons professionnelles ou non, la partie du corps la plus contaminée. D'après KISSEL et col. (28) (29) la quantité de sol souillant les mains peut varier dans des proportions considérables correspondant parfois à plus de 5 ordres de grandeur (de 10^{-3} à 10^2 mg/cm). Mais ces auteurs estiment que la moyenne observée notamment au niveau de la face palmaire, dont la surface est généralement estimée à 160 cm^2 , est de l'ordre de $0,2 \text{ mg/cm}^2$. Il faut signaler cependant que des quantités de 1 mg/cm^2 ont été couramment observés au niveau de la peau des mains, pieds, bras et jambes d'enfant jouant dans la boue.

Le pourcentage de pénétration cutanée du toxique dans l'organisme dépend de quatre paramètres priricipaux :

- le taux de pollution du sol,
- la quantité de polluant déposé sur la peau, compte-tenu des facteurs envisagés ci-dessus,
- le temps de contact avec l'épiderme,
- la liposolubilité du polluant.

L'importance de ce dernier paramètre est bien connu en médecine du travail où il a Cté très étudié depuis de nombreuses années. Dans le cas des sols, il est certainement à prendre en compte, notamment en ce qui concerne les polluants organiques parmi lesquels on va retrouver le plus grand nombre de molécules liposolubles susceptibles de contaminer le sol; c'est le cas des pesticides et plus précisément des herbicides par exemple (30).

Par contre, dans le cas des métaux, mises à part leurs formes organiques (plomb et mercure alkyles) on peut estimer que ce passage transcutané est négligeable.

Il faut cependant inclure, dans le risque cutané, celui correspondant à la peau envisagée comme organe cible.

C'est surtout à propos de l'accident de SEVES0 que le risque de cancer par contact avec un sol souillé a été évoqué à partir de la dioxine (24) mais on peut surtout envisager un risque plus grand de sensibilisation cutanée, par contact répété avec des sols souillés par certains métaux réputés pour leur réactivité tels que le chrome ou le nickel.

Dans le cas du chrome, certains auteurs ont même envisagé d'établir une corrélation entre ce risque de sensibilisation et la teneur en chrome du sol; c'est ainsi que PAUSTENBACK et col. (31) estiment qu'une concentration dans le sol de 350 à 550 ppm de chrome hexavalent ne devrait pas provoquer de dermatite allergique de contact pour plus de 99% dune population déjà sensibilisée.

15.3 Digestif:

La voie digestive est en fait la grande voie de contamination consécutive à la pollution du sol par ces éléments-traces.

On doit penser en priorité à l'eau de consommation qui doit représenter le souci majeur pour l'hygiéniste. Ce point a déjà été développé dans ce texte.

Mais la consommation de végétaux cultivés sur un sol pollué est aussi un autre mode de contamination important. Rappelons que cette contamination peut se faire par voie systémique et qu'il importe de connaître les particularités d'un élément-trace vis à vis de ses possibilités de pénétration et de stockage dans le végétal.

Cette importante question a déjà été abordée dans ce texte; rappelons simplement, d'un point de vue toxicologique, la différence saisissante qui existe entre le cadmium qui passe facilement la barrière racinaire et le plomb qui ne le fait qu'au delà d'une concentration déjà importante dans le sol.

C'est l'occasion de rappeler que le végétal est, de ce fait, une source non négligeable de contamination de l'homme par le cadmium qui est le plus cumulatif de tous les éléments-traces envisagés.

Mais le végétal peut être aussi contaminé directement par des retombées atmosphériques, ou surtout dans le cas qui nous préoccupe, par un phénomène de flocage à partir des sols lors d'orages violents. Signalons toutefois que cette contamination superficielle est, en général, plus facile à éliminer par lavage.

Enfin, la consommation de tels végétaux pollués par les herbivores est un moyen de contamination indirecte de l'homme qui en consomme la chair : d'une manière générale, le muscle est peu responsable d'un tel apport toxique à la ration alimentaire mais il n'en est pas de même des abats qui concentrent, d'une manière générale, les métaux lourds. Dans le cas du cadmium, notamment, l'exemple du rein est significatif car nous avons déjà souligné que sa concentration dans cet organe ne cesse d'augmenter au cours de la vie de l'individu; il faut donc savoir qu'elle est d'autant plus importante que la date d'abattage de l'animal est tardive.

