

RAPPORT D'ÉTUDE

30/06/2006

N° INERIS - DRC – 05 – 66015 – CHEN – 06.0086 / BLe

**Etat de l'art – Problématique des substances
prioritaires dans les boues d'épuration**

Etat de l'art – Problématique des substances prioritaires dans les boues d'épuration

Verneuil-en-Halatte, Oise

Client (ministère, industriel, collectivités locales) :

Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable

Liste des personnes ayant participé à l'étude :

H. Assengone - L. Gréaud-Hoveman - M.P. Strub - B. Lepot

PRÉAMBULE

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

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

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

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

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

	Rédaction	Vérification		Approbation
NOM	B. Lepot	L. Gréaud-Hoveman	M.P. Strub	A. Morin
Qualité	Ingénieur à l'Unité « Chimie Analytique et Environnementale »			Coordinatrice des programmes « Qualité des eaux »
Visa				

TABLE DES MATIERES

RESUME	5
GLOSSAIRE.....	6
<u>Glossaire des abréviations</u>	6
<u>Glossaire des définitions</u>	7
1. INTRODUCTION	10
2. LA REGLEMENTATION SUR LES BOUES DE STEP	11
2.1 Introduction.....	11
2.2 Contexte européen	12
2.2.1 Les directives européennes.....	13
2.3 Mise en œuvre de la réglementation européenne dans les différents pays	16
2.3.1 Cas des métaux lourds	16
2.3.2 Cas des composés traces organiques.....	18
2.4 La situation française.....	19
2.4.1 Production de boue en France	19
2.4.2 Réglementation française	19
2.4.3 Positionnement de la France par rapport aux autres pays	22
3. SUBSTANCES SUSCEPTIBLES D'ÊTRE PRÉSENTES DANS LA MATRICE BOUE	23
3.1 Paramètres à prendre en compte.....	23
3.2 Autres facteurs influençant l'adsorption des éléments traces	27
3.3 Etudes expérimentales sur le comportement des composés	28
4. MISE EN EVIDENCE DE SUBSTANCES DANS LES BOUES.....	32
4.1 Présence d'Eléments Traces Métalliques	32
4.1.1 Mise en évidence en France.....	32
4.1.2 Mise en évidence en Europe / USA.....	33
4.1.3 Synthèse Eléments Traces Métalliques.....	33
4.2 Présence de Composés Traces Organiques.....	35
4.2.1 Mise en évidence en France.....	35
4.2.2 Mise en évidence en Europe / USA.....	36
4.2.3 Synthèse des Composés Traces Organiques	37
4.3 Méthodes analytiques de caractérisation des substances inorganiques ou organiques des boues de stations d'épuration	40
5. POSSIBILITÉS DE TRANSFERT DES ELEMENTS TRACES VERS LE MILIEU AQUATIQUE	44

5.1	Devenir des substances inorganiques dans les boues et après épandage	44
5.1.1	Divers transferts possibles : le concept de la mobilité.....	45
5.1.2	Spéciation, localisation et mobilité dans les sols des principaux micropolluants métalliques	47
5.2	Devenir des substances organiques dans les boues et après épandage.....	50
5.2.1	Risques de transfert vers le milieu aquatique.....	50
5.2.2	Localisation et mobilité dans les sols des principaux micropolluants organiques.....	51
6.	PERSPECTIVES - CONCLUSIONS SUR LES SUBSTANCES À SURVEILLER DANS LES BOUES	55
6.1	Données.....	55
6.2	Substances à surveiller en France : Préconisations et propositions d'actions.....	56
6.3	Faisabilité	57
6.3.1	Mise en place d'un inventaire en France.....	57
6.3.2	Poursuite des travaux en normalisation – Méthodes d'analyses validées	57
6.3.3	Réflexion sur le développement d'un agrément Boues.....	58
7.	ANNEXES.....	59

RESUME

Les premiers résultats de l'action nationale de recherche et de réduction des rejets de substances dangereuses dans l'eau [3RSDE] et les études réalisées par les Agences de l'eau sur les rejets aqueux des stations d'épurations urbaines et industrielles montrent que les effluents en sortie de station d'épuration urbaine contiennent moins de polluants en concentration mesurable que les effluents d'entrée de stations d'épurations et sont majoritairement moins toxiques. Les substances présentes en entrée de station d'épuration sont-elles réellement éliminées ? N'ont-elles pas été concentrées dans les boues au cours de l'épuration ? De ce fait, les substances dangereuses se retrouvant éventuellement dans les boues n'ont-elles pas la possibilité lors de l'utilisation en épandage de celles-ci de se transférer vers le milieu aquatique ?

Ce rapport répond en partie à l'ensemble des questions soulevées ci-dessus et permet de considérer les boues [au sens la DCE] comme une source diffuse potentielle de substances dangereuses pour les milieux aquatiques au travers de pratiques telles que l'épandage agricole.

Les principaux résultats de cette étude sont les suivants :

- Les pays européens ont mis en place des réglementations nationales plus strictes que la réglementation européenne [directive 86/278/CEE]. Certains ont également pris en compte d'un point de vue réglementaire les exigences du projet de directive européenne sur l'épandage des boues destiné à remplacer la directive 86/278/CEE qui fixe pour la première fois des seuils pour les composés organiques. C'est le cas de l'Allemagne et de l'Autriche [seuils fixés pour AOX, PCB et PCDD/F], du Danemark [seuils fixés pour DEPH, LAS, Nonylphénols, HAP] et de la France [seuils fixés pour HAP et PCB].
- Les substances susceptibles d'être présentes dans les boues sont toutes les substances ayant des propriétés intrinsèques hydrophobes ou partiellement hydrophobes. Ces substances s'adsorbent préférentiellement dans les boues.
- La recherche bibliographique réalisée auprès de divers pays confirme la présence de substances hydrophobes dans les boues autres que les substances réglementées par la directive de 86/278/CEE et le nouveau projet de directive.
- Les substances non réglementées retrouvées dans les boues de quelques pays sont 3 métaux [Arsenic, Sélénium et Argent] et les substances organiques suivantes : Chlorophénols, Chlorobenzènes, Diphényléthers bromés, Organoétains, nitrobenzènes, pesticides, toluène, etc.
- Ces substances non réglementées mais retrouvées en quantité non négligeable dans les boues d'épuration de quelques pays (autre que la France), sont des substances toxiques ou nocives pour l'écosystème aquatique de par leur toxicité, leur persistance, leur bio-accumulation ou leur potentiel cancérigène, possèdent des propriétés intrinsèques favorisant leur adsorption sur les boues, et présentent un risque de transfert le milieu aquatique d'où risque d'impact.

Face à ce constat et au suivi des boues d'épandage limité à quelques composés par la réglementation française, une surveillance plus poussée en France semble nécessaire. Une ébauche de programme de surveillance sous forme de propositions d'actions est présentée :

- Organiser un inventaire sur différents types de stations d'épuration, en orientant notre recherche sur les substances retrouvées dans les boues des autres pays et pour lesquelles aucune donnée ou peu de données sont disponibles en France.
- Pour cela, un groupe de travail constitué des professionnels de la filière « Boue » sera créé afin de collecter le maximum d'informations disponibles sur la présence de substances dans les boues et de réaliser des analyses sur des sites choisis.
- En parallèle, la participation des experts INERIS aux groupes de travail français et européens sur l'harmonisation des méthodes d'analyses sur les boues et aux essais interlaboratoires organisés en 2007 permettra à terme aux différents prestataires réalisant des analyses sur « Boues » de mettre en œuvre des méthodes analytiques normalisées, validées. La comparabilité des données sera donc améliorée.

Mots Clés : *Boue de station d'épuration, Composé Trace Organique, Devenir des Eléments Traces, Directive Boue, Directive Cadre Eau, Elément Trace Métallique, Réglementation, Substance dangereuse*

GLOSSAIRE

GLOSSAIRE DES ABREVIATIONS

ADEME	:	Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
AFNOR	:	Agence Française de NORmalisation
AOX	:	Composés Organohalogénés Adsorbables
CEE	:	Communauté Economique Européenne
CNB	:	Comité National sur l'épandage des Boues d'épuration
COHV	:	Composés Organiques Halogénés Volatils
COV	:	Composés Organiques Volatils
CSHPF	:	Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France
CTO	:	Composés Traces Organiques
DCE	:	Directive Cadre Eau. Directive 2000/60/CE
EPA (US EPA)	:	United States Environmental Protection Agency
ET	:	Éléments Traces
ETM	:	Eléments Traces Métalliques
HAP	:	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques
INERIS	:	Institut National de l'Environnement industriel et des RISques
INRA	:	Institut National de Recherche Agronomique
MES	:	Matière En Suspension
MS	:	Matière Sèche
ORDIF	:	Observatoire Régional des Déchets d'Ile-de-France
PCB	:	PolyChloroBiphényles
PCDD	:	PolyChloroDibenzo-para-Dioxines
PCDF	:	PolyChloroDibenzoFuranes
STEP	:	STation d'EPuration
SYPREA	:	SYndicat des Professionnels du Recyclage En Agriculture
UE	:	Union Européenne
USEPA	:	United States Environmental Protection Agency
VLC	:	Valeur Limite de Concentration
VLE	:	Valeur Limite d'Emission
3RSDE	:	Recherche et Réduction des Rejets de Substances Dangereuses dans l'Eau par les installations classées

GLOSSAIRE DES DEFINITIONS

Adsorption : transfert d'une espèce chimique de la phase aqueuse (eau) vers la surface solide (boue, sol, matières en suspension etc...).

Bon état écologique : c'est l'état d'une masse d'eau de surface (rivières, lacs, eaux de transition et eaux côtières) dont les valeurs des éléments biologiques de qualité montrent de faibles niveaux de distorsion résultant de l'activité humaine et qui ne s'écartent que très légèrement de celles normalement associées à ce type de masse d'eau de surface dans des conditions non perturbées.

Boue : c'est un mélange d'eau et de matières solides extrait de différents types d'eau par des procédés naturels ou artificiels. On distingue :

- les boues d'épuration provenant des stations de traitement qui collectent, par le réseau d'eaux résiduaires usées, les eaux usées et les eaux de ruissellement urbaines ;
- les boues des fosses septiques. Elles sont acheminées vers les stations d'épuration pour y être traitées avec les autres boues ;
- les boues industrielles résultant du traitement des eaux usées du secteur agroalimentaire, de l'industrie du cuir et de l'industrie du papier et des fibres.

Bioaccumulation : accumulation d'un polluant dans les tissus des êtres vivants.

Biodisponibilité : aptitude d'un élément trace à être métabolisé par un être vivant (par exemple, seuls les nutriments biodisponibles peuvent servir à l'alimentation des plantes).

CSHPF : instance d'expertise scientifique et technique, placée auprès du ministre chargé de la santé. Le conseil est constitué de quatre sections, ayant compétence respectivement dans les domaines de l'eau, des milieux de vie, des maladies transmissibles et de la radioprotection.

CNB : Comité National sur l'épandage des Boues d'épuration (CNB) mis en place en 1998 par le MATE et le Ministère de l'Agriculture. Il réunit tous les acteurs concernés par cette filière. Ces acteurs sont des représentants de l'Etat (MEDD, MAP et MS, des consommateurs, des écologistes, des scientifiques, des instituts techniques, des industries agro-alimentaires, des producteurs de boues, des collectivités et de la profession agricole). L'objectif du CNB est de favoriser la concertation entre les acteurs en vue d'aboutir à un accord national.

CTO : composés chimiques moléculaires issus des micropolluants organiques (exemple : pesticides, hydrocarbures, détergents) ou de la dégradation de ces substances et présents en quantité infinitésimale dans un milieu.

DCE : Directive 2000/60/CE du parlement européen et du conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire de l'eau, communément appelée directive cadre. Elle vise à renforcer la protection de l'environnement aquatique par des mesures spécifiques conçues pour réduire progressivement les rejets, émissions et pertes de substances prioritaires, et l'arrêt ou la suppression progressive des rejets, émissions et pertes de substances dangereuses prioritaires dans l'eau.

Élément trace : élément présent à des concentrations de l'ordre du microgramme par litre ($\mu\text{g/L}$) dans le milieu.

Épandage : apports sur le sol, selon une répartition régulière, d'effluents d'élevage, d'amendements, d'engrais, de produits phytosanitaires, de boues de station d'épuration, etc.

Eutrophisation : enrichissement excessif d'un milieu aquatique (notamment si les eaux sont stagnantes ou à circulation réduite) en éléments nutritifs ou en matière organique, provoquant un développement surabondant de biomasse végétale dont la décomposition ultérieure consomme, en partie ou en totalité, l'oxygène dissous dans l'eau et réduit la biodiversité du milieu aquatique.

Fermentescible : dont la composition favorise le développement des fermentations (dégradation enzymatique (anaérobie) d'une substance par un microorganisme).

Installations classées (IC) : usines, ateliers, dépôts, chantiers, carrières et d'une manière générale les installations exploitées ou détenues par toute personne publique ou privée, qui peuvent présenter des dangers ou des inconvénients, soit pour la commodité du voisinage, soit pour la santé, la sécurité, la salubrité publique, soit pour l'agriculture, soit pour la protection de la nature et de l'environnement, soit pour la conservation des sites et des monuments.

Lessivage : entraînement par l'eau à travers les différentes couches du sol des substances fixées sur des particules fines.

MES : ensemble de matières solides contenues dans une eau usée et pouvant être retenues par filtration ou centrifugation.

Métaux lourds : le terme usuel « métaux lourds » désigne des éléments présents, à l'état naturel, à des concentrations inférieures à un pour mille dans le sol. Le terme réglementaire est éléments traces car il peut s'agir de métaux (arsenic, cadmium, cuivre, mercure, plomb, etc.) ou d'éléments non-métalliques (fluor, etc.). Tous les métaux lourds sont toxiques à forte concentration.

Micropolluant : élément trace.

Siccité d'une boue : la boue est essentiellement constituée d'eau et de matières sèches. Le pourcentage d'eau représente l'humidité et le pourcentage de la matière sèche est la siccité.

Sorption : le phénomène de sorption se définit par le passage de l'état dissous dans l'eau à l'état fixé sur une phase solide. Il limite le transfert de pollution et la biodisponibilité des polluants, c'est à dire l'accessibilité aux être vivants, mais il favorise l'accumulation dans la phase solide.

Substance prioritaire : substances ou groupes de substances toxiques, dont les émissions et les pertes dans l'environnement doivent être réduites ou supprimées. Une première liste de substances ou familles de substances prioritaires a été définie par la décision n° 2455/2001/CE du parlement européen et du conseil du 20 novembre 2001 et a été intégrée dans l'annexe X de la directive 2000/60/CE. Ces substances prioritaires ont été sélectionnées d'après le risque qu'elles présentent pour les écosystèmes aquatiques (toxicité, persistance, bioaccumulation, potentiel cancérigène, présence dans le milieu aquatique, production et usage).

