

Les micro-polluants organiques dans les boues d'épuration

Autor(en): **Tarradellas, J. / Diercxsens, P.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Schweizer Archiv für Tierheilkunde SAT : die Fachzeitschrift für Tierärztinnen und Tierärzte = Archives Suisses de Médecine Vétérinaire ASMV : la revue professionnelle des vétérinaires**

Band (Jahr): **125 (1983)**

PDF erstellt am: **21.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-593177>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Les micro-polluants organiques dans les boues d'épuration

J. Tarradellas et P. Diercxsens

Les boues d'épuration des eaux usées contiennent un grand nombre de micro-polluants organiques. Cependant, cette question a fait l'objet, jusqu'à présent, d'une moindre attention que le problème des métaux lourds dans les boues. Il semble que le type de micro-polluants organiques et leur concentration dans les boues dépendent essentiellement des activités du bassin versant de la STEP. Beaucoup de ces polluants organiques se trouvant adsorbés sur les particules en suspension dans les eaux usées, leur concentration dans les boues est étroitement liée aux phénomènes de sédimentation dans les STEP [1].

1. Types de micro-polluants organiques

Dans la littérature, on relève que 10 grandes classes de micro-polluants organiques sont les plus souvent citées à propos des boues d'épuration. Il s'agit d'abord de cinq classes de produits à propos desquels peu d'études ont été consacrées au sujet des problèmes qu'ils posent dans les boues d'épuration:

- Les dérivés halogénés à 1 ou 2 carbones [2].

(par ex. $\text{CH}_3\text{-Cl}$ Chlorométhane
 CHCl-CCl_2 Trichloroéthylène)

- Les paraffines chlorées [2]

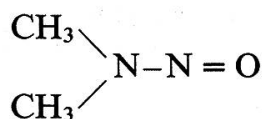
(de 10 à 20 at. de carbone, ayant de 10 à 70% de teneur en chlore).

- Les agents de surface [2]

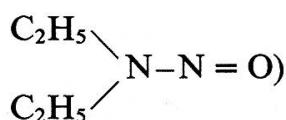
(4 grands groupes: anioniques: sulfonates, sulfates, phosphates
cationiques: ammonium, pyridinium
amphotères: acides amino-carboxyliques
non ioniques: alkyl, acyl, alkylaryl ...)

- Les nitrosamines [2, 12]

(2 ex.: dimethyl nitrosamine

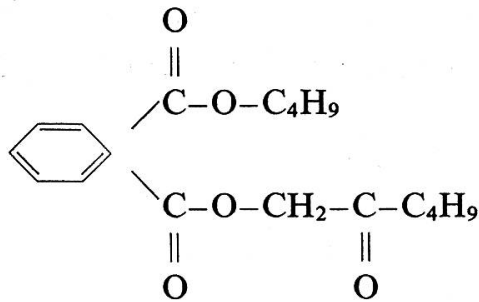


diethyl nitrosamine



– Les esters phtaliques (plastifiants) [2]

(ex.:



Butylglycolbutylphthalate)

Cependant, par leur toxicité, leur persistance dans l'environnement et leur concentration dans les boues, les 5 classes suivantes ont été mieux étudiées et paraissent devoir faire l'objet d'une particulière attention:

Les aromatiques halogénés

Les plus importants sont les PCB, utilisés depuis 1930 et qui possèdent des propriétés électriques et de résistance thermique et chimique qui les rendent précieux pour de nombreuses utilisations [3].

	NOM DU POLLUANT	FORMULE	Abrv.	FORMULE BRUTE	POIDS MOLECULAIRE
	POLYCHLOROBIPHENYLES		PCB	$C_{12}H_8Cl_2$ à $C_{12}Cl_{10}$	223 499 à
	POLYBROMOBIPHENYLES		PBB	$C_{12}H_8Br_2$ à $C_{12}Br_{10}$	312 944 à
	POLYCHLOROTERPHENYLES		PCT	$C_{18}H_{11}Cl_3$ à $C_{18}Cl_{14}$	333,5 713 à
	POLYCHLORONAPHTALENES		PCN	$C_{10}H_6Cl_2$ à $C_{10}Cl_8$	197 404 à
	POLYCHLORODIPHENYL-ETHERS		PCDPE	$C_{12}H_8Cl_2O$ à $C_{12}Cl_{10}O$	239 515 à
	POLYCHLORO-DIBENZOFURANES		PCDF	$C_{12}H_6Cl_2O$ à $C_{12}Cl_8O$	237 444 à
	POLYCHLORO-DIBENZODIOXINES		PCDD	$C_{12}H_6Cl_2O_2$ à $C_{12}Cl_8O_2$	253 460 à

Tableau 1: Micro-polluants organo-chlorés de boues d'épuration

Ces produits sont réglementés en Suisse depuis 1972. Il est à noter que la plus grande partie des PCB fabriqués sont encore utilisés soit dans des appareils électriques, soit qu'ils soient présents en traces dans des produits de consommation.

Keck distingue sur les animaux 3 types d'effets dus aux PCB [4]:

- l'action sur les fonctions hépatiques:
 - augmentation du poids du foie,
 - accélération de la synthèse des enzymes d'oxydation microsomiales.
- l'action sur le système endocrinien:
 - effet sur le métabolisme des hormones sexuelles,
 - action au niveau de la thyroïde (trouble du comportement migratoire),
 - action sur le cortex surrénal (diminution de la résistance aux facteurs du milieu).
- l'action sur les systèmes de défense immunitaires (effet immuno-dépresseur).

On trouvera, sur le *tableau 1*, les formules générales des polychlorobiphényles, polybromobiphényles, polychloroterphényles et polychloronaphtalènes.

Les aromatiques chlorés avec oxygène

Ce sont surtout les:

- chloro-phénols,
- polychlorodibenzofuranes (PCDF)
- polychlorodibenzo-para-dioxine (PCDD).