Cette contamination de l'herbivore peut même être directe dans le cas de certaines espèces comme les ovins qui ingèrent, par broutage, de 5 à 10 % de terre dans leur ration alimentaire.

Le phénomène est à rapprocher de celui de la "pica" qui a été souvent évoqué à propos de l'intoxication saturnine du jeune enfant. On sait en effet que dans les premières années de sa vie, l'enfant a l'habitude de se lécher les doigts et même de porter à sa bouche tout ce qui lui tombe sous la main. Il y a donc une double possibilité d'apport digestif, par un sol contaminé, indirectement par léchage des doigts, mais aussi directement par ingestion de terre.

On estime qu'un jeune enfant peut absorber jusqu'à 5 grammes de terre par jour.

L'effet en est d'autant plus grave dans le cas des métaux lourds (Cd, Pb, Hg), qu'ils ont, chez le jeune enfant jusqu'à l'âge de 5 ou 6 ans, un coefficient de pénétration intestinale (50 %) très supérieur à celui de l'adulte (5 à 10 %).

Signalons enfin que ces coefficients de pénétration intestinale varient également suivant la biodisponibilité du contaminant dans le sol.

De nombreux travaux sont actuellement effectués à ce sujet. Ils montrent l'importance de ces variations suivant la spéciation de l'élément et la composition du sol, argileux ou sablonneux par exemple (32).

La quantification de cette biodisponibilid présente, pour l'hygiéniste, un intérêt évident; elle a été envisagée, dans le cas du plomb et de l'arsenic, à l'aide de modèles **expérimentaux** (33).

Ils démontrent d'une manière générale que la présence dans le sol du contaminant métallique diminue sa biodisponibilid digestive, à quantité ingérée égale par rapport à d'autres milieux tels que l'eau par exemple. De façon plus précise, on peut mentionner à ce propos deux expérimentations effectuées dans ce but sur le rat Fischer dans le cas du plomb (34) et sur le singe (cynomolgus) dans celui de l'arsenic (35).

• 1.6. Recommandations

- 1. Au plan sanitaire, les éléments-traces des boues résiduaires peuvent induire deux types de risque : risque respiratoire et cutané
 - risque digestif
- 2. Les éléments-traces apportés au sol s'accumulent ou sont à nouveau recyclés dans le milieu. A long terme seule leur élimination à la source permet de les soustraire de ce cycle.
- 3. Les recommandations qui fixent une quantité de boues à Cpandre au cours d'une période donnée fixée une bonne fois pour toute, ne sont plus adaptées aux bonnes pratiques agricoles fondées sur la fertilisation raisonnée sur la base de la recherche et du respect d'un équilibre entre les besoins des cultures et les fournitures par le sol et la fertilisation.
- 4. Comme pour les autres matières fertilisantes, les teneurs en éléments-traces exigibles sont celles susceptibles d'être respectées sur la base de la meilleure technologie du moment. Pour atteindre ce cas idéal, des délais de mise à niveau doivent être prévus et assortis de valeurs-guides correspondant à des teneurs d'éléments-traces dans les boues à ne pas dépasser.
- 5. A partir de ces valeurs-guides, des doses-guides rapportées à l'unité de surface et à la fréquence des apports devraient être **fixées**.
- 6. Sur justification, ces valeurs-guides devraient pouvoir être temporairement abaissées ou dépassées, dans des limites fixées, si les conditions locales le permettent.
- 7. Le manque de données devrait être rapidement comblé.
- 8. Les résultats des suivis "analyses des boues", "plans d'épandage" et "analyses des récoltes" devraient être systématiquement recueillis et centralisés en vue d'une meilleure exploitation des données et à plus grande échelle.
- 9. La détermination de valeurs guides, relatives aux teneurs des boues et des sols sur des bases écotoxicologiques nécessite la réalisation de campagnes d'analyses des boues et des sols qui les reçoivent.

dangereuses. Ces dernières méthodes utilisent des cibles biologiques choisies pour leur sensibilité vis à vis des substances polluantes, leur facilité d'élevage ou de culture dans des conditions reproductibles et leur représentativité vis à vis des effets potentiels sur les organismes vivants des principaux écosystèmes identifiés comme des cibles prioritaires et en particulier l'homme. Bien qu'il ne s'agisse que dune identification des dangers, cette méthode a prouvé son intérêt en termes d'aide à la décision en permettant de prendre en compte l'ensemble des facteurs importants d'exposition et d'effets potentiels dans le cadre d'une démarche globale d'évaluation des matériaux potentiellement pollués comme les boues.