1. INTRODUCTION

En application de la circulaire du 4 février 2002 du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable (MEDD), suite à l'adoption de la directive 2000/60/CE du 23 octobre 2000, une action de recherche et de réduction des rejets de substances dangereuses dans l'eau par les installations classées (action 3RSDE) a été lancée dans chaque région. Cette action vise de façon générale la recherche de substances polluantes, et notamment celles de la liste des 33 substances prioritaires dans le domaine de l'eau définie par la décision N°2455/2001/CE du 20 novembre 2001 du Parlement européen et du Conseil modifiant la directive 2000/60/CE.

Au niveau national, l'objectif est de rechercher les rejets de substances dangereuses dans l'eau pour environ 5 000 établissements sur une durée de 5 ans (jusqu'en 2007). Cette action doit permettre d'identifier les sources ponctuelles de substances dangereuses et de mettre en place les mesures de réduction appropriées lorsqu'un rejet présentant un risque pour l'environnement aquatique sera identifié.

Cette action concerne principalement les sources industrielles ponctuelles puisqu'elle est réalisée auprès des Installations Classées. Afin d'avoir un ordre de grandeur de la pollution rejetée par les autres sources, domestiques et hospitalières, l'action a été étendue aux stations d'épuration et aux hôpitaux (le 23 avril 2004).

En parallèle, des études, ont été réalisées par les Agences de l'Eau sur les rejets aqueux des stations d'épurations urbaines et industrielles. Les constats sont que les effluents aqueux en sortie de station d'épuration urbaine contiennent moins de polluants en concentration mesurable que les effluents d'entrée de stations d'épurations et sont majoritairement moins toxiques.

Les substances présentes en entrée de station d'épuration sont-elles réellement éliminées ? N'ont-elles pas été concentrées dans les boues au cours de l'épuration ? De ce fait, les éventuelles substances dangereuses éliminées des effluents via les boues ne présentent-elles pas le risque, lors de l'utilisation de celles-ci en épandage, d'être lessivées vers le milieu aquatique ?

Ce rapport a pour objectif d'essayer de répondre à l'ensemble des questions soulevées ci-dessus et d'évaluer les boues en tant que source diffuse potentielle de substances dangereuses.

Après un tour d'horizon réglementaire européen et français, nous rechercherons dans la bibliographie quelles substances dangereuses peuvent être retrouvées et quantifiées dans les boues.

Puis, nous vérifierons dans la bibliographie si la présence éventuelle de substances dangereuses dans les boues peut, à terme et en fonction de leurs propriétés intrinsèques, être une source de contamination pour le milieu aquatique par des transferts vers l'eau via les sols (lessivage des sols ou infiltration) en fonction de leurs propriétés intrinsèques.

En conclusion, nous essaierons de conclure sur l'opportunité d'une surveillance ou non de substances prioritaires dans les boues et de proposer le cas échéant une ébauche de programme de surveillance (quelles substances surveiller, faisabilité de la mise en œuvre d'une surveillance d'un point de vue analytique et coût).

2. LA REGLEMENTATION SUR LES BOUES DE STEP

2.1 INTRODUCTION

Depuis une dizaine d'années, de nombreuses directives européennes ont été publiées dans le domaine de la protection de l'environnement. Elles ont une incidence directe ou indirecte sur le devenir des boues. Par exemple la Directive 91/271/CEE sur l'assainissement des agglomérations conduira, dans les prochaines années, à accroître considérablement la production de boues résiduaire dans l'Union Européenne (UE). L'objectif de cette directive est que « *toute agglomération supérieure à 2 000 équivalent habitant (éqh) devra être équipée en stations d'épuration avant le 31 décembre 2005* ».

En France, le statut juridique ou réglementaire des boues d'épuration est défini par le décret 97-1133 du 8 décembre 1997 relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées. Selon ce décret, les boues de STEP sont considérées comme des déchets au sens de la loi du 15 juillet 1975 sur les déchets. Toutefois, elles peuvent être épandues sur les terres agricoles si elles présentent un intérêt pour l'amendement des cultures. A ce titre, les boues constituent également une matière fertilisante au sens de la loi 79-595 du 13 juillet 1979, mais sans que cela confère un nouveau "statut" aux boues d'épuration : celles-ci restent bien des déchets. Seule l'homologation ou la conformité à une future norme « matières fertilisantes » (non existante actuellement), peut faire perdre le statut de déchet à la boue ainsi transformée.¹

L'épandage agricole des boues d'épuration s'inscrit dans la logique du recyclage dans le milieu naturel et de l'économie des ressources non renouvelables. L'épandage des boues fait intervenir plusieurs acteurs à plusieurs niveaux, avec notamment deux étapes bien distinctes :

- la mise en place de valeurs réglementaires associées à des valeurs normalisées
- le suivi de l'application de ces normes sur le terrain.

Chaque intervenant prend une marge de sécurité supplémentaire par rapport à la réglementation. L'épandage agricole des boues est encadré par la directive 86/278/CEE du 12 juin 1986 au niveau de l'UE.

Depuis 1998, la commission européenne envisage de réviser cette directive en proposant des Valeurs Limites de Concentration (VLC) en Eléments Traces Métalliques (ETM) dans les boues beaucoup plus faibles que celles en vigueur et en intégrant pour la première fois des VLC pour les composés traces organiques (CTO).

¹ <http://www.ademe.fr/partenaires/Boues/>

2.2 CONTEXTE EUROPEEN

La production de boues d'épuration urbaines dans les pays de l'Union européenne et en Suisse s'élève à 7,7 millions de tonnes de matière sèche. La proportion de boues d'épuration éliminée par voie agricole se situe en moyenne à 40% de la production européenne.

Si la commission européenne fixe le cadre législatif, chaque pays n'en garde pas moins des pratiques très éloignées de celles de ses voisins. La **Figure 1** présente la part de l'épandage des boues dans les différents pays européens. Les situations sont très variables d'un pays à l'autre.

La France, le Danemark, le Luxembourg et la Belgique wallonne se situent dans la fourchette haute (entre 55% et 90%). Les autres pays privilégient la mise en décharge (ou en centre de stockage) des boues d'épuration. C'est le cas de la Grèce (90%), l'Italie (81%), la Belgique Flamande (60%), l'Allemagne et le Pays-Bas (48%), même s'ils ont un potentiel suffisant de terrains d'épandage (surface nécessaire à l'épandage des boues dans l'Union européenne correspond à 6% de la surface agricole utile). À moyen terme, ces pays devront pourtant trouver une alternative, la réglementation européenne restreignant les possibilités de mise en décharge.

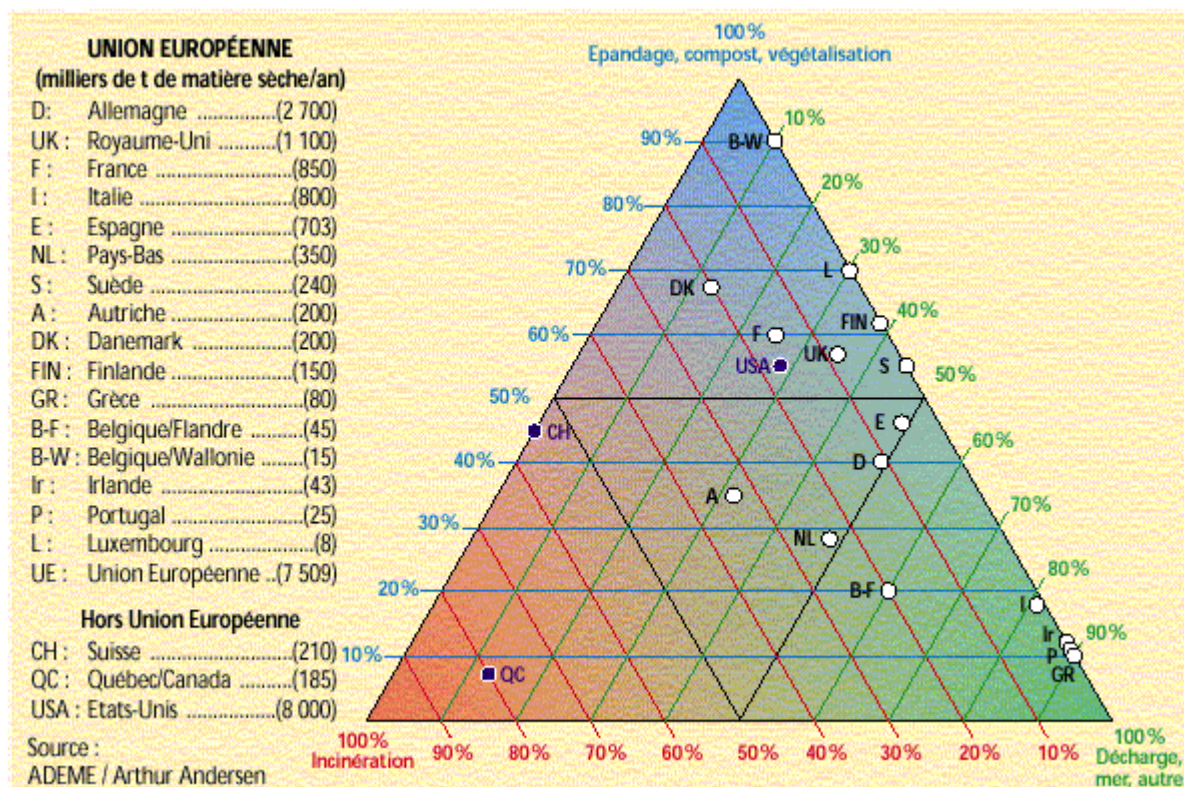


Figure 1 : L'épandage des boues d'épuration dans l'Union européenne - Source : Ademe - Arthur Andersen, 1999. IFEN - Les données de l'environnement n°63 - Février 2001

2.2.1 LES DIRECTIVES EUROPEENNES

Le cadre légal européen en matière d'épandage de boues est fixé par deux directives :

- **La Directive 86/278/CEE du 12 juin 1986** (modifiée par la directive du 2 décembre 1988) relative à la protection de l'environnement, et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture.

Elle régit l'utilisation des boues d'épuration en agriculture, de manière à éviter des effets nocifs sur les sols, la végétation, les animaux et l'homme, tout en encourageant leur utilisation correcte en imposant des restrictions diverses. Elle soumet l'épandage de boues à des restrictions diverses, fixe des modalités de surveillance particulières (registres d'épandage, analyses périodiques de sols, et de lots de boues...), définit pour l'ensemble des métaux lourds des Valeurs Limites de Concentration (VLC) pouvant être contenues dans les boues et fixe également les quantités maximales annuelles en métaux lourds dans les terres agricoles².

En revanche, **aucune VLC pour les Composés Traces Organiques (CTO) n'est fixée par cette directive.**

Chaque Etat membre doit :

- fixer les quantités maximales de boues apportées aux sols, par unité de surface et par an, en respectant les valeurs limites de concentration en métaux lourds dans les boues indiquées dans la directive,
- interdire l'utilisation des boues si celles-ci présentent des VLC en métaux non conformes (non respect de la directive) et,
- décider des analyses à effectuer, la fréquence avec laquelle elles seront réalisées et les éventuels paramètres supplémentaires à contrôler (rappel : le pH et les métaux lourds sont obligatoires).

Cette directive est en cours de révision. Le projet de cette nouvelle directive semble plus contraignant que l'ancienne et prévoit des mesures réglementaires plus draconiennes sur les métaux, et fixe des VLC pour les CTO.

Le **Tableau 1** présente les valeurs limites de concentration (VLC) en métaux lourds dans les boues destinées à être épandues et dans les sols agricoles indiquées dans la directive 86/278/CEE. Les valeurs limites de concentration indiquées dans le projet de la nouvelle directive³ ont également été rajoutées. Elles concernent les métaux lourds mais également les composés organiques et les dioxines.

² Directive 86/278/CEE annexe, 1A, B, 1C

³ Document de travail sur les boues d'épuration – 3^{ème} projet – 11-1999-00478-01-00Fr-TRA-00 (EN)

Tableau 1 : Valeurs Limites de Concentration (VLC) en ETM dans les boues destinées à être épandues et dans les sols agricoles (Directive 86/278/CEE – Annexes 1A et 1B) et proposition des nouvelles Valeurs Limites de Concentration (VLC) pour les ETM, les CTO dans les boues destinées à être utilisées sur les sols - projet de directive « boues » (2000)

Paramètres	Directive 86/278/CEE Annexes 1A et B		Projet Directive Européenne (version 24/05/2000)
	VLC boues (mg/kg de MS)	VLC sols ⁽¹⁾ en (mg/kg de MS) pH sol de 6 à 7	VLC boues proposées (mg/kgMS)
Cadmium	20 à 40	1 à 3	10
Cuivre	1000 à 1 750	50 à 140 ⁽²⁾	1000
Nickel	300 à 400	30 à 75 ⁽²⁾	300
Plomb	750 à 1200	50 à 300	750
Zinc	2500 à 4000	150 à 300 ⁽²⁾	2500
Mercure	16 à 25	1 à 1,5	10
Chrome ⁽³⁾	-	-	1000
AOX (Somme des composés organohalogénés adsorbables)	-	-	500
LAS Alkylbenzènesulfonates à chaîne linéaire	-	-	2 600
DEHP Di(2-éthylhexyl)phthalate	-	-	100
NPE (nonylphénol et éthoxylates de nonylphénol à 1 ou 2 groupements éthoxy)	-	-	50
HAP (Somme: acénaphène, phénanthrène, fluorène, fluoranthène, pyrène, benzo (b+j+k) fluoranthène, benzo (a) pyrène, benzo (ghi) pérylène, indéno (1, 2, 3-c,d) pyrène.	-	-	6
PCB (Somme des PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153, 180)	-	-	0,8
PCDD/F Polychlorodibenzodioxines / dibenzofurannes	-	-	100 ng ET ⁽⁴⁾ /kg MS

⁽¹⁾ Les Etats membres peuvent autoriser un dépassement des valeurs limites reprises ci-dessus dans le cas de l'utilisation des boues sur des terres qui, lors de la notification de la présente directive, sont consacrées à l'élimination des boues mais sur lesquelles s'effectuent des cultures à but commercial destinées exclusivement à la consommation animale. Les Etats membres communiquent à la Commission le nombre et la nature des sites concernés. Ils veillent en outre à ce qu'il n'en résulte aucun danger pour l'homme et l'environnement.

⁽²⁾ Les Etats membres peuvent autoriser un dépassement des valeurs limites pour ces paramètres sur des sols dont le pH est constamment supérieur à 7.

⁽³⁾ Il n'est pas possible, à ce stade, de fixer des valeurs limites pour le chrome. Le Conseil fixera ces valeurs limites à un stade ultérieur sur la base de propositions que la Commission présentera dans un délai d'un an suivant la notification de la présente directive.