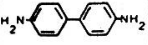
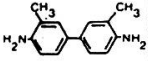
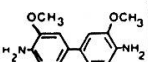
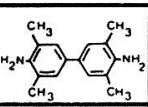



	NOM DU POLLUANT	FORMULE	Abrv.	FORMULE BRUTE	POIDS MOLECULAIRE
	BENZIDINE			$C_{12}H_{12}N_2$	184
	O-TOLIDINE			$C_{14}H_{16}N_2$	212
	BIANISIDINE			$C_{14}H_{16}N_2O_2$	244
	3,3'-5-5' TETRAMETHYLBENZIDINE			$C_{16}H_{20}N_2$	240
	1-NAPHTHYLAMINE			$C_{10}H_9N$	143
	2-NAPHTHYLAMINE			$C_{10}H_9N$	143
	N,N-DIMETHYL- 1-NAPHTHYLAMINE			$C_{12}H_{13}N$	171

Tableau 2: Exemples d'amines aromatiques









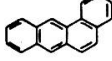
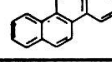


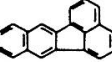

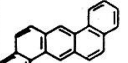

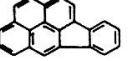
N ^o	NOM DU PAH	FORMULE	Abrv.	FORMULE BRUTE	POIDS MOLECULAIRE
1	NAPHTHALENE		Nph	C ₁₀ H ₈	128
2	ACENAPHTHENE		Ace	C ₁₂ H ₁₀	154
3	ACENAPHTHYLENE			C ₁₂ H ₈	152
4	FLUORENE		Fl	C ₁₃ H ₁₀	166
5	PHENANTHRENE		Phe	C ₁₄ H ₁₀	178
6	ANTHRACENE		An	C ₁₄ H ₁₀	178
7	FLUORANTHENE		Ft	C ₁₆ H ₁₀	202
8	PYRENE		Py	C ₁₆ H ₁₀	202
9	BENZ(a)ANTHRACEN		B(a)A	C ₁₈ H ₁₂	228
10	CHRYSENE		Chy	C ₁₈ H ₁₂	228
11	BENZO(e)PYRENE		B(e)Py	C ₂₀ H ₁₂	252
12	BENZO(b)- FLUORANTHENE		B(b)Ft	C ₂₀ H ₁₂	252
13	BENZO(k)- FLUORANTHENE		B(k)Ft	C ₂₀ H ₁₂	252
14	BENZO(a)PYRENE		B(a)Py	C ₂₀ H ₁₂	252
15	DIBENZ(ah)- ANTHRACENE		diB(ah)A	C ₂₂ H ₁₄	278
16	BENZO(ghi)- PERYLENE		B(ghi)P	C ₂₂ H ₁₂	276
17	INDENO(123-cd)- PYRENE		I(123- cd)Py	C ₂₂ H ₁₂	276

Tableau 3: Principaux hydrocarbures polyaromatiques (PAH)

Les chloro-phénols sont des produits très souvent utilisés, en particulier pour le traitement du bois, tandis que PCDF et PCDD sont présents sous forme de traces infimes dans certains produits (herbicides, PCB) ou sont formés dans certains processus d'incinération, par exemple lors de l'incinération d'ordures ménagères contenant des PCB [5]. Leur formule se trouve sur le *tableau 1*.

Les amines aromatiques

Ces produits proviennent de la dégradation de certains herbicides, comme les phénylcarbamates; ils peuvent être des résidus d'effluents industriels, mais on peut les rencontrer dans les eaux usées domestiques du fait du lavage des tissus colorés [6].

Ce dernier fait ne peut que s'aggraver à cause de l'importation de plus en plus importante de textiles d'Extrême-Orient dans les pays industrialisés. Ainsi pour la benzidine: au moment de son interdiction dans les pays industrialisés, les colorants en question contenaient 20 ppm de benzidine; actuellement, les colorants utilisés dans les textiles provenant de pays tels que l'Inde, la Corée du Sud ou Singapour, contiennent plus de 100 ppm de benzidine. Les amines aromatiques sont des produits cancérogènes, on en trouvera quelques exemples dans le *tableau 2*.


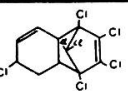
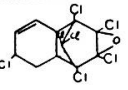
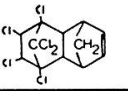
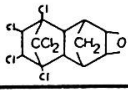
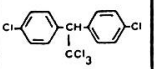
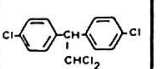
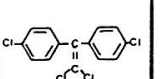
	NOM DU POLLUANT	FORMULE	Abrv.	FORMULE BRUTE	POIDS MOLECULAIRE
	LINDANE		α, β, γ -HCH	$C_6H_6Cl_6$	291
	HEPTACHLORE			$C_{11}H_7Cl_7$	387,5
	HEPTACHLORE-EPOXYDE			$C_{11}H_7Cl_7O$	403,5
	ALDRINE			$C_{12}H_{10}Cl_6$	357
	DIELDRINE			$C_{12}H_{10}Cl_6O$	383
	DICHLORO-DIPHENYL-TRICHLOROETHANE		DDT	$C_{14}H_9Cl_5$	354,5
	DICHLORO-DIPHENYL-DICHLOROETHANE		DDD	$C_{14}H_{10}Cl_4$	320
	DICHLORO-DIPHENYL-DICHLOROETHYLENE		DDE	$C_{14}H_8Cl_4$	318