5- CONCLUSIONS

- 1. Les données recueillies et présentées ci-dessus, qui comprennent notamment des analyses d'eaux usées et de boues résiduaires réalisées en France sur un nombre limité de stations d'épuration, montrent qu'il y a présence généralisée de micropolluants organiques dans les boues urbaines. Ces données sont globalement en accord avec celles publiées dans d'autres pays industrialisés.
- 2. Une méthode d'évaluation des risques engendres par la présence de ces substances dans les boues d'épuration a été **développée** en France, selon une démarche par compartiments (sol, faune et flore, homme, eaux superficielles), utilisant en première intention des **données** bibliographiques sur la toxicité et le comportement (transfert, absorption) des micropolluants étudiés.
- 3. A priori, les risques sanitaires engendrés par les boues d'épuration sont dus à deux types d'exposition : directe, pour les personnes en charge de l'épandage ; indirecte, à travers différents composants de l'alimentation issus de sols recevant des boues.
- 4. En ce qui concerne l'exposition indirecte, la voie de contamination par les plantes, en particulier, ne semble pas présenter un risque très important, en raison de la métabolisation (conjugaison), ou de l'absorption très limitée.
- 5. La voie de contamination passant par l'animal, donc en cas d'épandage sur pâturage, semble présenter un risque plus grand ; ceci implique notamment d'éviter le retour trop rapide du bétail après l'épandage ; cette exigence figure déjà dans la **réglementation**, mais devrait éventuellement faire l'objet dune surveillance plus rigoureuse.

6- Recommandations

1. L'état actuel de contamination des boucs d'épuration par des micropolluants organiques est insuffisamment connu; il convient donc d'étendre les programmes de mesures, en termes de nombre de substances analysées, de nombre de stations couvertes et de suivi dans le temps, ce qui permettra de savoir s'il y a lieu d'élargir le champ de la réglementation à d'autres paramètres que les métaux, et de mettre en place des valeurs-seuil. Cette recommandation s'applique en particulier aux études préalables à la mise en agriculture, ainsi qu'au suivi des boues après autorisation.

2. Des valeurs-seuil devraient être retenues pour les micropolluants fréquemment présents dans les boues d'épuration. Ces valeurs-seuil devraient être élaborées par évaluation des risques conduite par exemple sur la méthode rapporte au paragraphe 4.1. Toutefois, il ne sera nécessaire d'appliquer ces seuils, notamment dans un cadre réglementaire, que si les concentrations observées sont susceptibles d'atteindre ou de dépasser les valeurs-seuil issues de l'évaluation des risques ; d'après les données actuellement disponibles en France, c'est le cas pour 6 hydrocarbures polycycliques aromatiques (fluoranthène, benzo(b)- et (k)fluoranthènes, benzo(ghi)pérylène, benzo(a)pyrène et indéno(123cd)pyrène), et pour les PCB, représentés par 7 congénères ; cela ne parait en revanche pas nécessaire pour les trichlorobenzènes. Les boues d'épuration dépassant une ou plusieurs valeurs-seuil seraient ensuite gérées selon des modalités similaires à celles appliquées actuellement en cas de dépassement des concentrations-limite en métaux : mise en décharge ou incinération à une température appropriée.