⁽⁴⁾ ET : Equivalent toxique (en poids) de la 2,3,7,8 tétrachlorodibenzoparadioxine [TCDD-2,3,7,8]. La TCDD-2,3,7,8 est le composé le plus toxique de la famille des dioxines.

- CTO non réglementé par la Directive de 86/278/CEE

- **La Directive 91/271/CEE du 21 mai 1991** relative au traitement des eaux urbaines résiduaires, fixe des objectifs d'équipement des agglomérations en systèmes de collecte et de traitement des eaux résiduaires.

Elle établit des normes de traitement à atteindre en 2005 en vue de protéger l'environnement contre une détérioration due aux rejets des eaux résiduaires. Elle autorise la réutilisation des boues d'épuration lorsque cela s'avère approprié mais interdit aux Etats membres le déversement des boues d'épuration dans les milieux aquatiques depuis le 31/12/1998. Cette interdiction de déversement de boues en mer n'a pas été sans poser d'importants problèmes pour les pays comme la Grande-Bretagne, l'Irlande ou l'Espagne.

Elle renforce également les exigences en termes de population raccordée et d'objectifs de traitement, ce qui va entraîner une augmentation des boues produites, de l'ordre de 40 % à 100% dans les dix ans à venir, selon les estimations et selon les pays. A terme, les nouvelles directives européennes sur l'environnement vont conduire au traitement de tous les effluents urbains. Les agglomérations dont l'équivalent habitant est supérieur à 2 000 devaient être équipées en stations d'épuration avant le 31 décembre 2005 et les exigences en matière de qualité des rejets en eaux épurées seront de plus en plus strictes (article 3 de la directive 91/271/CEE).

Les mesures mises en œuvre par les Etats membres à la première échéance du 31 décembre 2000, date fixée par la directive 91/271/CEE, pour que toutes les agglomérations de plus de 15 000 habitants soient dotées de stations d'épuration montre que des « efforts considérables ont été déployés », ce qui a permis une amélioration de la qualité des eaux douces. Néanmoins, des retards dans la mise en œuvre de la directive sont constatés dans la plupart des Etats membres. Plusieurs pays ont été condamnés : la Belgique, la Grèce, la France, l'Italie.

La condamnation de la France⁴ porte sur le non-respect des dispositions de la directive, à double titre. D'une part, les zones sensibles menacées d'eutrophisation n'ont pas été identifiées et d'autre part, les rejets des eaux urbaines provenant de diverses agglomérations n'ont pas été soumis à un traitement suffisamment rigoureux.

Pour répondre à cet arrêt, la France engage une révision de la délimitation des zones sensibles à l'eutrophisation ainsi que des objectifs à prendre en compte pour le traitement plus poussé des eaux usées au travers de la circulaire du 9 novembre 2004 relative à l'assainissement des zones usées urbaines.

⁴ Arrêt de la Cour du 23 septembre 2004 – Manquement d'état

2.3 MISE EN ŒUVRE DE LA RÉGLEMENTATION EUROPÉENNE DANS LES DIFFÉRENTS PAYS

Dans la plupart des pays, les boues sont soumises à des réglementations nationales plus strictes que la réglementation européenne (Directive 86/278/CEE). Les Etats membres ont eu largement recours à la possibilité que leur accorde l'article 12 de la directive, qui stipule que « *lorsque les conditions l'exigent, les Etats membres peuvent adopter des mesures plus strictes que celles prévues dans la directive* ».

2.3.1 CAS DES MÉTAUX LOURDS

L'ADEME a établi une comparaison des différentes réglementations nationales qui permet de hiérarchiser les Etats membres selon la sévérité des seuils.

Le **Tableau 2** présente les différentes valeurs réglementaires en métaux lourds dans les boues, destinées à l'épandage, fixées par les pays européens (mg/kg de MS). Il montre clairement que les Etats sont répartis en trois catégories :

- les pays à réglementation aussi stricte que la directive européenne 86/278/CEE du 12 juin 1986 : il s'agit de la Grèce, l'Italie, l'Espagne, l'Irlande et le Luxembourg ;
- les pays à réglementation plus stricte que la directive, avec des seuils de l'ordre de 50 % des seuils fixés par la directive : il s'agit de l'Allemagne, la Belgique, la France ;
- les pays à réglementation beaucoup plus stricte que la directive : il s'agit du Danemark, de la Finlande, de la Suède, des Pays-Bas et de l'Autriche. Les concentrations maximales autorisées dans ces pays sont de deux à dix fois plus faibles qu'en France, selon les métaux lourds.

On note que plus l'on se déplace vers le Nord, plus les seuils sont renforcés.

Dans la région wallonne de la Belgique, ainsi qu'au Danemark, en Finlande, en France, en Irlande, au Luxembourg, en Suède et au Royaume-Uni, seuls le pH et les métaux lourds sont analysés dans les sols. En Allemagne, la réglementation impose également d'analyser les phosphates, le potassium et le magnésium. Au Portugal, ce sont les paramètres azote et phosphore qui, sont réglementés en plus.

Tableau 2 : Valeurs réglementaires en métaux lourds dans les boues, destinées à être épandues, fixées par les pays européens (mg/kg de MS)

Paramètre	Directive 86/278/CEE	Espagne		Grèce	Italie	Irlande	Luxembourg	Portugal	Allemagne	France	Belgique		Autriche	Danemark	Finlande	Pays-Bas	Suède
		pH>7	pH<7								F	W					
Cd	20 - 40	20	40	20-40	20	20	20- 40	20	10	10*	6	10	0.7-10	0.8	3	1.25	2
Cr	-	1000	1500	Cr(III) 500 Cr(VI) 10	-	-	1000- 1750	1000	900	1000	250	500	50-500	100	300	75	100
Cu	1000 - 1750	1000	1750	1000-1750	1000	1000	1000- 1750	1000	800	1000	375	600	70-500	1000	600	75	600
Hg	16 - 25	16	25	16 - 25	10	16	16- 25	16	8	10	5	10	0.4-10	0.8	2	0.75	2.5
Ni	300 - 400	300	400	300 - 400	300	300	300 2- 400	300	200	200	50	100	25-100	30	100	30	50
Pb	750 - 1200	750	1200	750 - 1200	750	750	750 - 1200	750	900	800	300	500	45-500	120	150	100	100
Zn	2500 - 4000	2500	4000	2000-4000	2500	2500	2500 - 4000	2500	2500	3000	900	2000	200- 2000	4000	1500	300	800
As											150						

* depuis le 1^{er} janvier 2004

Source : Données tirées du rapport du 10.01.2000 de la commission des communautés européennes sur l'avancement de la mise en œuvre de la Directive 86/278/CEE.

2.3.2 CAS DES COMPOSES TRACES ORGANIQUES

Les composés traces organiques (CTO) sont des substances organiques d'origines diverses présentes à l'état de traces dans les boues. Les substances considérées le plus fréquemment sont les HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques) et les PCB (PolyChloroBiphényles).

Plusieurs Etats membres ont toutefois notifié à la Commission Européenne un certain nombre de composés supplémentaires pour lesquels des seuils ont été fixés (au niveau de leur pays). Le **Tableau 3** présente les valeurs limites en composés traces organiques dans les boues, destinées à l'épandage, fixées par les pays européens (mg/kg de MS). Il met en évidence que selon les pays européens, les composés traces organiques réglementés sont différents :

- les composés organohalogénés adsorbables (AOX) ainsi que les dioxines et les furannes (PCDD/F) sont réglementés en Autriche et en Allemagne ;
- les PCB sont réglementés en Allemagne, en Autriche, en France et en Suède ;
- les HAP sont réglementés au Danemark, en France et en Suède, etc.

Tableau 3 : Concentrations limites en composés traces organiques dans les boues d'épuration destinées à être épandues dans divers pays européens – Organic contaminants in sewage sludge for agricultural use, EC oct 2001

Paramètres	Projet Directive Européenne (version 24/05/2000)	Danemark	Suède	Autriche	Allemagne	France
AOX (mg/kg dm)	500	-	-	500	500	
DEHP (mg/kg dm)	100	50	-	-		
LAS (mg/kg dm)	2600	13000	-	-		
NP / NPE (mg/kg dm)	50	10	50	-		
PAH (mg/kg dm)	6 ⁽¹⁾	3 ⁽¹⁾	3 ⁽³⁾	-		9,5 ⁽⁶⁾
PCB (mg/kg dm)	0,8 ⁽²⁾	-	0,4 ⁽⁴⁾	0,2 ⁽⁵⁾	0,2 ⁽⁵⁾	0,8 ⁽⁴⁾
PCDD/F (ngTEq/kg dm)	100	-	-	100	100	

⁽¹⁾ Σ de 9 HAP : Acenaphthylene, Fluorene, Phenanthrene, Fluoranthene, Pyrene, Benzo [b,j,k] fluoranthene, Benzo [a] pyrene, Benzo [g,h,i] perylene and Indeno [1,2,3,-cd] pyrene

⁽²⁾ Σ de 6 congénères PCB : 28 ; 52 ; 101 ; 138 ; 153 ; 180.

⁽³⁾ Σ de 6 HAP : Fluoranthene, Benzo [g,h,i] pérylène, , Indeno [1,2,3,-cd] pyrene, Benzo [a] pyrene, Benzo [b] fluoranthene, Benzo [k] fluoranthene.

⁽⁴⁾ Σ de 7 congénères PCB : 28 ; 52 ; 101 ; 118 ; 138 ; 153 ; 180

⁽⁵⁾ chaque congénère PCB : 28 ; 52 ; 101 ; 138 ; 153 ; 180.

⁽⁶⁾ Σ de 3 HAP : Fluoranthène, benzo[b] fluoranthène, Benzo[a] pyrène

2.4 LA SITUATION FRANÇAISE

2.4.1 PRODUCTION DE BOUE EN FRANCE

En France, la production est de l'ordre de 15 à 20 kg/habitant/an de MS, soit 75 à 100 kg/habitant par an de boues pâteuses à 20 % de siccité (*Andersen A, 1999*). Fin 2000, la France produit 850 000 tonnes de MS de boues d'épuration municipales. Concrètement, si le taux de dépollution (part de la pollution traitée sur la pollution émise) passe de 49% actuellement, à 65% à l'horizon 2005 (du fait de l'application de la Directive Européenne du 21 mai 1991 relatif au traitement des eaux urbaines résiduaires), la production de boues d'épuration pourrait atteindre, à cette date, 1,3 millions de tonnes MS, soit une augmentation de 30%.

Trois principales filières existent pour traiter et évacuer les boues en France. La répartition est la suivante :

- l'épandage agricole (60 %)
- la mise en décharge (25 %)
- l'incinération (15 %)

Aujourd'hui, 60 % des boues produites sont épandues. Toutefois cela ne touche que 2 à 3 % de la surface agricole utile. L'épandage agricole a été privilégié du fait de son intérêt économique, agronomique. Il obéit à des règles strictes, tant au niveau de sa mise en œuvre concrète sur les sols agricoles que des procédures de suivi et de contrôle qu'il doit respecter. Ces règles ont pour objet d'assurer la sécurité sanitaire de la filière, la protection de l'environnement (sols, ressources en eau...) et les riverains contre les nuisances.

2.4.2 REGLEMENTATION FRANÇAISE

Aucun accident ou même incident, lié à la pratique de l'épandage des boues de stations d'épuration, mettant en cause la santé humaine n'est à déplorer depuis 30 ans. Cependant les boues des stations d'épuration urbaines sont considérées comme un déchet au sens de la loi du 15 juillet 1975.

Les précautions prises vis-à-vis de cette pratique, garantissant la sécurité alimentaire et le maintien des fonctions environnementales des sols agricoles sont encadrées essentiellement par les textes suivants :

- **Décret du 8 décembre 1997** (Journal Officiel du 10 décembre 1997) relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées. Il a pour objectif de définir et de décrire les conditions générales d'épandage sur les sols agricoles, forestiers ou en voie de reconstitution ou de revégétalisation. Il fixe, en matière d'épandage des boues, les règles générales d'hygiène et toutes autres mesures propres à préserver la santé de l'homme et des animaux etc....

- **Arrêtés du 8 janvier 1998 et du 3 juin 1998 :**

- L'arrêté du 8 janvier 1998 fixe les prescriptions techniques applicables aux épandages de boues sur les sols agricoles pris en application du décret n°97-1133 du 8 décembre 1997 relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées.
- L'arrêté du 3 juin 1998, modifiant l'arrêté du 8 janvier 1998, fixe des teneurs limites en CTO dans les boues.

L'arrêté du 8 janvier 1998, définit les exigences à respecter en terme du contenu de l'étude préalable, des modalités de surveillance, de la synthèse annuelle à adresser chaque fin d'année au service chargé de la Police des eaux et aux utilisateurs de boues etc...

Il demande que les boues soient épandues de manière homogène sur le sol et que les boues non stabilisées épandues sur sol nu soient enfouies dans un délai de 48 heures. Il définit des domaines et des périodes d'application, indépendamment de la nature des sols. Il apporte des informations techniques relatives aux conditions d'épandage et notamment aux valeurs seuils des boues en Eléments Traces (ET).

Il s'appuie sur les valeurs références de la norme AFNOR 44-041 (**Tableau 4**). Jusqu'au 31 décembre 1999, des dépassements sur ces valeurs limites étaient tolérés, sans toutefois dépasser une teneur égale à 1,5 fois la valeur limite. Certains ET ont été retenus comme indicateurs de teneurs - limites. Si l'un de ces indicateurs dépasse la valeur fixée, l'épandage des boues est interdit. En parallèle, des quantités maximales d'apport à l'hectare (flux-limites) ont été fixées.

Tableau 4 : Annexe 1 : seuils en ETM dans les boues et les sols – Arrêté du 8 janvier 1998 « épandage des boues de STEP – Recueil des textes relatifs à l'épandage en Agriculture des boues issues du traitement des eaux usées urbaines MATE

Eléments-traces (ET)	Valeur limite dans les boues mg/kg MS	Flux maximum cumulé, apporté par les boues en 10 ans (g/m ²)	Valeur limite dans les sols en mg/kg
Cadmium	10 ⁽¹⁾	0.015 ⁽²⁾	2
Chrome	1000	1,5	150
Cuivre	1000	1,5	100
Mercure	10	0,015	1
Nickel	200	0,3	50
Plomb	800	1,5	100
Zinc	3000	4,5	10
Chrome, cuivre, nickel, zinc	4000	6	300

⁽¹⁾ Depuis le 1^{er} janvier 2004

⁽²⁾ Depuis le 1^{er} janvier 2001

L'arrêté du 3 juin 1998 a introduit, pour la première fois dans la réglementation française, des valeurs limites en CTO pour 10 molécules dans les boues, ainsi que des maximums cumulés apportés par les boues sur 10 ans. Les teneurs limites et les flux limites définis concernent les composés les plus persistants dans l'environnement. Il s'agit des HAP et des PCB (**Tableau 5**).