Tableau 4: Exemple de pesticides fréquemment rencontrés sous forme de traces dans les boues d'épuration

micro-polluant	pays	concentrations rencontrées dans les boues d'épuration des eaux usées ($\mu\text{g}/\text{kg}$, poids frais)	
PCB	Suisse	boues fraîches	: 50 - 340
		boues digérées	: 100 - 3000
		boues séchées	: 500 - 8000
Polychloro-terphényles	-	boues fraîches	: 5000
Polychloro-benzènes totaux	-	boues digérées	: 0 - 25000
Nitrosodi-phénylamine	Canada	boues digérées	: 3000 - 29000
PCDF	Canada	boues fraîches	: 64000
PCDD	USA	boues fraîches	: 210
PAH	-		
. benzo(b,k,j) fluoranthène		boues fraîches	: 2962
. benzo(e)pyrène		" "	: 1247
. benzo(a)pyrène		" "	: 806
. perylène		" "	: 250
. dibenzo(a,h) anthracène		" "	: 684
. dibenzo(a,c) anthracène		" "	: 257
Pesticides:			
. Dieldrine	USA	boues digérées	: 10 - 2200
. Lindane	GB	boues fraîches	: 10 - 930
. p,p'-DDE	GB	boues fraîches	: 10 - 490
. organo-phosphorés	GB	boues fraîches	: 750 - 6000
Nitrosamines:			
. diméthyl-nitrosamine	USA	boues fraîches	: 215 - 374
. diéthyl-nitrosamine	USA	boues fraîches	: 269 - 5520
Phtalates:			
. diéthylpht.	Canada	boues fraîches	: 2000 - 22000
. di-n-butylpht.	"	" "	: 700 - 134000
. di-n-octylpht.	"	" "	: 6000 - 8000
. bis(2-éthyl-hexyl)pht.	"	" "	: 11000 - 959000
Métaux lourds:			
. Mo	Suisse	boues digérées	: 100 - 1900
. Cd	"	" "	: 50 - 5750
. Co	"	" "	: 100 - 6000
. Ni	"	" "	: 200 - 31500
. Cr	"	" "	: 1250 - 159150
. Cu	"	" "	: 7450 - 89450
. Pb	"	" "	: 6750 - 161000
. Zn	"	" "	: 49900 - 412800

Tableau 5: Exemples de concentrations en micro-polluants dans les boues d'épuration

Les hydrocarbures polyaromatiques (PAH)

Un nombre limité de PAH sont produits par l'industrie: ce sont l'anthracène, le pyrène ou le carbazole, produits de départ pour la synthèse de colorants, pesticides ou produits pharmaceutiques; ces composés ne montrent pas d'effets toxiques graves.

Par contre, les autres PAH (voir *tableau 3*) sont formés lorsque des produits organiques contenant des carbones et de l'hydrogène sont soumis à des températures dépassant 700 °C dans des processus pyrolytiques avec combustion incomplète [7]. Certains d'entre eux sont hautement cancérigènes.

Les pesticides

On retrouve surtout, dans les boues, les moins biodégradables d'entre eux et particulièrement les organo-chlorés. Les organo-phosphorés sont également souvent présents. Sur le *tableau 4* figurent quelques pesticides fréquemment rencontrés sous forme de traces dans les boues d'épuration.

2. Concentration dans les boues de ces micro-polluants

Le *tableau 5* rassemble quelques exemples de concentration de ces micro-polluants organiques rencontrés dans des boues d'épuration.

En ce qui concerne les PCB en Suisse, une étude effectuée en 1980 [8], sur les boues de neuf stations d'épuration, a donné les résultats présentés sur le *tableau 6*.

En ce qui concerne les dioxines, le chromatogramme en HPLC présenté sur la *figure 1* montre les différentes dioxines présentes dans les boues activées de station d'épuration [9]. On observe que l'isomère octo-chloré prédomine.

STEP	Equivalents habitants (1979)	Est. quant. annuelle boue à 95,5% d'eau (tonnes)	Conc. PCB des boues en ppm			Extrapol. quantité PCB annuelle		Extrapol. quantité PCB en g/ha 50 t/an de boues à 95,5% d'eau
			dans boues à 95,5% d'eau	dans gâ- teau	dans MS (lioph)	(kg/an)	mg/an/hab.	
Zürich (Werdhölzli)	345'000	235'000	0,13	1,8	2,8	31	90	6,5
Genève	268'000	183'000	0,34	2,9	7,6	62	231	17
Lausanne	209'000	143'000	0,038	0,48	0,85	5,4	26	1,9
Baden	48'000	33'000	0,11		2,4	3,6	75	5,5
Winterthur	100'000	68'000	0,045	0,30	1,0	3,1	31	2,3
La Chaux-de-Fonds	36'000	25'000	0,016	0,14	0,36	0,40	11	0,8
Morges	20'000	14'000	0,054	0,36	1,2	0,76	38	2,7
Papierfabrik Ulzenstorf	43'000	30'000	0,11	0,85	2,5	3,3	mg/to pap. recy- clé 150	5,5
Fairtec AG (Turgi)			0,022	0,21	0,48			

Tableau 6: Concentrations en PCB des boues de neuf stations d'épuration de Suisse [8]

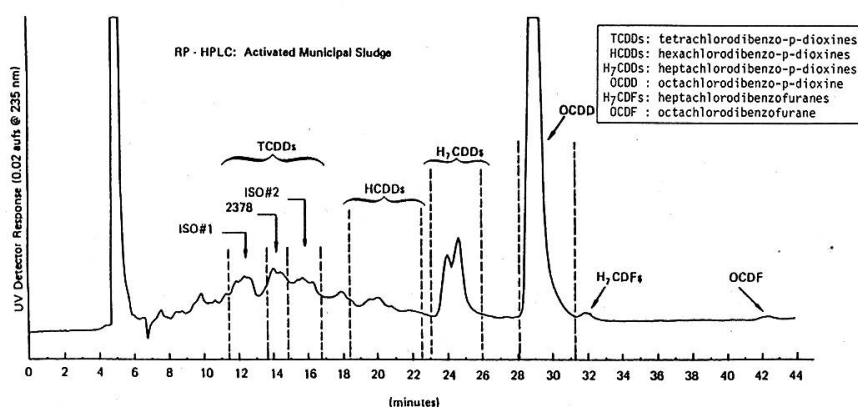


Fig. 1 Chromatogramme en phase liquide montrant les différents isomères de PCDD et PCDF rencontrés dans des boues activées de station d'épuration des eaux [9]

A ce jour, il n'existe pas d'études sur la présence d'hydrocarbures polycycliques (PAH), de dioxines, de dibenzofuranes ou d'amines aromatiques dans les boues en Suisse.