- 3. Pour les cas de contamination plus **spécifiques** (ou suspicion de contamination), une identification du danger conduite selon la méthode **évoquée** au paragraphe 4.2 peut être recommandée.
- 4. Le risque lié à l'exposition directe (personnels manipulant les boues) devrait être évalué avec précision pour des composes fréquemment rencontres dans les boues.
- 5. Le risque de transfert vers les eaux superficielles, évalue en référence à deux scénarios différents, conduit à des valeurs-seuil extrêmement basses pour le scénario extrême. Ce scénario extrême ne peut en principe pas advenir, si les conditions fixées dans les règlements sanitaires départementaux sont appliquees. Il ne parait donc pas nécessaire de renforcer les prescriptions réglementaires sur ce point.
- 6. La base réglementaire actuelle, centrée sur une quantité épandue cumulée de 30 tonnes (matières sèches) pour 10 ans, et de 10 tonnes (matières sèches) pour 3 ans ne parait plus adaptée, ni aux pratiques réelles qui tendent à limiter les apports en fonction des teneurs en azote et en phosphore, ni aux risques sanitaires et autres induits par les micropolluants éventuellement présents. D'autre part, la voie de transfert présentant le plus de risques pour l'homme est celle mettant en jeu l'ingestion de sol par des animaux, puis passage dans les produits animaux. Il parait donc préférable :

de recommander en général des apports fractionnés sur une base biennale ou triennale ; d'ajuster l'apport maximal cumulé sur pâturages à la baisse, par exemple à 15 tonnes de matière sèche par hectare pour 10 ans.

Bibliographie

- ADEME (1995) Jauzein M., Feix I., Wiart J., Les micropolluants organiques dans les boues d'épuration urbaines (Convention ADEME / IRI-I Environnement n°2750008)
- Alcock R.E. & Jones K.C. (1993a) Polychlorinated biphenyls in digested UK sewage sludges, Chemosphere, 26, 2199-2207
- Alcock R.E. & al. (1993b) Long term changes in the Polychlorinated Biphenyl content of United Kingdom soils, Environ. Sci. Technol., 27, 1918-1923
- Alcock R.E. & al. (1995) The influence of multiple sewage sludge amendments on the PCB content of an agricultural soil over time, Environmental Toxicology & Chemistry, 14, 553-560
- Berset J.D., Holzer R. (1995) Organic micropollutants in Swiss agriculture: distribution of polynuclear aromatic hydrocarbons (PAH) and polychlorinated biphenyls in soil, liquid manure, sewage sludge and compost samples: a comparative study, Internat. Journ. of Environ. Analyt. Chemistry 59, 2, 145-165
- Chemistry, 59, 2, 145-165
 Berthouex P.M., Gan D.R. (1991) Loss of PCBs from municipal-sludge-treated farmland; Jour. Environ. Engineering (New York), 117, 5-24
- Connor M.S. (1984) Monitoring sludge-amended agricultural soils, Biocycle, 25, 47-51
- Diercxsens P., de Weck D., Borsinger N., Rosset B., Tarradellas J. (1985) Earthworms contamination by PCBs and heavy metals, Chemosphere, 14, 51 l-522
- Diercxsens P., Tarradellas J. (1987) Soil contamination by some organic micropollutants related to sewage sludge spreading, Internat. Journ. of Environ. Analyt. Chemistry, 28, 143-159
- Fries G.F. (1982) Potential polychlorinated biphenyl residues in animal products from application of contaminated sewage sludge to land, Jour. Environ. Quality, 11, 14-20
- Gelbert G., Hasselbach G., Georgii S., Brunn H. (1992) Chlorkohlenwasserstoffe (Dioxine und Furane, PCB, Pestizide) und polycyclische aromatische Kohlenwasserstoffe in Acker- und Grundlandboden Ergebnisse aus langjahrigen Klarschlamm-Feldversuchen; Agribiological Research, 45, 77-87
- Gomez A. Leschber R. & Colin F., (1985), Sampling techniques for sludges, soils and plants, Proc. of a Seminar organized by the C.E.C., Bordeaux 6-7 nov 1985, published in "Sampling problems for the chemical analysis of sludge, soils and plants", Elsevier Applied Publishers pp 80-90 (London / New York, 1986)
- Gosselin B., Naylor L.M., Mondy N.I. (1986) Uptake of PCBs by potatoes grown on sludge-amended soils, American Potato Jour., 63, 563-566
- Gosset & al (1983) Predicting the bioaccumulation of organic compounds in marine organisms using octanol/water partition coefficients, Mar. Poll. Bull., 14, 387-392