Tableau 5 : Teneurs limites en CTO dans les boues (tableau 1B, Arrêté du 3 juin 1998)

Composés Traces Organiques CTO	VLC (mg/kg MS) dans les boues		Flux maximum cumulé, apporté par les boues en 10 ans (mg/m ²)	
	Cas général	Epandage sur pâturage	Cas général	Epandage sur pâturages
Total des 7 principaux PCB⁽¹⁾	0,8	0,8	1,2	1,2
Fluoranthène	5	4	7,5	6
Benzo[b]fluoranthène	2,5	2,5	4	4
Benzo[a]pyrène⁵	2	1,5	3	2

(1) : regroupe les PCB 28, 52, 101, 118, 138, 153, 180.

- **Circulaire du 14 mars 1999 relative** à la réglementation de l'épandage des boues de stations d'épuration urbaines. Cette circulaire est un document d'aide à la mise en œuvre du décret du 8 décembre 1997 et de son arrêté d'application du 8 janvier 1998 relatifs à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées. Elle fournit également des informations sur le Comité National sur l'épandage des Boues d'épuration (CNB).

⁵ Le benzo [a] pyrène est le composé le plus étudié et le plus représentatif des effets causés par les substances appartenant au groupe des HAP. Il est jugé prioritaire par tous les experts. L'impact environnemental des HAP est donc souvent exprimé en termes d'équivalents de benzo [a] pyrène.

Ces textes réglementaires résultent de l'obligation de traduire en droit national la directive européenne 86/278/CEE. Ils s'inscrivent dans le cadre des lois sur les déchets (n° 75-633 du 15 juillet 1975), sur l'eau (n° 92-3 du 3 janvier 1992), et le code de la santé publique. Ils mettent l'accent sur la responsabilité de l'exploitant, la qualité des boues et des sols, les analyses des boues, et sur les périmètres d'épandage. Pour cela, ils imposent une procédure stricte :

✓ la réalisation d'une étude préalable, accompagnée d'analyses des boues à épandre et des sols devant les recevoir,

✓ la programmation des opérations comprenant un programme prévisionnel, une information préalable, des analyses de boues et de sols, un contrôle de terrain par un responsable désigné et la tenue d'un registre des épandages, enfin un bilan agronomique dûment enregistré chaque année.

✓ la fixation des VLC pour les teneurs en ETM et CTO.

2.4.3 POSITIONNEMENT DE LA FRANCE PAR RAPPORT AUX AUTRES PAYS

En terme de pratique d'épandage et de quantités épandues, par rapport aux pays européens, la France fait partie des pays qui privilégient au maximum l'épandage des boues devant tout autre mode d'élimination. Ses propositions en matière de normalisation européenne font autorité. Elle préside :

- le Comité Européen de Normalisation sur les boues d'épuration (CEN TC 308) qui élabore des méthodes d'analyse de boues harmonisées pour l'ensemble des pays européens et rédige des guides de bonnes pratiques sur la production et les voies d'élimination des boues.
- le groupe de travail « micropolluants organiques » de la CEN BT/TF15, créée par le CEN pour accueillir les méthodes d'analyses transversales multimatrices boues/sols/composts mises au point dans le cadre du projet HORIZONTAL financé par la DG ENV.

En terme d'exigences réglementaires, en particulier sur le plan de la protection de l'environnement, la France s'ajuste sur l'Allemagne mais ne retient pas les valeurs limites en ET, extrêmes par leur sévérité, de certains pays d'Europe du Nord (Pays-Bas, Danemark, Suède).

L'architecture réglementaire française est reconnue comme exemplaire en Europe (ADEME, www.acta.asso.fr/epuration/data/pages/chap5.htm).

3. SUBSTANCES SUSCEPTIBLES D'ETRE PRESENTES DANS LA MATRICE BOUE

L'objectif de ce chapitre est de déterminer les substances susceptibles d'être présentes dans les boues de par leurs propriétés intrinsèques. Les propriétés intrinsèques des substances jouent un rôle essentiel dans leur comportement. Elles sont déterminantes sur la manière dont les polluants vont migrer, et donc, de fait sur les conséquences d'une pollution.

Après un rappel des principales propriétés intrinsèques à prendre en compte, une liste de substances ayant des propriétés d'adsorption sur la matrice solide et appartenant à la liste des 132 substances de la directive de 76/464/CEE et/ou à la liste des 33 substances de la directive 2000/60/CE a été établie.

3.1 PARAMETRES A PRENDRE EN COMPTE

- **Solubilité dans l'eau (hydrosolubilité)**

Elle définit la concentration maximale d'une substance se dissolvant dans l'eau lorsque l'eau et la substance sont en équilibre. Cette propriété indique la tendance à la mobilisation de la substance par lessivage lors d'épisodes pluvieux ou par ruissellement ou inondation.

- **Le coefficient de partition carbone octanol-eau (Kow)**

Il représente le rapport des concentrations d'équilibre d'une substance dissoute dans un système à deux phases non miscibles (eau et octanol). Ce coefficient permet d'apprécier le caractère hydrophobe ou hydrophile d'un composé. Le coefficient Kow d'un polluant va influencer sur la manière dont il se fixe dans les sols, et notamment dans les sols riches en matière organique. Il va influencer sur la manière dont il est mobilisé par l'eau de ruissellement. Le Tableau 6 présente le potentiel d'adsorption d'un composé à la surface d'une boue d'épuration en fonction du coefficient de partage octanol/eau.

Tableau 6 : Estimation du potentiel d'adsorption d'un composé à la surface d'une boue d'épuration à partir de la valeur du coefficient de partage octanol/eau.

Log Kow	Kow	Potentiel d'adsorption
< 2,5	< 316	Faible
2,5 - 4	316 – 10 000	Moyen
> 4	> 10 000	Haut

- **Le coefficient de partition carbone organique-eau (Koc)**

Il représente le potentiel de rétention d'une substance chimique sur la matière organique du sol.

Le Koc, coefficient de partage carbone organique/eau, donne une indication sur l'aptitude de la molécule à être adsorbée ou désorbée sur la matière organique. Il est exprimé généralement en quantité de substance adsorbée par unité de masse de carbone organique.

- **La constante de Henry (K_H)**

Elle caractérise la partition d'une substance à se partager entre les 2 phases d'un système binaire air/eau. La constante de Henry est utilisée pour représenter la tendance à la volatilisation des substances à partir de solution aqueuses.

Le **Tableau 7** présente le potentiel de volatilisation d'un composé en fonction de la constante d'Henry et du coefficient de partage n-octanol/eau (Kow).

Tableau 7 : Relation entre la constante d'Henry et le potentiel de volatilisation d'un composé

Hc	Hc / Kow	Potentiel de volatilisation
> 1.10 ⁻⁴	> 1.10 ⁻⁹	Haut
< 1.10 ⁻⁴	< 1.10 ⁻⁹	Faible

- **Volatilité**

La volatilité d'un composé organique pur est définie par sa constante de tension de vapeur à 20°C. Un composé est considéré comme volatil si son point d'ébullition est inférieur à 300°C (exemples : HAP, halogénés volatils, certains chlorophénols, naphthalène). Un composé est considéré comme semi-volatil si son point d'ébullition est supérieur à 300°C (exemples : HAP, PCB et pesticides). Les métaux lourds sont à considérer comme non volatils, sauf le mercure dont le point d'ébullition est de 357°C à une pression de 101 kPa (BRGM, 2001).

- **Pression de vapeur (Pa)**

La pression de vapeur est la pression partielle d'un composé dans la phase gazeuse, en équilibre avec le solide pur ou le liquide pur. Elle est fonction de la température et s'exprime en Pa. Il existe une relation entre la tension de vapeur et le point d'ébullition d'un composé organique : plus sa pression de vapeur est faible, plus son point d'ébullition est élevé.

- **Stabilité (Demi-vie)**

La vitesse de disparition d'un polluant est caractérisée par un temps de demi-vie. Ce temps représente le temps durant lequel une fraction représentant 50% de la quantité initiale de substance disparaît par dégradation thermique, biologique ou photolytique de la molécule initiale. Plus ce temps est important, plus le composé montre des potentialités de persistance dans l'environnement.

Il est en général considéré que :

- $\frac{1}{2}$ vie < 10 jours : *Biodégradabilité importante*
- $\frac{1}{2}$ vie de 10 à 50 jours : *Biodégradabilité moyenne*
- $\frac{1}{2}$ vie > 50 jours : *Biodégradabilité faible*

Les propriétés intrinsèques des polluants, jouant un rôle essentiel dans leur comportement et sur les conséquences d'une pollution, sont regroupées dans le **Tableau 8**.

Tableau 8 : Caractéristiques physico-chimiques gérant le comportement des polluants (Pellet, 1994 cité par le BRGM, 2001)

Critères de comportement	Grandeurs caractéristiques	Incidence	Polluant organique	Polluant inorganique
Capacité à se solubiliser	Solubilité dans l'eau	Une forte solubilité constitue un facteur aggravant des pollutions. En revanche, les polluants organiques très solubles sont plus facilement biodégradables.	x	x
Ecoulement vertical du fluide	Densité du liquide par rapport à l'eau (Viscosité)	Cinétique du modèle.	x x	x (Hg)
Capacité à se volatiliser	Tension de vapeur Température d'ébullition Constante de Henry	Influe sur la manière dont le polluant s'infiltré dans les sols, dont il se libère par évaporation naturelle ou dont il est éliminé lors des opérations de dépollution ; cette propriété est importante pour le choix d'une technique de dépollution.	x x x	
Migration verticale des vapeurs	Densité de vapeur par rapport à l'air	Comportement vis-à-vis de la nappe superficielle ou sous-jacente.	x	
Affinité avec l'eau (polarité, hydrophobie)	Coefficient de partage eau / octanol (Kow)	Influence sur la rétention d'un composé par la matière organique des sols, sur sa mobilisation par de l'eau d'infiltration, ou sur son extraction lors des opérations de dépollution. Influe aussi sur la biodisponibilité et le potentiel de bioaccumulation.	x	
Capacité à être piégé (adsorption)	Coefficient de partage eau/carbone organique (Koc)	Il caractérise la tendance d'un composé à être retenu par la matière organique des sols, plus le Koc est élevé, plus le composé tend à quitter l'eau pour se fixer sur la matière organique.	x	x
Stabilité biochimique	Temps de demi-vie Dérivés	Persistance dans l'environnement.	x	x

Les principales propriétés intrinsèques influençant l'adsorption des polluants sur la boue ou un solide sont :

- ✓ le coefficient de partition octanol-eau (K_{ow}),
- ✓ le coefficient de partition carbone organique-eau (K_{oc})
- ✓ la constante de Henry (K_H)

Il existe une relation empirique étroite entre les deux paramètres K_{ow} et K_{oc} dépendant de la molécule considérée (*Lyman, W.J et al*), c'est pourquoi dans la suite du rapport, seules les valeurs relatives à K_{ow} seront utilisées.

3.2 AUTRES FACTEURS INFLUENÇANT L'ADSORPTION DES ELEMENTS TRACES

Toutefois, les propriétés physico-chimiques du solide ont également une incidence sur la rétention des polluants. Les paramètres de la matrice solide intervenant dans les interactions matrice solide/polluant sont :

- la capacité d'échange cationique (CEC) : elle fournit une précieuse indication sur la capacité que possède la matrice à échanger ses cations résidents
- la matière organique (MO)
- le pH
- l'état d'oxydation
- les oxydes et hydroxydes
- la teneur en eau

D'une manière générale, les propriétés importantes pour l'interaction boue / polluant sont (*Bourjat.v*) :

- ✓ la teneur en MO et la granulométrie pour les polluants organiques
- ✓ la composition minéralogique de la boue, la teneur en MO, la CEC et le pH pour les polluants métalliques.

3.3 ETUDES EXPERIMENTALES SUR LE COMPORTEMENT DES COMPOSES

Les études réalisées à l'INERIS sur les substances organiques montrent que certains composés s'adsorbent préférentiellement sur les matrices solides et sont rarement retrouvés dans les matrices eau. Ces études reposent essentiellement sur des essais expérimentaux réalisés au cours de deux essais interlaboratoires⁶ réalisés en 2003 et 2004 sur 4 familles de composés organiques de la DCE et sur une étude bibliographique réalisée sur les MES⁷.

L'étude bibliographique a permis d'élaborer une liste de composés adsorbables sur les MES (**Tableau 9**) en fonction de leurs propriétés intrinsèques.

Tableau 9 : Liste des composés adsorbables sur les MES (d'après une étude de l'INERIS sur les MES et l'analyse des eaux, 2004)

Elaboration liste	Composés DCE	Propriétés intrinsèques
Composés fortement adsorbables sur matrice solide	HAP ; PCB ; Hexachlorobenzene ; Pentachlorobenzene ; 1,2,4,5-tétrachlorobenzene ; Hexachlorobutadiène ; Chlorophénol ; Alkylphénol , PBDE, Alachlor, Atrazine ; Chlorfenvinphos ; Chlorpyrifos ; Diuron ; Endosulfan ; Hexachlorocyclohexane ; Lindane ; Isoproturon ; Simazine ; Trifluraline ; Chloroalcanes ; Di(2ethylhexyl)phthalate ; Biphenyl	Log Kow > 3 (à 20-25° C) : Hydrophobes
Composés moyennement adsorbables sur matrice solide	Trichlorobenzènes, Chlorobenzènes, Dichlorobenzènes, Chlorotoluènes, BTEX, COHV (sauf Hexachloropentadiène et Hexabutadiène)	$2 \leq \text{Log Kow} \leq 4$ (à 20-25° C) : Amphiphiles
Composés faiblement adsorbables sur matrice solide	Chloronitrobenzènes, Nitroaromatiques, Anilines, Acides Chloroacétiques, Epichlorhydrine, Tributylphosphate	Log Kow < 2 (à 20-25° C) : Hydrophiles

⁶ Essai interlaboratoires sur les substances prioritaires de la DCE – HAP et COHV – INERIS-DRC-CHEN-04-45699-BLe/JL-04.0057- Essai interlaboratoires sur les substances prioritaires de la DCE – Pesticides et Chlorophénols – INERIS-DRC-04-59505-CHEN-BLe-05.0019.

⁷ Les matières en suspension et l'analyse des eaux – Influence des matières en suspension sur l'analyse des substances prioritaires dans les eaux – INERIS –DRC-45698-CHEN-AB/AB/04.0102.mes.sept.doc

Les essais expérimentaux réalisés au cours de l'essai interlaboratoires INERIS 2003 renforcent ces conclusions pour la famille des HAP. L'objectif de cet essai était de mettre en évidence le comportement des HAP vis à vis des MES présentes dans une eau résiduaire. Les résultats obtenus sur l'eau résiduaire contenant une teneur en MES de 250 mg/L, montrent que le comportement des HAP dépend des propriétés intrinsèques de ces composés.