3. Transfert des polluants organiques des boues vers le sol

Peu d'études ont été à ce jour consacrées à ce problème. Celles qui existent se bornent à une constatation de concentrations de micro-polluants dans les sols. Ainsi, par exemple, le *tableau 7* ci-dessous montre l'augmentation de concentration en PCB dans les 2 premiers cm d'un sol amendé au moyen d'une boue contenant 3,3 mg/kg de PCB par rapport au poids sec [10].

En ce qui concerne les PAH, certains auteurs notent qu'il n'y a pas d'indications claires permettant d'affirmer que l'application de boues d'épuration augmente la teneur en PAH des sols traités. Ce fait provient de la grande diversité de sources possibles de PAH, mais également de la possibilité de formation de ces produits au cours de la dégradation microbienne de la matière organique [11].

Tableau 7: Augmentation de PCB dans un sol amendé au moyen d'une boue d'épuration [10].

Date d'épandage de la boue*	22 mai	22 juin	22 juillet	22 août	22 sept.	
Date d'analyse du sol	15 mai	15 juin	19 juillet	20 août	18 sept.	20 oct.
Champ témoin	N	N	N	N	N	N
Champ N. 1**	T	20	21	22	36	39
Champ N. 2**	T	T	26	29	31	29
Champ N. 3**	T	T	19	27	29	35

N : PCB non décelés

T : traces de PCB non quantifiables

* : 125 kg MS de boue à l'ha

** : µg/kg (ppb), par rapport au poids sec

Une étude, réalisée en 1981 à l'Institut du Génie de l'Environnement [14], a montré que, dans un champ ayant été amendé plusieurs années de suite au moyen de boues d'épuration avec une concentration en PCB de l'ordre de $3 \mu\text{g/g}$ (poids sec), les taux suivants de PCB ont été retrouvés dans le sol:

Profondeur: 0–12 cm 104 $\eta\text{g/g}$ (ppb)
 27–39 cm 53 $\eta\text{g/g}$ (ppb)

(moyenne sur trois sites de prélèvement pour le même champ).

Cette étude a également montré que les PCB peu chlorés (par exemple ceux équivalents à la formulation commerciale Aroclor 1242) pénétraient mieux dans la profon-

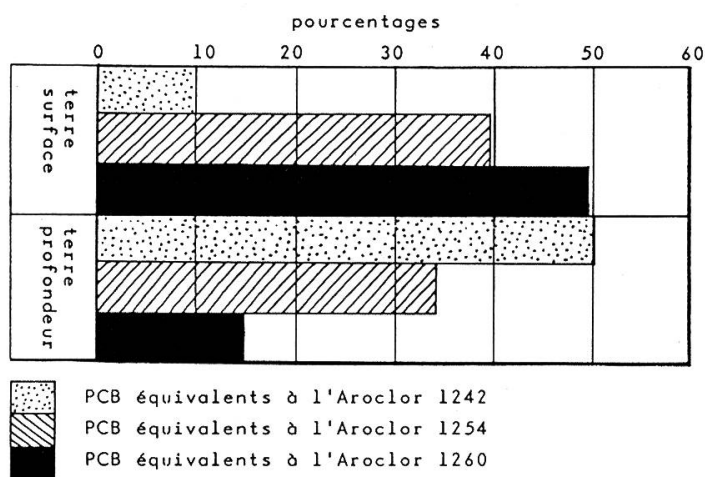


Fig. 2 Pourcentages de PCB peu, moyennement et fortement chlorés dans un champ traité avec des boues d'épuration [14]

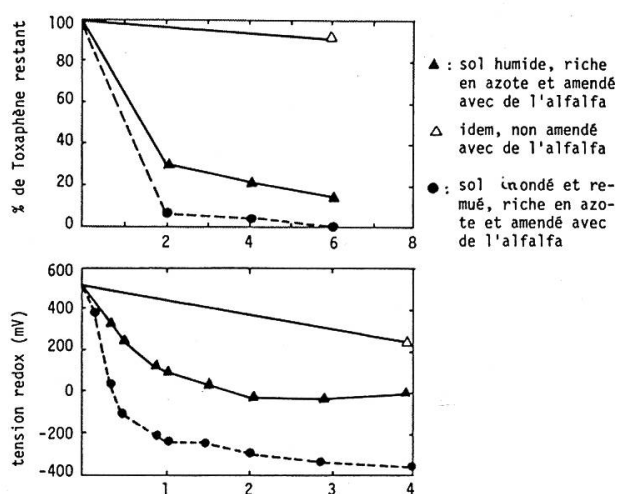


Fig. 3 Dégradation du Toxaphène en fonction des caractéristiques redox du sol [15]

deur du sol que les PCB très chlorés (Aroclor 1260) qui prédominaient en surface, comme le montre la *figure 2*.

4. Dégradation dans le sol de micro-polluants organiques contenus dans les boues

a) Généralités

Les micro-polluants organiques présents dans les boues d'épuration peuvent être l'objet de quatre types de dégradation:

- La dégradation photochimique. Ce type de dégradation est important dans le cas de pesticides, comme le 2,4,-D donnant un produit de dégradation qui est un polymère de structure proche de celle des acides humiques.
- La dégradation redox. La dégradation redox peut jouer un rôle comme on peut le constater sur la *figure 3* montrant la dégradation du toxaphène en fonction des caractéristiques redox du sol [15]. Toutefois, l'apparition de conditions réductrices est due à une augmentation de l'activité microbienne, ce qui peut entraîner également une dégradation métabolique du toxaphène.
- La dégradation par hydrolyse est essentiellement limitée par la solubilité dans l'eau des polluants (cas de phtalates).
- La dégradation métabolique est le mécanisme le plus important, car la matière vivante fournit, en plus des réactifs qui permettront la dégradation, l'énergie (qu'elle puise dans les processus métaboliques normaux) et les catalyseurs (les