- Les HAP de faible poids moléculaire (< 160g/mol) donc de volatilité plus élevée se retrouvent majoritairement dans la matrice eau. Il s'agit du naphthalène et de l'acénaphène. Ces deux composés organiques possèdent des propriétés intrinsèques [forte pression de vapeur (< 0.0133 Pa à 20°C), une forte constante d'Henry ($K_H > 1 \text{ Pa.m}^3/\text{mol}$ à 20°C)].
- Les HAP de haut poids moléculaire (> 250g/mol) s'adsorbent totalement sur la matrice solide. Il s'agit du benzo [a] pyrène, du benzo [b] fluoranthène, du benzo [k] fluoranthène, du benzo [g, h, i] pérylène et de l'indéno [1,2,3 – cd] pyrène. Ces composés organiques possèdent un fort potentiel d'adsorption sur les MES ($\log K_{ow} > 3$) et une faible solubilité ($S < 1 \text{ mg/L}$).

Ces études accréditent l'hypothèse que les composés hydrophobes (forte adsorption sur les MES) présents dans les eaux usées résiduaires auront tendance à s'accumuler préférentiellement dans les boues résiduaires. En complément de ces essais expérimentaux sur une seule famille de composés, les mesures réalisées dans le cadre de l'action 3RSDE, sur les eaux en entrée et en sortie de stations d'épuration fournissent des informations utiles, même si aucune analyse n'a été effectuée sur les boues. En effet, les 33 substances prioritaires notamment, ont fait l'objet d'analyses.

Les résultats obtenus sur 3 stations d'épuration (STEP) de la région Ile de France⁸ mettent en évidence que certains composés quantifiés en entrée en quantités importantes sont retrouvés à des concentrations faibles voire inférieures à la limite de quantification en sortie de station.

Il est donc intéressant de calculer un taux d'abattement pour ces substances entre l'eau en entrée et l'eau en sortie. Les taux d'abattement obtenus sont présentés dans le Tableau 10 ci-dessous. Des taux d'abattement élevés (>50%) sont observés pour certains composés : **métaux, HAP, DEHP, nonylphénol, chlorure de méthylène.**

Or comme nous venons de le voir, de par leurs propriétés intrinsèques, les HAP, les alkylphénols, DEHP sont des composés connus pour se concentrer dans les boues d'épuration (**Tableau 9**). Par ailleurs, les HAP font partie des familles actuellement contrôlées réglementairement (idem pour les métaux).

Que signifient donc ces taux d'abattement ? Indiquent-ils l'efficacité des traitements mis en œuvre au sein de la station d'épuration (dégradation des composés) ? Ou bien s'agit-il d'un simple déplacement de ces polluants vers les boues (ou l'air dans le cas des substances volatiles) du fait de leurs propriétés intrinsèques ?

⁸ Valorisation des premiers résultats de la campagne de mesure des micropolluants dans les rejets des industries et des stations d'épuration vers les cours d'eau - INERIS-DRC-66451-CHEN-05.584/LGr.

La problématique du transfert de pollution vers les boues d'épuration est donc soulevée.

Ces résultats sont toutefois à prendre avec précaution puisqu'ils ne concernent que 3 STEP. De plus, il faut souligner que les prélèvements ont été réalisés en entrée et en sortie de STEP le même jour. Ainsi, un épisode polluant survenu le jour du prélèvement ne peut pas être visible en sortie.

Le jeu de données supplémentaires qui sera disponible au terme de l'action 3RSDE (2007), permettra donc d'affiner ces conclusions.

Les travaux envisagés pour 2006/2007 prévoient une étude plus approfondie des résultats relatifs aux stations d'épuration avec en particulier une distinction des STEP en fonction de l'origine de la pollution traitée (urbaine, mixte...) et du nombre d'EqH.

L'objectif de ces travaux sera de mettre en évidence à partir de résultats d'analyses, quelles sont les substances prioritaires et dangereuses transitant par les STEP et susceptibles de se concentrer dans les boues ou d'être volatilisées.

Tableau 10 : Taux d'abattement pour les substances quantifiées en entrée de 3 stations d'épuration d'Ile de France
(source : Rapport INERIS - DRC- 66451 – CHEN – 05.0584/LGr)

Substance	Abt 1 station 1	Abt 2 station 2	Abt 3 station 3	Propriétés intrinsèques de la substance
Zinc et ses composés	79%	80%	80%	Fortement adsorbable
Cuivre et ses composés	90%	75%	56%	Fortement adsorbable
Plomb et ses composés	62%	96%	36%	Fortement adsorbable
Nickel et ses composés	27%	0%	70%	Fortement adsorbable
Chrome et ses composés	24%	0 %		Fortement adsorbable
Chlorure de méthylène	59%	9%		Volatilisable
Nitrobenzène		99%		
Di (2-éthylhexyl)phtalate	95%	95%		Fortement adsorbable
Tributylphosphate	99%		28%	Faiblement adsorbable
Tétrachloroéthylène	81%	67%	91%	Volatilisable
Chloroforme	51%	93%	63%	Volatilisable
Toluène	-23%		66%	Moyennement adsorbable
2 chlorophénol	-27%			Fortement adsorbable
Trichloroéthylène	79%	62%	78%	Volatilisable
4-(para)-nonylphénol			92%	Fortement adsorbable
Naphtalène		93%		
Fluoranthène	90%	97%		Fortement adsorbable
Dibutylétain cation	66%			
2,4 dichlorophénol			42%	
Monobutylétain cation	86%	0,2%		
Xylènes (Somme o,m,p)			9%	Moyennement adsorbable, volatilisable
Benzo (b) Fluoranthène	59%	76%		Fortement adsorbable
Benzo (g,h,i) Pérylène	56%	62%		Fortement adsorbable
4-tert-butylphénol			73%	Fortement adsorbable
Anthracène	32%	78%		Fortement adsorbable
Acénaphène	0%	62%		Volatilisable
Indeno (1,2,3-cd) Pyrène	6%	38%		Fortement adsorbable
Benzo (a) Pyrène	-25%	50%		Fortement adsorbable

Tout composé ayant des propriétés intrinsèques [$\log K_{ow} > 3$ ou $2 \leq \log K_{ow} < 4$ (à 20-25° C)] s'adsorbera préférentiellement sur la matrice solide.

Les forts taux d'abattement des stations d'épuration pour les composés adsorbables conduisent souvent au respect des normes de qualité en sortie de station d'épuration. Mais, ces composés ne sont pas forcément dégradés par les technologies mises en œuvre, ils peuvent être seulement concentrés dans les boues.

4. MISE EN EVIDENCE DE SUBSTANCES DANS LES BOUES

Une liste de substances susceptibles d'être présentes dans les boues de par leurs propriétés intrinsèques a été établie dans le paragraphe 3.2 (**Tableau 9**). De même, l'étude réalisée auprès de l'agence de l'eau Seine Normandie peut laisser supposer la présence éventuelle de substances dans les boues de stations d'épuration (**Tableau 10**).

L'objectif de cette partie est de vérifier si ces substances ont été réellement retrouvées dans les boues d'épandage à partir des données de la littérature. Cette recherche a donc été menée par type de polluants (métalliques et organiques) afin de vérifier au niveau français, européen ou non si les boues avaient les possibilités de concentrer d'autres polluants que ceux suivis réglementairement et de vérifier si ces polluants rejoignent ceux mis en évidence dans le paragraphe 3.

4.1 PRESENCE D'ELEMENTS TRACES METALLIQUES

4.1.1 MISE EN EVIDENCE EN FRANCE

Les Eléments Traces Métalliques ETM généralement retrouvés dans les boues destinées à l'épandage sont les métaux réglementés, c'est à dire le Cadmium, le Chrome, le Cuivre, le Mercure, le Nickel, le Plomb et le Zinc.

Le **Tableau 11** présente les données collectées à travers des enquêtes ou des campagnes de mesure (*ADEME, 1995 ; Agence de l'eau RMC et Recyval, 1998 ; SYPREA, 2000*). Les données les plus récentes (*SYPREA, 2000*) confirment la baisse continue des teneurs en ET des boues d'épuration.

Tableau 11 : Composition moyenne des boues d'épuration épandues en France (en t/an)

Elément trace identifié	Teneur moyenne en g/t MS	Valeur réglementaire Française g/t MS	% de la valeur - limite
Cadmium	2.5	10	25%
Chrome	50	1000	5%
Cuivre	330	1000	33%
Mercure	2.3	10	23%
Nickel	40	200	20%
Plomb	90	800	11%
Sélénium	10	/	/
Zinc	800	3000	27%

Source : Données moyennées (ordres de grandeur) : *ADEME, 1995 ; Agence de l'eau RMC et Recyval, 1998 ; SYPREA, 2000*.

Le Zinc et le cuivre sont les éléments traces métalliques les plus importants en quantité dans les boues, quelques centaines de g/t MS. Viennent ensuite le plomb, le chrome et le nickel (quelques dizaines de g/t MS), puis le cadmium et le mercure (moins de 3 g/t MS).

Selon les activités économiques spécifiques raccordées au réseau d'assainissement, on peut trouver d'autres éléments comme l'**argent** (rejets de laboratoires photographiques et radiologiques), le **bore**, le **molybdène**, etc.

4.1.2 MISE EN EVIDENCE EN EUROPE / USA

Les données collectées au travers d'enquêtes ou de campagnes de mesure réalisées sur les teneurs en métaux lourds dans différents pays européens, par la Commission Européenne (*Pollutants in urban waste water and sewage sludge – EU 2001*) montrent que selon les pays concernés les éléments traces métalliques trouvés en Europe ne se limitent pas aux 7 métaux réglementés [Cadmium, Chrome, Cuivre, Mercure, Nickel, Plomb et Zinc] (**Annexe 1**).

Les autres métaux retrouvés dans les boues destinées à l'épandage sont l'**Arsenic** (en Italie et au Royaume Uni) et le **Sélénium** (au Royaume Uni).

Aux USA, la liste des métaux contrôlés et retrouvés au cours des années 1988 et 1992 englobe également le **sélénium**, l'**arsenic** et l'**argent** (*Pollutants in urban waste water and sewage sludge – EU 2001*).

4.1.3 SYNTHÈSE ÉLÉMENTS TRACES MÉTALLIQUES

L'étude bibliographique réalisée sur la présence d'éléments traces métalliques dans les boues de STEP avant épandage montre qu'il est difficile d'obtenir des renseignements sur les éléments métalliques non réglementés. Toutefois, cette recherche a permis de mettre en évidence que des métaux autres que ceux réglementés ont pu être retrouvés en France, en Italie, au Royaume-Uni et aux USA. Il s'agit de l'**Arsenic**, du **Sélénium**, de l'**Argent**, du **Bore** et du **Molybdène**.

Une première liste de composés traces métalliques peut être constituée (Tableau 12). Elle comprend **10 éléments traces métalliques** :

- les 7 métaux réglementés,
- les autres métaux retrouvés dans les boues de stations d'épuration (non réglementés à ce jour) ayant un fort potentiel d'adsorption sur les boues, et présentant un risque pour le milieu aquatique.

Ces 10 éléments traces métalliques sont des substances toxiques ou nocives pour les écosystèmes aquatiques de par leur toxicité, leur persistance, leur bioaccumulation ou leur potentiel cancérigène.

Tableau 12 : Liste des éléments métalliques présents dans les boues, ayant un fort potentiel d'adsorption et présentant un risque pour le milieu aquatique

Eléments traces Métalliques présents dans les boues	Suivi actuellement réglementairement dans les boues	Commentaires sur la toxicité de l'élément trace métallique
Cadmium	oui	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Chrome	oui	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Cuivre	oui	Elément nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Mercuré	oui	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Nickel	oui	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Plomb	oui	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Zinc	oui	Elément nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Arsenic	non	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Sélénium	non	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques – Phrase de risque R50/53
Argent	non	Toxicité des composés d'argent aux espèces aquatiques

Les deux éléments traces métalliques [**Bore** et **Molybdène**] présents également dans les boues de stations d'épuration n'ont pas été intégrés dans cette liste en l'absence d'effet négatif sur l'environnement n'a été rapporté pour ces éléments.

4.2 PRESENCE DE COMPOSES TRACES ORGANIQUES

La même recherche est effectuée sur les substances organiques afin :

- de vérifier au niveau français et européen ou non si les boues avaient les possibilités de concentrer d'autres polluants organiques que ceux suivis réglementairement [HAP et PCB] et
- de vérifier si ces polluants rejoignent ceux mis en évidence dans le paragraphe 3.

4.2.1 MISE EN EVIDENCE EN FRANCE

En France, seuls les Composés Traces Organiques [PCB et HAP] sont contrôlés réglementairement dans les boues de STEP. L'étude réalisée par SYPREA en 2000 sur 300 stations d'épuration correspondant à 270 000 t de MS confirme la présence de HAP et PCB dans les boues d'épuration. Le **Tableau 13** fournit la concentration moyenne annuelle en HAP et PCB retrouvée dans les boues françaises mais uniquement sur les composés traces organiques réglementaires.

Tableau 13 : Teneurs moyennes annuelles retrouvées dans les boues en France (SYPREA, 2000)

CTO	Teneurs moyennes en France (g/t de MS)	En % de la valeur-limite en France (T moyenne / T limite)	Valeurs limites projet de la directive 86/278/CEE dès l'application (mg/kg de MS) ⁹
HAP	-	-	6
Fluoranthène	0,53	11%	5
Benzo[a]fluoranthène	0,39	16%	2.5
Benzo[a]pyrène	0,31	16%	2
7 PCB	0,19	25%	0,8

D'autres composés organiques peuvent être présents sans qu'ils soient mis en évidence. Les données documentaires et analytiques confirment la présence possible de nombreux CTO dans les boues d'épuration. L'étude bibliographique de l'ADEME (1995) indique que sur quelques 200 composés pour lesquels des données existent (liste non fournie), 30 % ne sont pas retrouvés dans les boues, 50 % sont retrouvés dans 10 % des cas, et 12 % dans 90 % des cas.

⁹ Le projet de directive fixe également les valeurs limites pour d'autres CTO tels que le NPE, les dioxines, les AOX, les alkylbenzènesulfonates et le DEHP.

Seuls les détergents et leurs dérivés atteignent individuellement et en moyenne des teneurs supérieures à 1 000 g/t MS. Il est à noter que les traitements aérobies en station d'épuration dégradent plus fortement les détergents que les traitements anaérobies. Pour l'essentiel des substances, les teneurs observées sont inférieures à 10 g/t MS et même à 1 g/t MS pour 35 % d'entre elles.

4.2.2 MISE EN EVIDENCE EN EUROPE / USA

Les données collectées au travers d'enquêtes ou de campagnes de mesure réalisées sur les teneurs en composés traces organiques dans différents pays européens, par la Commission Européenne (*Pollutants in urban wastewater and sewage sludge – EU 2001 and Organic Contaminants in sewage sludge for agricultural use- EU 2001*) montrent que la plupart des pays européens contrôlent également les CTO suivants [**DEHP, LAS, NPE, Dioxines & Furanes et AOX**] alors qu'en France, les CTO réglementés se limitent aux 2 composés : HAP et PCB.