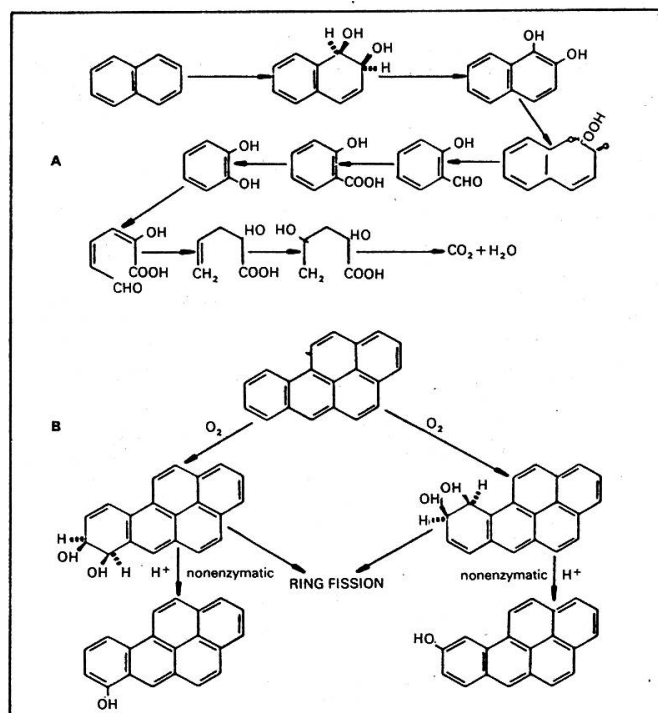


Fig. 4 Mécanismes de métabolisation de deux PAH par les bactéries [17]

enzymes). La solubilité des micro-polluants dans l'eau et l'encombrement stérique de leurs molécules sont souvent les facteurs limitants de leur bio-dégradation.

b) Dégradation des PAH

Plusieurs espèces de bactéries sont capables de métaboliser des PAH [16, 17]. La réaction initiale comporte l'introduction de deux groupes hydroxyles sur un noyau aromatique, au moyen d'un intermédiaire Dihydrodiol (figure 4). Divers métabolites sont formés, le tableau 8 en présente quelques-uns :

c) Dégradation des PCB dans le sol

La biodégradation des PCB se limite pour la plupart des fois à une réaction d'hydroxylation avec formation d'un oxyde d'arène intermédiaire, comme le montre la figure 5 qui décrit le mécanisme de dégradation métabolique d'un hexachlorobiphényle. Les noyaux benzéniques ne sont généralement pas brisés, sauf lors de la dégradation par quelques rares espèces de bactéries spécifiques qui, comme *Alcaligenes Y 42*, transforment les PCB à 1, 2 ou 3 atomes de chlore en l'acide benzoïque correspondant [19].

Tableau 8: Produits de dégradation bactérienne de quelques PAH

Substrat	Metabolite identifié
Naphtalène	acide salicylique
Anthracène	un quinone
Phénanthrène	un quinone
Fluorène	fluorénone
Benz(a)pyrène	{ Benz(a)Pyrène-7-01 Benz(a)Pyrène-9-01

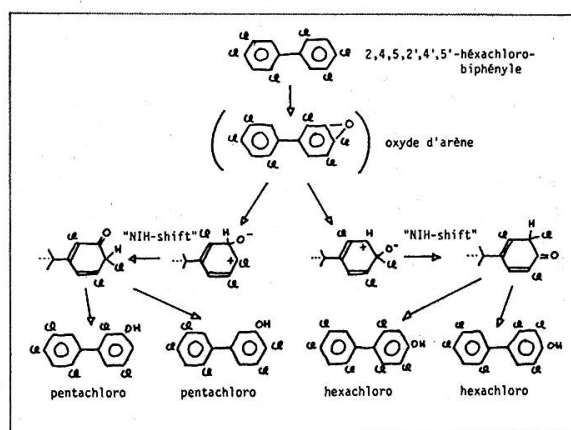


Fig. 5 Mécanisme de dégradation métabolique d'un hexachlorobiphényle [28]

La vitesse de dégradation de quelques isomères peu chlorés de PCB par les micro-organismes du sol a été étudiée par *Montgomery* [18]. Ces résultats se trouvent sur la *figure 6*, ils montrent que la dégradation ne se produit bien que pour quelques isomères bi-chlorés.

Mais, de façon générale, les PCB à plus de 3 atomes de chlore sont peu dégradables par les bactéries du sol. Plusieurs études ont été consacrées à la période (durée de $\frac{1}{2}$ vie) de ces PCB dans le sol. Bien entendu, les résultats varient beaucoup selon le type de sol et son degré d'activité biologique. Les périodes trouvées varient entre 11 ans pour un pentachlorobiphényle et 16 ans pour un tri-chlorobiphényle [20].

Lorsqu'à travers les boues d'épuration un sol reçoit annuellement une quantité constante de PCB, la concentration en PCB du sol croîtra si l'apport annuel est supérieur à la fraction dégradée. Selon *Fries* [21], à chaque épandage, la fraction de PCB qui persistera dans le sol sera décrite par l'équation:

$$\frac{A}{A_0} = \exp(-kt)$$

avec: A quantité de PCB dans le sol au moment t

A_0 quantité de PCB dans le sol à t = 0

$$K = \frac{0,693}{\text{période}} \text{ (si } t = 1 \text{ an)}$$

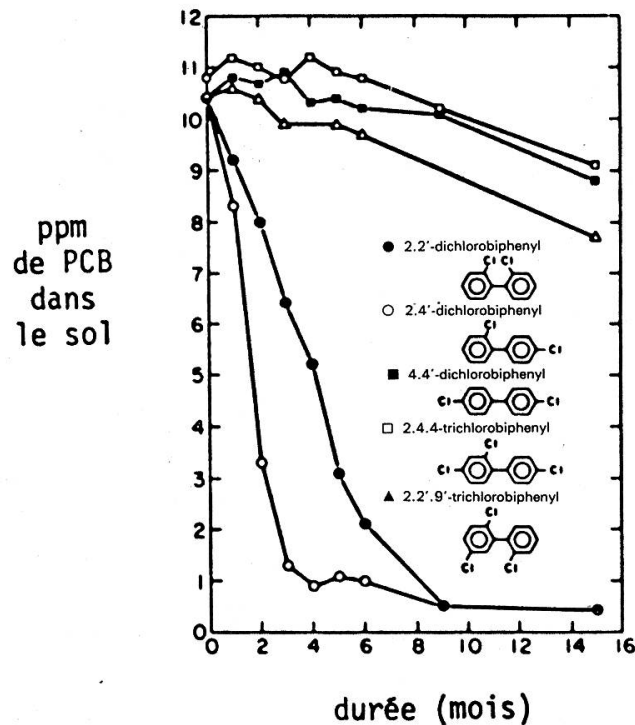


Fig. 6 Dégradation de quelques isomères de PCB par les microorganismes du sol [18]

par exemple, si on considère une durée de $\frac{1}{2}$ vie de 15 ans, il vient:

$$K = \frac{0,693}{15}$$

soit: $A = 0,955 A_0$ au bout d'un an. C'est-à-dire que seulement le 4,5% du PCB épandu aura été dégradé.

5. Transfert dans le bétail ou dans le lait des micro-polluants apportés dans les boues d'épuration

Là aussi ce sont les PCB qui ont été relativement le mieux étudiés. L'Institut d'agriculture de Wageningen aux Pays-Bas a étudié l'accumulation dans le lait de vache d'un isomère bien spécifique de PCB: le 2,4,5,2',4',5'-hexachlorobiphényle [22].

La diète des vaches étudiées était composée de tourteaux et d'herbe contenant au total $1,1 \mu\text{g}/\text{kg}_{\text{MS}}$ de ce PCB

Le lait présentait une concentration de $13,6 \mu\text{g}/\text{kg}$ matière grasse. Il en résulte un facteur de concentration d'environ 13. D'autres études font varier ce facteur entre 5 et 13.

Dans la réalité, il faut distinguer 3 voies d'ingestion par le bétail de ces micro-polluants apportés par les boues d'épuration:

a) Consommation de plantes superficiellement contaminées par épandage

Ce premier cas peut se produire lorsque du bétail vient brouter des plantes qui viennent de subir un épandage de boues d'épuration contenant des micro-polluants organiques.

Chaney et Lloyd [23] ont étudié ce cas de figure. Ils ont épandu des boues liquides à 6% de matière sèche sur une prairie à raison de 50 à 100 tonnes (poids liquide) à l'hectare. Ils ont constaté qu'immédiatement après l'épandage, en dehors de toute période de pluie, le 30% de la matière sèche du fourrage provenait des boues d'épuration. On peut en déduire que, dans ce cas, pour chaque ppm de PCB présent dans les boues par rapport à la matière sèche, il en résultera de 1,5 à 4 ppm de PCB (par rapport à la matière grasse) dans le lait, selon le calcul suivant:

$$0,3 \times 1 \text{ ppm} \times \begin{matrix} 5 \text{ (facteur d'accumulation)} = 1,5 \\ \text{(ou)} \\ 13 \text{ (facteur d'accumulation)} = 3,9 \end{matrix}$$

Après un mois (sans pluie), il n'y a plus que l'ordre de 10% de la matière sèche du fourrage qui provient des boues, ceci à cause de la croissance de l'herbe.

b) *Consommation de plantes ayant poussé sur un sol ayant reçu des micro-polluants organiques par épandage de boues d'épuration*

Les micro-polluants organiques passeront du sol aux plantes par deux voies:

- absorption et translocation par les racines,
- adsorption par les parties aériennes des plantes de la fraction de micro-polluants volatilisés depuis le sol.

Là aussi, les PCB ont été les micro-polluants les plus étudiés. L'absorption et translocation par les racines semble un phénomène relativement peu important. Par contre, la volatilisation de PCB à partir de la surface du sol et l'absorption par les parties aériennes des plantes pourrait être un phénomène non négligeable [21].

c) *Ingestion de terre contaminée*

Cette ingestion peut se faire soit à travers le sol directement collé au fourrage, soit à travers la poussière soulevée par le vent ou les déplacements du bétail.

Selon certains auteurs, les particules de sol peuvent représenter de 6 à 14% de la matière sèche totale ingérée par les bovins [24].

Ainsi, pour un sol qui présenterait une concentration de 1 ppm de PCB/matière sèche, la seule ingestion de terre pourrait entraîner:

$$0,14 \times 1 \times \begin{matrix} 5 = 0,7 \text{ ppm/matière grasse lait} \\ \text{ou} \\ 13 = 1,83 \text{ ppm/matière grasse lait.} \end{matrix}$$

d) *Commentaires*

Les chiffres précédents rassemblent divers résultats tirés de la littérature et qu'il y aurait lieu de vérifier pour les conditions spécifiques du bétail laitier suisse.

Un autre point mériterait d'être étudié: c'est celui de la terre à fouiller pour cochons, qui est souvent produite à partir de compost présentant des teneurs en micro-polluants organiques encore plus élevées que les boues d'épuration.

6. Accumulation des micro-polluants organiques des boues d'épuration dans les agro-écosystèmes

Si le transfert de micro-polluants organiques des boues d'épuration dans des produits alimentaires tels que plantes, viande ou lait, ou même l'effet de ces produits sur la croissance des plantes ou la santé du bétail, que cet article n'aborde pas, est un problème grave, il semble cependant que le risque le plus immédiat du fait de la présence de micro-polluants organiques dans les boues d'épuration réside dans les dégâts que peut causer la bio-accumulation de ces produits dans la faune sauvage des campagnes.