Les éléments traces organiques réglementés sont régulièrement trouvés en Europe et parfois dépassent les VLC fixées. L'annexe 2 et l'annexe 3 regroupent par composé trace organique, les concentrations moyennes ainsi que les valeurs minimales et maximales retrouvées dans les différents pays européens. Les CTO les plus contrôlés sont essentiellement les HAP et PCB [**Annexe 2**] : 8 à 11 pays. Par contre pour les autres composés [DEHP, LAS, NPE, Dioxines & Furanes et AOX], les données rassemblées proviennent d'un nombre de pays plus limité [**Annexe 3**].

Des études ponctuelles menées par des institutions ou organismes européens ont permis également de mettre en évidence que les composés traces organiques contrôlés réglementairement n'étaient pas les seuls présents dans la matrice boue. Les résultats de ces études sont listés ci-dessous, afin de montrer la diversité des composés retrouvés dans une matrice boue de STEP.

- En Espagne, le **2,4-dichlorophenol** et le **2,4,6-trichlorophenol** ont été recherchés dans les sédiments et les boues des STEP. Ces 2 composés ont été retrouvés dans les boues, à des concentrations de l'ordre de 7 à 316 mg/t de MS (*Morales S et al., 2005*).

- En Suède, les **diphényléthers bromés** à une teneur moyenne de 0.47 g/t MS ; l'**EDTA** (3,8 g/t MS) ; les **EOX** (6.1 g/t MS) ; le **perfluorooctansulfonate** (0.08 g/t MS) ; le **triclosan** (1,2 g/t MS) ont été retrouvés dans les boues de station d'épuration (*Nylund et al. 2002*). Des concentrations de **mono**, **di** et de **tributylétains** ont été retrouvés dans 9 échantillons de boues de quatre installations de traitement différentes, les teneurs oscillaient entre, respectivement 0,10-0.97 ; 0.41-1.24 et 0.28-1. g/t MS (*Fent & Muller 1991 cit in FENT et al, 1995*). Ces mêmes polluants ont également été retrouvés dans les boues de station d'épuration en Suisse (*Fent et al, 1995*).

- En Allemagne, le **4-nonylphenol**, le **4-t-octylphénol**, le **bisphénol A** et le **2-hydroxybiphenyl** ont été retrouvés dans les sédiments et les boues de STEP. La concentration totale de ces xenoestrogènes phénoliques (3675 mg/t MS) dans les boues était plus forte que dans les sédiments (*Bolz U et al., 2001*).

▪ Aux USA, les données nationales obtenues sur 208 stations d'épuration ont montré que les boues d'épuration contenaient un total de 100 composés organiques, incluant les **phtalates**, le **toluène** et les **chlorobenzènes**. Les composés organiques les plus retrouvés dans les boues sont : les **dioxines** (80%), le **bis (2éthylhexyl)phtalate** (68%), le **toluène** (60%) et le **2-propanone** (60%). Le **toluène** a également été retrouvé en Suède à des teneurs supérieures à 5 g/t MS dans 20% des échantillons (1997, *Tabell 8*). 42 pesticides ont également été quantifiés. Les principaux pesticides retrouvés dans les boues aux USA sont : **2,4,5-Trichlorophenoxyacétique Acide, Acide acétique (2,4-Dichlorophenoxy), 2,4,5-Trichlorophenoxypropionique, Acide Pentachloronitrobenzene, Endosulfan, Chlorpyrifos, Endrine, 4,4'-DDT, Aldrine**, etc (*Environmental Working Group. Based on data from U.S EPA's 1988 Sewage Sludge Survey*).

▪ Au Canada, les **p-alkylphénols** ont été retrouvés dans toutes les matrices environnementales. Toutefois les quantités retrouvées sont plus élevées dans les sédiments et les boues de STEP (*Bennie DT, 1999*). L'analyse récente des boues d'épuration des municipalités canadiennes a révélé la présence de **toluène**, de **1,2-dichlorobenzène**, de **1,4-dichlorobenzène**, de **phénol**, de **nitrobenzène**, de **lindane**, d'**hexachlorobenzène**, de **méthoxychlore** et de **DDT** (*Webber et Singh*).

4.2.3 SYNTHÈSE DES COMPOSÉS TRACES ORGANIQUES

L'étude bibliographique réalisée sur la présence de CTO dans les boues de STEP montre que certaines substances organiques dangereuses pour le milieu aquatique sont retrouvées dans les boues de STEP de différents pays.

Il est intéressant de souligner que les substances identifiées comme ayant des propriétés d'adsorption sur une matrice solide (paragraphe 3) figurent parmi les substances retrouvées dans les différents pays.

Le nouveau projet de la directive 86/278/CEE (version du 24/05/2000) propose des valeurs limites d'émission pour 7 CTO mais le suivi ou le contrôle de ces substances diffèrent d'un pays à l'autre. En France, seul les PCB et les HAP sont contrôlés et suivis réglementairement dans les boues d'épandage. Toutefois, la recherche bibliographique met en évidence que des composés traces organiques autres que ceux réglementés en France ont été retrouvés dans divers pays.

La synthèse des substances retrouvées dans les boues (Tableau 14) montre que la majorité des substances sont des substances toxiques ou nocives pour les écosystèmes aquatiques de par leur toxicité, leur persistance, leur bioaccumulation ou leur potentiel cancérigène. Certaines n'ont pas fait encore l'objet d'une étude d'impact environnemental.

Tableau 14 : Liste des composés traces organiques présents dans les boues, ayant un fort potentiel d'adsorption et présentant un risque pour le milieu aquatique

CTO	Retrouvé dans les boues de station d'épuration	Suivi réglementairement dans les boues	N°UE (Directive 2000/60/CE annexe X)	N°UE (Directive 76/464/CEE)	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques	Potentiel d'adsorption
HAP	<ul style="list-style-type: none"> ▪ 11 pays européens ▪ 2 autres (USA et Canada) 	Oui dans certains pays dont la France	28 15	99	oui	Fort
PCB	<ul style="list-style-type: none"> ▪ 8 pays européens ▪ 2 autres (USA et Canada) 	Oui dans certains pays dont la France		101	non	Fort
DEHP di (2-éthylhexyl)phtalate	<ul style="list-style-type: none"> ▪ 5 pays européens ▪ 2 autres (USA et Canada) 	Oui dans certains pays sauf la France	12		(oui)	Fort
Alkylphénols (incluant les nonylphénoléthoxylés) 4 nonylphénol, 4 t octylphénol	<ul style="list-style-type: none"> ▪ 6 pays européens ▪ Canada 	Oui dans certains pays sauf la France	24 25		oui	Fort
LAS	<ul style="list-style-type: none"> ▪ 9 pays européens ▪ USA 	Oui dans certains pays sauf la France			/	/
Dioxines et Furannes	<ul style="list-style-type: none"> ▪ 5 pays européens ▪ 2 autres (USA et Canada) 	Oui dans certains pays sauf la France			oui	oui
Chlorophénols : 2,4 dichlorophénol 2,4,6 trichlorophénol phénol para crésol	Espagne Espagne USA, Canada USA	Non		64 122	Oui Oui Non Non	Fort
Toluène	USA Suède	Non		112	oui	Moyen
Chlorobenzènes 1,2 dichlorobenzène 1,4 dichlorobenzène Chlorobenzène Hexachlorobenzène	Canada Canada USA Canada	Non	16	53 55 20 83	Oui Oui Oui Oui	Moyen
Diphényléthers bromés	Suède	Non	5		Oui	Fort

CTO	Retrouvé dans les boues de station de	Suivi réglementairement dans les boues	N°UE (Directive 2000/60/CE annexe X)	N°UE (Directive 76/464/CEE)	Elément toxique et nocif présentant un risque pour les écosystèmes aquatiques	Potentiel d'adsorption
Organoétains	Suède, Suisse	Non				Fort
Monobutylétain	Suède, Suisse				/	
Dibutylétain	Suède, Suisse			49,50,51	/	
Tributylétain			30	115	oui	
Nitrobenzènes		Non				Faible
Pentachloronitrobenzene	USA				/	
Nitrobenzène	Canada				oui	
Pesticides		Non				
Glyphosate	France				/	/
AMPA	France				/	/
Aminotriazole	France				/	/
Bisphénol A	Allemagne				/	/
DDT	Canada, USA			46	/	/
Lindane	Canada		12	85	Fort	Fort
Méthoxychlore	Canada				/	/
Endrine	USA			77	/	/
Chlorpyrifos	USA		9		Fort	Fort
Endosulfan	USA		14	76	Fort	Fort
Aldrine	USA			1	/	/
Autres		Non				/
Acide 2,4,5-Trichlorophenoxyacétique	USA				oui	
Acide acétique (2,4-Dichlorophenoxy)	USA			16	/	
Acide 2,4,5-Trichlorophenoxypropionique	USA				/	
2 propanone (acétone)	USA				non	

/ : information non disponible

Devant le peu d'information venant de la France sur les substances organiques et la présence de substances non négligeables dans les autres pays, il serait peut-être intéressant de mener une campagne d'échantillonnage auprès des stations d'épuration urbaines ou mixtes françaises et de vérifier la présence ou non des substances mises en évidence dans les autres pays [à minima pour les substances figurant dans le nouveau projet de directive].

4.3 METHODES ANALYTIQUES DE CARACTERISATION DES SUBSTANCES INORGANIQUES OU ORGANIQUES DES BOUES DE STATIONS D'EPURATION

Peu de méthodes officielles d'analyses des micropolluants organiques et des métaux existent dans le domaine des boues. Les méthodes utilisées en France pour l'analyse des composés réglementés [métaux, HAP et PCB] s'appuient sur des méthodes normalisées portant sur une matrice voisine (essentiellement les sols ou les sédiments). Toutefois, depuis décembre 2000, il existe une méthode normalisée d'extraction à l'eau régale pour la caractérisation des éléments traces métalliques dans les boues¹⁰.

Depuis 1993, des travaux de normalisation européenne sont en cours sur les « méthodes de caractérisation des boues et produits ». L'organisation de la normalisation relative à la caractérisation des boues est présentée en annexe 4.

La prise en compte dans la caractérisation des boues de paramètres tels que les micro-polluants, les pathogènes et métaux lourds, ainsi que la définition de valeurs associées à ces paramètres¹¹ s'est traduit par la nécessité :

- pour les instances réglementaires d'identifier un seuil de risque,
- en normalisation, de produire des méthodes d'analyses fiables et reproductibles relatives à ces éléments, afin d'assurer la qualité et la comparabilité des données, mais aussi de produire des méthodes d'analyses aussi harmonisées que possible pour chacune des matrices concernées par la filière boue (sols, déchets, boues, eau via les sédiments et les MES), afin de limiter l'impact économique de leur mise en œuvre. Cet objectif a été traduit au travers du programme européen de pré-normalisation « HORIZONTAL ».

A ce jour, les projets de normalisation ont atteint pour la plupart l'étape de validation. Le processus de consultation des experts désignés par les organismes de normalisation nationaux au sujet des travaux réalisés sur les paramètres ci-dessous a été soutenu depuis le début de l'année 2005.

Depuis le mois de juin 2006, le programme HORIZONTAL a commencé le transfert de ses produits de sortie vers le CEN, où une commission a été créée pour les accueillir et assurer leur publication en tant que méthodes européennes normalisées.

L'état d'avancement des projets est présenté dans le Tableau 16. Celui-ci fait appel à la terminologie suivante (Tableau 15).

¹⁰ NF EN 13346 – Caractérisation des boues – Détermination des éléments traces et du phosphore – Méthodes d'extraction à l'eau régale

¹¹ Projet de révision de la directive 86/278/CEE

Tableau 15 : Articulation des travaux de mise au point des méthodes d'analyse transversales applicables aux boues

Etape du projet (acteur)	Teneur du travail	Produit de sortie
Phase I (Consortium HORIZONTAL)	Etude de faisabilité d'une méthode harmonisée, et du degré d'harmonisation possible	<ul style="list-style-type: none"> • « desk study » : rapport bibliographique • avant projet de norme
Phase II (Consortium HORIZONTAL)	Evaluation de la robustesse de la méthode issue de la phase I pour les différentes matrices concernées.	<ul style="list-style-type: none"> • Rapport d'évaluation • Projet de norme
Organismes de normalisation (CEN TF 151 avec l'assistance des organismes nationaux)	Consultation externe	Projet final accepté pour EIL de validation
Phase III (Consortium HORIZONTAL)	Essai interlaboratoires de performances pour validation du projet de norme	Norme européenne transversale publiée

Tableau 16 : Méthodes de caractérisation des substances dans la matrice boue

Paramètres	Etat d'avancement	Date prévue EIL
Echantillonnage	Les travaux sur l'échantillonnage sont riches, mais ne peuvent prétendre à une validation par essai interlaboratoires, car ils ne constituent pas un essai en eux-même.	Pas d'EIL – publication sous forme de rapport technique « TR »
AOX	Projet de norme en cours de finalisation, dont l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse.	4° trimestre 2006
HAP	Projet de norme en cours de finalisation, méthode empruntée aux sols, dont l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse.	4° trimestre 2006
PCB	Projet de norme disponible pour consultation finale, méthode empruntée aux sols, dont l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse.	4° trimestre 2006
PCDD/PCDF	Projet de norme en cours de finalisation, méthode empruntée aux sols, dont l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse.	4° trimestre 2006
Nonylphénols	Projet de norme en cours de finalisation l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse – Essais interlaboratoires de validation prévus.	4° trimestre 2006
Phtalates	Projet de norme en cours de finalisation, méthode empruntée aux eaux, dont l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse – Essais interlaboratoires de validation prévus.	4° trimestre 2006
LAS	Projet de norme en cours de finalisation, dont l'applicabilité a fait l'objet d'essais de robustesse – Essais interlaboratoires de validation prévus.	4° trimestre 2006
Retardateurs de flamme (PBDE)	Maintien en phase d'élaboration depuis 2005. Etude de robustesse trop restreinte en terme de matrices et conditions opératoires. Des engagements ont été pris en juin par un représentant du chef de projet, mais aucune activité notable n'est à signaler depuis.	4° trimestre 2006 si protocole satisfaisant est disponible à la date de distribution des matériaux d'essai
Produits pharmaceutiques	Projet en phase d'élaboration – sujet sans obligation normative, qui aura comme produit de sortie un rapport de faisabilité.	Pas d'EIL – publication sous forme de rapport technique « TR »

Paramètres	Etat d'avancement	Date prévue EIL
Métaux	<p>1 méthode de préparation (minéralisation à l'eau régale) et 3 méthodes d'analyse en cours de finalisation : métaux par AAS, GFAAS, Hg par AAS vapeurs froides ou fluorescence atomique – Passage en phase finale.</p> <p>Les méthodes d'analyse des métaux par ICP/OES & ICP/MS sont encore en cours d'évaluation.</p>	<p>4° trimestre 2006</p> <p>?</p>
Nutriments	<p>4 méthodes, 3 dédiées au cycle de l'azote (azote total, azote Kjeldahl, azote ammoniacal & nitrates) et une au phosphore total, sont en fin de phase d'élaboration. Leur finalisation est probable pour la fin de l'année 2006.</p>	<p>Probablement</p> <p>4° trimestre 2006</p>
Paramètres descriptifs	<p>Les méthodes concernant 5 paramètres descriptifs sont en cours de finalisation avant passage en consultation finale :</p> <ul style="list-style-type: none"> • pH • conductivité • teneur en matière sèche et en eau • perte au feu • COT par combustion sèche <p>La méthode de détermination de la densité apparente est encore en évaluation. On peut cependant supposer que la complexité de l'organisation d'essais interlaboratoires poussera les intervenants du programme HORIZONTAL à mettre cette méthode rapidement à niveau pour profiter d'une synergie.</p>	<p>4° trimestre 2006</p>
Paramètres biologiques	<p>Deux méthodes, plutôt destinées aux composts sont disponibles pour consultation finale. Il s'agit de :</p> <ul style="list-style-type: none"> • « impuretés » (on entend par là constituants stériles non désirables, gravats, verre, copeaux métalliques ou plastiques), • graines susceptibles de germination 	<p>4° trimestre 2006</p>

Les travaux de normalisation sur les méthodes analytiques de caractérisation des substances dans les boues avancent à grand pas.