Depuis 1981, l'IGE a abordé ce problème en étudiant le transfert des PCB présents dans des sols amendés par des boues d'épuration dans les vers de terre qui

vivent dans ces sols [25]. Le vers de terre est le premier animal dans de nombreuses chaînes alimentaires des animaux de nos campagnes, ainsi pour la mouette rieuse, le blaireau, le porc, le renard et la taupe par exemple, il peut donc être le premier élément accumulateur des micro-polluants que l'on retrouve à des taux préoccupants dans les grands prédateurs des chaînes alimentaires terrestres.

Le *tableau 9* montre l'accumulation de PCB dans les vers, comparée à d'autres études réalisées en Suisse sur la présence de PCB dans les animaux de nos campagnes; tout laisse à croire qu'il existe une bio-concentration des PCB dans les agro-écosystèmes. Bien entendu, il n'y a pas lieu de rendre l'utilisation des boues d'agriculture seules responsables de ce type de bio-concentration, mais il est indéniable que cette pratique participe à aggraver ce problème.

7. Conclusion

Une gestion raisonnable de l'épandage des boues d'épuration en agriculture, au regard de leur contenu en micro-polluants organiques, devra non seulement tenir compte des implications directes que cela entraîne sur les rendements agricoles, le bétail et les aliments destinés à la consommation humaine, mais aussi des risques que

Echantillon	Sources probables de PCB	Concentration (ppb)
Sol réserve naturelle (A) Suisse (0-12 cm prof.) (14)	?	11 (pds sec)
Sol agricole (B) Suisse (0-12 cm prof.) (14)	purin de porcs	30 (pds sec)
Sol agricole (C) Suisse (0-12 cm prof.) (14)	boues d'épuration (64g/ha PCB)	60 (pds sec)
Sol agricole (D) Suisse (0-15 cm prof.) (14)	compost (120g/ha PCB)	104 (pds sec)
Vers de terre sol (A) (anéciques disséqués) (14)	(voir sol)	13 (pds frais)
Vers de terre sol (B) (anéciques disséqués) (14)	(voir sol)	13 (pds frais)
Vers de terre sol (C) (anéciques disséqués) (14)	(voir sol)	20 (pds frais)
Vers de terre sol (D) (anéciques disséqués) (14)	(voir sol)	170 (pds frais)
Herissons adultes (foie) Suisse (26)	?	300 - 800 (pds frais)
Etourneaux jeunes (foie) Suisse (27)	?	70 - 2500 (pds frais)
Faucon crécerelle (oeuf) Suisse (28)	?	200 - 1000 (pds frais)
Chouette effraie (oeuf) Suisse (28)	?	3800 - 11000 (pds frais)
Epervier d'Europe (oeuf) Suisse (28)	?	15000 (pds frais)
Faucon pèlerin (oeuf) Suisse (28)	?	4700 - 16300 (pds frais)

Tableau 9: Concentrations en PCB de quelques échantillons d'agro-écosystèmes suisses (1976-1981)

cette pratique fait courir sur l'équilibre écologique de la faune de nos campagnes. Et ceci est un défi à long terme. En effet, l'optimisme ne paraît pas de mise en ce qui concerne une diminution sensible des micro-polluants organiques dans les déchets et donc dans les boues d'épuration.

En effet,

- les connaissances sur la présence des micro-polluants organiques dans les eaux usées sont encore fragmentaires, ce qui rend délicate l'identification des causes de cette présence et donc les actions à la source de ces produits. D'autant que, très souvent, on risque d'avoir affaire à des sources diffuses,
- une mesure de limitation d'un micro-polluant utilisé dans des produits industriels ou du commerce n'a généralement d'effet qu'à très long terme sur sa concentration dans les déchets. Ce temps de latence dépend de la durée d'utilisation du produit de consommation dans lequel le polluant se trouve et du rythme avec lequel la même mesure de limitation est adoptée dans le reste du monde.

Toutefois, il est particulièrement réjouissant de constater que, depuis quelques années, il se dessine en Suisse un courant favorable aux recherches sur la présence et l'impact des micro-polluants organiques dans les boues d'épuration. Le développement de ces recherches apportera des renseignements précieux pour une valorisation encore plus adéquate des boues d'épuration en agriculture. En effet, l'utilisation agricole des boues d'épuration reste encore le moyen le plus satisfaisant pour éliminer ces résidus, à condition bien sûr, d'en maîtriser entièrement les conditions.

Résumé

Les principaux micro-polluants organiques présents dans les boues d'épuration sont: des dérivés halogènes à 1 ou 2 carbones, des paraffines chlorées, des agents de surface, des nitrosamines, des esters phtaliques et surtout: des PCB, des chlorophénols, des polychloro-p-dioxines et dibenzofuranes, des amines aromatiques, des hydrocarbures polyaromatiques et des pesticides.

Ces produits se trouvent dans les boues d'épuration, à des concentrations comparables aux métaux lourds; après épandage des boues, ils passent dans le sol où, pour la plupart, ils sont peu dégradés. Il s'en suit que ces produits s'accumulent dans les champs et peuvent être transférés dans les animaux ou le lait de ceux-ci. Ce transfert se fait soit par consommation de plantes superficiellement contaminées par l'épandage des boues, soit par consommation de plantes ayant extrait les polluants du sol, soit enfin, par ingestion directe de terre contaminée. La présence de micro-polluants organiques peu biodégradables constitue également, du fait de l'accumulation au long des chaînes alimentaires, un risque important pour la faune sauvage des campagnes.

Zusammenfassung

Die wesentlichen organischen Fremdstoffe, die sich in Spuren im Klärschlamm finden, sind: Halogenderivate mit 1 oder 2 Kohlenstoffatomen, chlorierte Paraffine, oberflächenaktive Stoffe, Nitrosamine, Phtalsäureester und vor allem PCB, sowie Chlorphenole, Polychloro-p-dioxine, Dibenzofurane, aromatische Amine, kondensierte aromatische Kohlenwasserstoffe und Pestizide.

Diese Substanzen finden sich im Klärschlamm in Konzentrationen, die mit denjenigen der Schwermetalle vergleichbar sind.