D'ici 2007, des méthodes d'analyses fiables et reproductibles pourront être publiées en tant que méthodes européennes et utilisées par les laboratoires.

5. POSSIBILITES DE TRANSFERT DES ELEMENTS TRACES VERS LE MILIEU AQUATIQUE

Nous venons de montrer qu'une multitude de composés s'adsorbent préférentiellement ou partiellement sur la matrice boue. Toutefois, lors de la valorisation des boues d'épuration en agriculture les polluants adsorbés sur la boue, ont la possibilité de migrer via le sol vers les plantes ou le milieu aquatique.

L'objectif de cette partie est de vérifier si un éventuel transfert des substances adsorbées sur la boue vers le milieu aquatique est possible sur la valorisation des boues d'épuration en tant que source potentielle de pollution pour le milieu aquatique.

5.1 DEVENIR DES SUBSTANCES INORGANIQUES DANS LES BOUES ET APRES EPANDAGE

Les métaux issus des apports anthropiques ont un comportement différent des métaux présents naturellement, car ils sont apportés sous des formes chimiques réactives (*Baize, 1997*). Dès leur introduction dans le sol, les métaux vont s'associer avec différents constituants du sol sous des formes chimiques variées. Cette répartition dépend des caractéristiques intrinsèques de l'élément (forme chimique initiale, valence, réactivité) et des caractéristiques du milieu (pH, potentiel d'oxydoréduction, CEC, température, travail du sol...).

La nature des matériaux auxquels sont associés les ETM dans les boues résiduaires joue un rôle considérable sur leur devenir dans le sol. En effet, les métaux peuvent demeurer inclus dans les matériaux constitutifs de la boue et donc rester fortement liés à cette dernière longtemps après son épandage sur les sols agricoles, réduisant ainsi les possibilités de transfert entre les compartiments du sol, entre le sol et les organismes vivants, et entre le sol et la nappe phréatique. La Figure 2 ci-après résume l'ensemble des localisations envisageables et la mobilité qui en résulte.

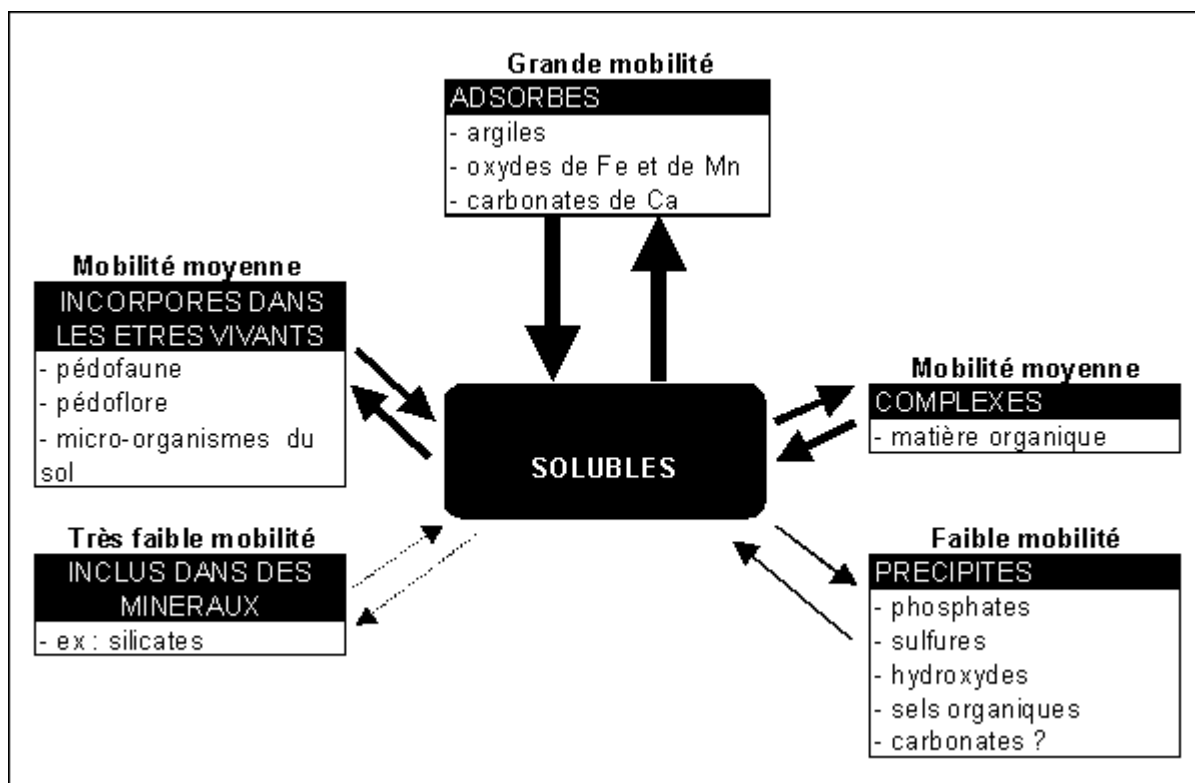


Figure 2 : Localisation des ETM dans les sols (Juste, 1995, modifié)

Dans la majorité des cas, les ETM s'associent à la matrice solide, ils s'accumulent dans le sol, tant que les conditions du milieu restent inchangées (Bourrelier & Berthelin, 1998). De la forme chimique de l'élément, du constituant auquel il est associé va dépendre le mode de fixation par le sol et donc la mobilité et la biodisponibilité de l'élément.

Dans le sol, la concentration en ETM varie avec la profondeur. En raison de leur très forte liaison avec les différentes phases solides énumérées auparavant, les micro-éléments issus d'apports extérieurs vont s'accumuler en surface, leur concentration va donc décroître avec la profondeur et marquer, dans le cas des sols cultivés, une nette discontinuité au-dessous de la couche labourée (Juste et al, 1995).

5.1.1 DIVERS TRANSFERTS POSSIBLES : LE CONCEPT DE LA MOBILITE

Les variations des conditions du milieu modifient la distribution des ETM entre les phases constitutives du sol. La mobilité des micro-éléments est définie comme leur aptitude à être transférée vers des compartiments où ils sont de moins en moins énergiquement retenus, le compartiment ultime étant représenté par la solution du sol (Juste et al, 1995). Cette mobilité est dirigée par un certain nombre de facteurs et de conditions du milieu [le pH du sol, le potentiel d'oxydo-réduction, la température et l'humidité du sol, l'apport de matière organique].

1. Risques de transfert vers les horizons profonds

Selon Juste et al (1995), les expériences de longue durée montrent que l'horizon de surface (0-15 cm) s'enrichit essentiellement en ETM en raison du fort pouvoir immobilisateur du sol vis-à-vis de ces éléments. L'horizon 15-40 cm situé immédiatement au-dessous de l'horizon de surface présente aussi un enrichissement lié au travail agricole du sol.

Dans le cas des sols sableux, on observe un enrichissement significatif des couches plus profondes (jusqu'à l'horizon 60-80 cm) quand on applique des doses très importantes de boues à forte charge métallique. Ces mouvements, qui résultent du faible pouvoir de fixation de ce type de sol pour les métaux, affectent plus spécialement le zinc, le cadmium, le nickel, le manganèse et le cuivre. Ils ne représentent qu'un faible pourcentage, inférieur à 10 % la plupart du temps, de la quantité totale d'éléments présents dans l'ensemble du profil (*Juste et al, 1995*).

Des expériences de longue durée ont montré qu'après un apport massif de boues en ETM, la mobilité des métaux augmente l'année suivante, puis a tendance à diminuer avec les variations saisonnières (mobilité maximum à la fin de l'été) (*Juste et al., 1995*). Cependant, dans le cas d'apport de boues très chargées en ETM, certains d'entre eux comme Cd et Zn peuvent migrer dans les couches sous jacentes.

En résumé, les risques de transfert des ETM vers les horizons profonds du profil pédologique sont probables, mais ne concernent qu'un faible pourcentage des ETM du sol.

2. Risques de transfert par ruissellement

Selon Juste et al (1995), les défauts de bilan en ETM observés après plusieurs années d'apports de boues résiduaires ne peuvent s'expliquer seulement si l'on fait intervenir une exportation des métaux hors de la parcelle par érosion hydraulique ou entraînement du sol lors des pratiques culturales. L'accumulation de la boue dans la couche superficielle favorise ces transferts de particules solides (fragments de matières organiques, argiles et limons fins,...) sur lesquelles sont concentrés les métaux. Cette exportation pourrait avoir, selon les caractéristiques du milieu (notamment la pente de la parcelle, la sensibilité), les cultures pratiquées et les techniques culturales, des conséquences non négligeables sur la contamination des eaux de surface situées à proximité des zones d'épandage de boues.

On notera qu'il existe également une possibilité de déplacement latéral de métaux en solution par l'intermédiaire d'une nappe très superficielle (circulation "hypodermique") [cas des sols sableux à faible teneur en matière organique] (*Feix et Wiert, 1998*).

Le transfert vertical en terme de concentrations dans les eaux est surtout notable dans le cas du zinc et du cuivre, tandis que les teneurs en cadmium et en plomb sont plus faibles mais restent mesurables.

L'érosion hydraulique, le ruissellement sur des sols imperméables, le déplacement latéral de métaux en solution par l'intermédiaire d'une nappe très superficielle ou le transfert vertical de métaux dans les eaux sont **une source potentielle de pollution diffuse** pour le milieu aquatique.

5.1.2 SPECIATION, LOCALISATION ET MOBILITE DANS LES SOLS DES PRINCIPAUX MICROPOLLUANTS METALLIQUES

A partir de la liste des métaux établie au paragraphe 4.1.3, c'est à dire des métaux retrouvés en concentration non négligeable dans les boues d'épandage et présentant une toxicité vis-à-vis des milieux aquatiques, nous allons étudier leur comportement spécifique et leur devenir après épandage.

Le Tableau 17 présente le comportement des métaux lors de l'épandage sur les sols et les risques possibles de transfert vers le milieu aquatique.

Tableau 17 : Comportement des métaux lors de l'épandage sur les sols et possibilités de transfert vers le milieu aquatique

Paramètre	Comportement dans les sols	Risque transfert milieu aquatique
Cadmium	<ul style="list-style-type: none"> • Assez mobile dans les sols, tendance à s'accumuler dans les horizons supérieurs du sol, riches en matière organique. • La mobilité du cadmium est fonction du pH du sol. Dans le sol, il existe sous forme soluble dans l'eau du sol : CdCl₂, CdSO₄ ou sous forme de complexes insolubles inorganiques ou organiques avec les constituants du sol. • En conditions réductrices, la mobilité du cadmium est fortement abaissée par la formation de sulfures peu solubles mais cette immobilisation peut-être suivie d'une solubilisation massive lors du rétablissement de conditions oxydantes (par drainage par exemple). 	Oui
Chrome	<ul style="list-style-type: none"> • Existe sous plusieurs degrés d'oxydation. Le chrome VI est une forme beaucoup plus hydrosoluble que le chrome III et, de ce fait plus biodisponible. 	Oui pour le chrome VI
Cuivre	<ul style="list-style-type: none"> • Forme des liaisons avec les composants du sol plus fortes que les autres cations divalents et la distribution du cuivre dans la solution du sol, est moins affectée par le pH que celle des autres métaux. • Plus soluble et plus mobile à des pH inférieurs à 5. Au-delà de pH= 7, le cuivre n'est pratiquement plus mobile. De fait, la plus grande partie du cuivre reste fortement adsorbée dans les quelques centimètres supérieurs du sol, spécialement sur les matières organiques présentes. • Migre en profondeur dans des conditions particulières de drainage ou en milieu très acide (Juste, 1995). 	Oui (milieu acide, drainage)
Mercure	<ul style="list-style-type: none"> • Faiblement mobile dans le sol. Lorsqu'il est mis en contact avec le sol, il est rapidement immobilisé (par les oxydes de fer, d'aluminium et le manganèse et surtout par la matière organique). • Il a tendance à rester dans les horizons de surface. • Dans la plupart des sols, le mercure présente une aptitude à la méthylation par des bactéries ou par réaction avec les acides fulviques issus de la matière organique du sol. Cette réaction conduit à la formation de mono et de diéthylmercure très volatils. 	Non
Nickel	<ul style="list-style-type: none"> • Sa mobilité augmente aux pHs faibles. • La concentration en sulfates dans le sol est aussi importante car elle réduit l'adsorption du nickel par complexation. • Du fait de la facile extraction du nickel des boues par des réactifs doux, il est à priori susceptible de migration dans le profil pédologique. 	Oui