Nach dem Ausbringen des Schlamms gelangen obengenannte Stoffe in den Boden, wobei die meisten nur wenig abgebaut werden. Daraus folgt, dass sich diese Fremdstoffe auf den Feldern akkumulieren und anschliessend in die Tiere oder deren Milch gelangen. Diese Übertragung geschieht einerseits durch das Fressen von Pflanzen, die nach dem Austragen des Schlamms an ihrer

Oberfläche oder durch die Aufnahme der Fremdstoffe aus dem Boden verseucht sind oder andererseits durch direkte Einnahme verschmutzter Erde.

Das Vorhandensein dieser Fremdstoffe, die biologisch schwer abbaubar sind, stellt aufgrund der Akkumulation dieser Substanzen in den Nahrungsketten auch ein grosses Risiko für die Fauna der Felder dar.

Bibliographie

- [1] *De Alencastro L. F., Tarradellas J.*: Etude de la concentration en PCB des eaux usées dans les stations d'épuration. *Gaz-Eaux-Eaux usées* 63 (3), 113–122 (1983). – [2] *Hutzinger O.*: Anthropogenic compounds. Vol. 1 et 2, Springer Verlag ed. Berlin (1982). – [3] *Hutzinger O., Safe S., Iitko V.*: The chemistry of PCB's. CRC Press Inc. (1974). – [4] *Keck G.*: Les biphenyles polychlorés. *Revue médecine vétérinaire* 128 (1), 25–49 (1977). – [5] *Hutzinger O., Frei R. W., Merian E., Pocchiari F.*: Chlorinated dioxins and related compounds, impact on the Environment. Pergamon Press, Oxford (1981). – [6] *Wegmann R. C. C., Korte G. A.*: The gas-chromatographic determination of aromatic amines after bromination in surface waters. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.* 9, 1–6 (1981). – [7] *Cooke, Dennis*: PAH. Battelle-Press (1981). – [8] *Schweizer C., Tarradellas J.*: Etat des recherches sur les biphenyles polychlorés en Suisse. *Chimia* 34 (12), 509–519 (1980). – [9] *Lamparski L. L., Nes-trick T. J.*: A comprehensive procedure for the isomer-specific determination of tetra-, hexa-, hepta- and octachlorodibenzo-p-dioxins at part per trillion concentrations: particulate samples. Workshop, Istituto Superiore di Sanità, Rome, 22–24 octobre 1980. – [10] *Skillings J. H., Danielson N. D.*: Uptake of polychlorobiphenyls present in trace amounts from dried municipal sewage sludge through an old field ecosystem. *Bull. Environ. Contamin. Toxicol.* 27, 689–694 (1981). – [11] *Harms H., Sauerbeck D. R.*: Toxic organic compounds in town waste materials: their origin, concentration and turnover in waste composts, soils and plants. EEC concerned action on the characterization, treatment and use of sewage sludge, WP 5, Stevenage G.B. (1982). – [12] *Bridle T. R., Webber M. D.*: A Canadian perspective on toxic organics in sewage sludge. id. 11. – [13] *Lester J. N.*: Occurrence, behaviour and fate of organic micro-pollutants during waste water and sludge treatment process. id. 11. – [14] *de Weck D., Borsinger N., Dierxsens P., Rosset B.*: Etude préliminaire de la contamination des vers de terre par les PCB. Institut du Génie de l'Environnement, EPF-Lausanne, Travail de recherche postgrade (1981). – [15] *Parr J. F., Smith S.*: *Soil Science* 121, 54–56 (1976). – [16] *Martens R.*: Concentration and microbial mineralization of four to six ring polycyclic aromatic hydrocarbons in composted municipal waste. *Chemosphere* 11 (8), 761–770 (1982). – [17] *Neff J. M.*: Degradation of PAH in the aquatic environment in: Polycyclic aromatic hydrocarbons in the aquatic environment, Applied Science Publishers Ltd., Londres (1979). – [18] *Montgomery, cité par Tinsley I. J.*: Chemical concepts in pollutant behaviour. Wiley Interscience, New-York (1979). – [19] *Furukawa K., Matsumara F.*: Microbial metabolism of polychlorinated biphenyls. *J. Agric. chem.* 24, 251–256 (1976). – [20] *Moza P., Scheunert J., Klein W., Korte F.*: Studies with 2,4',5-trichlorobiphenyl-14 C and 2,2',4,4',6-pentachlorobiphenyl-14 C in carrots, sugar beets and soil. *J. Agric. Food Chem.* 27, 1120–1124 (1979). – [21] *Fries G. F.*: Potential polychlorinated biphenyl residues in animal products from application of contaminated sewage sludge to land. *J. Environm. Qual.* 11 (1), 14–20 (1982). – [22] *Tuinstra L. G., Roos A. H., Traag W. A., von Munsteren A. J., Keukens H. J.*: Accumulation of chlorobiphenyls in products at the end of the food chain. 12th annual symposium on the analytical chemistry of pollutants, Amsterdam 14–16 avril 1982. – [23] *Chaney R. L., Lloyd C. A.*: Adherence of spray-applied liquid digested sewage sludge to fall fescue. *J. Environm. Qual.* 8, 407–411 (1979). – [24] *Healy W. B.*: Ingestion of soil by dairy cows. *Agric. Res.* 11, 487–499 (1968). – [25] *Tarradellas J., Dierxsens P., Bouché M.*: Methods of extraction and analysis of PCB's from earthworms. *Intern. J. Environ. Anal. Chem.* 13, 55–67 (1982). – [26] *Berthoud G.*: Bureau d'étude en écologie appliquée, in [8]. – [27] *O. C. D. E.*: Programme d'échantillonnage et d'analyse de la faune sauvage, rapport final 1978, in [8]. – [28] *Sundröm G., Hutzinger O., Safe S.*: The metabolism of 2,2', 4,4', 5,5'-hexachlorobiphenyl by rabbits, rats and mice. *Chemosphere* 4, 249–253 (1976).