Paramètre	Comportement dans les sols	<i>Risque transfert milieu aquatique</i>
Plomb	<ul style="list-style-type: none"> Sa mobilité dans le sol est très faible, tendance à s'accumuler dans les horizons de surface (horizons riches en matière organique). Cela s'explique par la grande affinité de la matière organique vis-à-vis du plomb. Les facteurs affectant la mobilité et la biodisponibilité du plomb dans les sols sont le pH, la texture du sol et la teneur en matière organique. Ainsi, entre pH 5 et 9, et à concentration molaire identique, le plomb est 100 fois moins mobile que le cadmium. 	Non
Zinc	<ul style="list-style-type: none"> S'accumule à la surface des sols. La forme la plus courante et la plus mobile du zinc dans les sols est Zn^{2+} qui est facilement adsorbé sur les composants minéraux (argiles, hydroxydes de fer et d'aluminium) et organiques, ce qui conduit à une accumulation dans les horizons superficiels. Considéré comme facilement soluble par rapport aux autres ETM dans les sols, il est très mobile et disponible dans les sols légers et acides. 	Oui
Arsenic	<ul style="list-style-type: none"> Existe principalement dans les sols sous des formes oxydées : l'arséniate et l'arsénite. Dans des conditions normales d'aération des sols, l'arséniate prédomine et présente un comportement voisin de l'anion phosphate (PO_4^-). Il se lie notamment très fortement aux composés du fer, de l'aluminium et du calcium, et demeure relativement plus mobile dans les sols sableux pauvres en matière organique. Les formes réduites sont beaucoup moins fixées par le sol et leur mobilité, 4 à 10 fois supérieure à celle de l'arséniate, leur permet de migrer facilement vers les horizons profonds. 	Oui
Sélénium	<ul style="list-style-type: none"> Présent dans les sols, il est essentiellement adsorbé ou complexé à la matière organique. La solubilité et la biodisponibilité dépendent de la forme chimique, des conditions redox et du pH du sol. A pH acide, le sélénium se trouve principalement sous forme de sélénite ferrique quasiment insoluble. A pH alcalin et en milieu oxydant, le sélénium est facilement entraîné vers les horizons profonds du profil. 	Oui
Argent	<ul style="list-style-type: none"> Très toxique pour les microorganismes. Cependant, pas d'inhibition importante de l'activité microbienne dans les stations d'épuration car la complexation et l'adsorption rapides des ions argent réduit leur biodisponibilité. Métal biodisponible, accumulation faible dans les végétaux terrestres (racines), et les organismes aquatiques. 	Oui ?
Bore	<ul style="list-style-type: none"> Est considéré comme l'ETM le plus mobile dans le sol, bien que sa fraction soluble soit faible (3 à 5 % du total). Les mouvements du bore dans les sols suivent les flux d'eau, c'est pourquoi il est facilement lessivé vers les horizons profonds, notamment en zones humides et froides, et en sol sableux. 	Oui

Le devenir des substances inorganiques dans les boues d'épandage :

En général, les ETM migrent peu et restent accumulés dans la couche 0-30 cm correspondant le plus souvent à la couche labourée, tant que le pH du sol ne change pas. Les risques de transfert des ETM vers les horizons profonds du profil pédologique sont peu probables, et ne concernent qu'un faible pourcentage des ETM du sol [Cd, Zn].

Dans les sols acides et pauvres en humus, les métaux lourds ne s'accumulent pas. Ils sont transférés vers les nappes phréatiques, vers les horizons profonds du profil pédologique ou sont absorbés par les plantes. Ils présentent alors un risque potentiel pour le **milieu aquatique** et la santé.

Dans les sols basiques riches en humus, les métaux lourds sont piégés. Il n'y a donc pas de risque immédiat pour le milieu aquatique ou la santé. Mais le sol est contaminé durablement et la concentration en métaux lourds augmente avec les années. Ces derniers sont susceptibles d'être libérés quand l'environnement est modifié (acidification du sol sous l'effet des changements de température, d'humidité, etc).

Les métaux (principalement les plus mobiles) : Cd, Cr VI, Cu, Ni, Zn, As, Se et Bore peuvent être **une source potentielle de pollution diffuse pour le milieu aquatique.**

5.2 DEVENIR DES SUBSTANCES ORGANIQUES DANS LES BOUES ET APRES EPANDAGE

L'étude du devenir des CTO des boues dans le sol, l'eau et la plante n'a pas fait l'objet d'études aussi nombreuses que celles des ETM. Mais, contrairement aux ETM, les CTO se dégradent dans les sols à des vitesses variables et n'ont donc pas un flux cumulatif.

Dès leur introduction dans le sol, les CTO sont sujets aux processus : adsorption / désorption, dégradation (biotique et abiotique), volatilisation, érosion / lixiviation qui conduisent à réduire la concentration des CTO dans les sols (*O'Connor, 1996*). L'adsorption dans le sol (humus, argiles) ainsi que la dégradation biologique (anaérobie ou aérobie) sont des facteurs décisifs pour la persistance des contaminants organiques dans les sols.

LAS, DEHP et NP s'adsorbent moins bien dans les sols mais sont plus facilement dégradés que les PAH, les PCB ou les PCDD/F.

5.2.1 RISQUES DE TRANSFERT VERS LE MILIEU AQUATIQUE

Le transfert sol-eau des contaminants organiques a seulement été étudié intensivement depuis quelques années. C'est essentiellement dû au coût élevé des études mais également à l'incertitude des méthodes. La construction de lysimètres est très chère et méthodiquement incertaine. Le transfert des substances organiques via le milieu aquatique dépend des facteurs suivants :

- de l'érosion du sol (lessivage des particules de sol avec précipitation) ;

- de la quantité de matière organique (la proportion de la substance organique soluble est le paramètre le plus important pour le transfert des contaminants hydrophobes) ;
- de la solubilité des contaminants dans l'eau.

Les mesures à mettre en place pour éviter le transfert des substances quand les boues sont épandues sont :

- éviter d'épandre la boue au voisinage d'eau de surface
- éviter d'épandre la boue d'épuration dans les secteurs où des nappes superficielles ou souterraines sont présentes
- éviter d'épandre la boue d'épuration quand le sol est saturé en eau. (inondation par exemple)

Madsen et al (1997) indique un **risque de contamination d'eaux souterraines** lorsque la concentration en LAS est importante. En effet, les agents tensioactifs peuvent affecter le comportement des composés organiques hydrophobes dans le sol, et conduire à une mobilisation des substances organiques dans le sol (création de micelles dans les eaux interstitielles). Toutefois si les concentrations présentes de LAS [agent tensioactif le plus fortement utilisé dans les détergents domestiques] dans le sol sont supérieures à la concentration nécessaire à former des micelles (CMC, concentration micellaire critique) en eau interstitielle, alors, il est probable que les détergents domestiques contribueront de manière significative à la mobilisation des composés organiques hydrophobes dans le sol traité par des boues (*Haigh 1996*).

La forte teneur en agents tensioactifs d'une boue pourra conduire à mobiliser les autres substances organiques hydrophobes et de ce fait les boues peuvent devenir **un risque potentiel de pollution diffuse vers le milieu aquatique.**

5.2.2 LOCALISATION ET MOBILITE DANS LES SOLS DES PRINCIPAUX MICROPOLLUANTS ORGANIQUES

A partir de la liste des composés traces organiques établie au paragraphe 4.2.3, c'est à dire des micropolluants organiques retrouvés en concentration non négligeable dans les boues d'épandage et présentant une toxicité vis-à-vis des milieux aquatiques, nous allons étudier, pour la majorité d'entre eux, le comportement spécifique et le devenir après épandage. Le **Tableau 18** présente le comportement des micropolluants organiques lors de l'épandage sur les sols agricoles et les risques possibles de transfert vers le milieu aquatique.

Tableau 18 : Comportement des micropolluants lors de l'épandage sur les sols et possibilités de transfert vers le milieu aquatique

Paramètre	Comportement dans les sols	Risque transfert milieu aquatique
Nonyl-Phenols Et leurs éthoxylats	<ul style="list-style-type: none"> • Conditions aérobies et anaérobies : les polyéthoxylates de nonylphenol seront décomposés en polyéthoxylates de nonylphenol et nonylphenol à chaînes courtes, qui ont une tendance à s'absorber sur la boue. • Conditions anaérobies : le nonylphenol se dégradera très lentement, et par conséquent la concentration de cette substance sera augmentée pendant la digestion anaérobie de la boue (GRÜTTNER et autres 1997). • persistants, solubles et présents en forte quantité dans les boues et leurs présences dans l'eau a été liée aux effets nuisibles tels que des changements de sexe des poissons et de baisse du taux sperme chez l'homme. Sont une cible évidente pour la mobilité potentielle. • Pas de transfert significatif vers des eaux souterraines, en tant que mineurs dans un sol arénacé de terre grasse (MCGRATH 2000). • 4-nonylphenol plus persistant, mais aucune évidence d'accumulation après applications répétées de boue d'épuration au même emplacement (GÜNTHER et PESTEMER 1994). 	Oui, dépend de la texture du sol
LAS	<ul style="list-style-type: none"> • Dégradation rapide dans les sols (condition aérobique) (demi vie <10 jours). Juste après l'application de la boue au sol, LAS disparaissent rapidement (période initiale) parce qu'ils sont facilement biodégradables par les micro-organismes de sol. • Après épandage, les LAS réagissent plus fortement à la fraction organique de sol ce qui les rend moins disponibles (période de transition) ou indisponibles (période finale) à la biodégradation. Les cinétiques de transformation sont très communes aux pesticides dans le sol. Selon LITZ (2000) la dégradation de 90 % de LAS a lieu dans les 22 à 122 jours selon le type de sol. • Madsen et al (1997) indique un risque de contamination d'eaux souterraines lorsque la concentration en LAS est importante 	Oui, de plus peut entraîner la mobilité des autres polluants
DEHP	<ul style="list-style-type: none"> • Semble s'accumuler dans le sol après application des boues, mais seulement si des grandes quantités de boues sont épandues. • Si faibles concentrations en DEHP épandues, il est rapidement éliminé sous conditions aérobies en raison de sa demi-vie très courte (Jauzein et al, 1995). Selon RIPPEN (2001) 50% du DEHP est dégradé dans une période d'une semaine à trois mois après l'application des boues d'épandage sur les sols agricoles. Fréquemment 90% de DEHP aura disparu en 6 mois, mais absence de données sur la durée nécessaire à une dégradation complète. 	Faible ; limité aux phénomènes d'érosion et de lessivage des sols
HAP	<ul style="list-style-type: none"> • Propriétés physico-chimiques des HAP déterminent leur comportement dans les sols après épandage des boues. • Le transfert et la dégradation des HAP de bas poids moléculaire semblent plus rapide que ceux de haut poids moléculaire (<i>Wild et Jones, 1995</i>). Plus le nombre de noyaux benzéniques est élevé plus le composé est résistant à la dégradation (<i>Bossert et Bartha, 1986</i>). • La volatilisation est seulement significative pour le naphthalène. • 2 à 3% de la quantité de phénanthrène apportée avec une boue peut être lessivée (INRA, études AGREDE). 	Faible ; limité aux phénomènes d'érosion et de lessivage des sols

Paramètre	Comportement dans les sols	Risque transfert milieu aquatique
PCB	<ul style="list-style-type: none"> • Composés très stables biologiquement, chimiquement et physiquement. • Lipophiles et ont tendance à se concentrer dans les boues et dans le matériel organique des sols. Potentiellement dangereux pour les organismes vivants en raison de la grande toxicité de certains congénères et de la possibilité d'accumulation dans les tissus adipeux (Sulkowski & Rosinka, 1999). • Biodégradation : mécanisme prédominant pour les PCB. Ils peuvent être dégradés sous des conditions aérobies et anaérobies (formes les plus chlorées) (Rhee et al, 1989, Gan et Berthouex, 1994). Le taux de dégradation diminue généralement quand le nombre de chlore substitué augmente (Rhee et al, 1989, Gan et Berthouex, 1994). • Stabilité des PCB dans les sols est importante. AMUNDTSEN et al (1997) indique une stabilité élevée de PCB dans les boues, qui suggère une utilisation avec précaution des boues d'épandage (après 15 ans d'épandage, 20% des PCB ajoutés sont encore présents dans les sols). 	Faible ; limité aux phénomènes d'érosion et de lessivage des sols
Dioxines et Furannes PCDD/F	<ul style="list-style-type: none"> • Sont biologiquement, chimiquement, physiquement stables, et sont lipophiles. • Ils ont tendance à se concentrer dans les boues et donc dans le matériel organique du sol. • Les dioxines et les furannes, même en faibles concentrations, représentent des risques significatifs (Webber et al, 1996). Les données littéraires montrent que les PCDD/Fs sont omniprésents en boue d'épuration municipale et qu'ils sont persistants dans le sol après épandage (HEMBROCK-HEGER 1992). • La pratique de l'épandage continuera donc à contribuer à la contamination des sols (MCLACHLAN et autres 1996). 	Faible ; limité aux phénomènes d'érosion et de lessivage des sols
Chlorobenzènes	<ul style="list-style-type: none"> • Peu d'informations sur leur biodégradation dans les sols. • Transferts possibles incluent la volatilisation, la dégradation abiotique et biologique, l'érosion, lixiviation et le transfert plante. La volatilisation a été accentuée comme destin principal des Chlorobenzènes dans les sols (Wang et Jones, 1994). La plupart des chlorobenzènes présents dans les boues d'épandage sont susceptibles de s'évaporer sur des périodes relativement courtes, mais une certaine proportion resterait dans le sol pendant des périodes beaucoup plus longues, particulièrement HCB et PCB. • Environ 10% des chlorobenzènes présents dans le sol suite à épandage intensif est devenu récalcitrant et resté dans le sol pendant plus de trente années (WANGS et al 1997). 	Faible ; limité aux phénomènes d'érosion et de lessivage des sols
Chlorophénols	<ul style="list-style-type: none"> • Sont très solubles. Ils sont peu polaires ($2 < \log Kow < 5$) d'où leur faible fixation aux sols. Ils ne se fixent presque pas sur la matière organique. Ils sont volatils. • Le pentachlorophénol est quant à lui peu soluble. 	Oui
Pesticides dont diuron	<ul style="list-style-type: none"> • La boue séchée et chaulée augmente la persistance de ces composés dans le sol. La boue compostée favorise leur dégradation. • Ils sont mobiles quelque soit leur voie d'apport au sol, directe ou via les boues : ils sont transférés dans les plantes et les eaux de lixiviation. Les risques de contamination des chaînes trophiques sont donc réels (GHANEM.A) 	Oui

Le devenir des substances organiques dans les boues d'épandage :

A ce jour, peu d'études ont été réalisées sur le devenir des CTO lors de la valorisation des boues par épandage. Et lorsqu'elles existent, elles ne concernent que les substances réglementaires [HAP, PCB, Nonylphénols et éthoxylats ...].

En général, les CTO persistants s'accumulent dans les sols. Ils n'ont aucun effet discernable sur la population microbienne du sol. Les polluants organiques autres que tensio-actifs ne montrent pas de mouvement significatif vers les eaux souterraines (cas de sol arénacé de terre grasse). Par contre une forte teneur en agents tensio-actifs d'une boue pourra conduire à mobiliser les autres substances organiques hydrophobes et de ce fait les boues peuvent devenir **un risque potentiel de pollution diffuse vers le milieu aquatique.**

La majorité des recherches réalisées sur les CTO montrent que ceux-ci ne présentent qu'un **faible risque de transfert de pollution vers le milieu aquatique** lorsque les conditions d'épandage sont respectées (zones de protection, épandage non réalisé dans les secteurs où les nappes superficielles et souterraines sont présentes, interdiction d'épandre sur sol saturé en eau) : DEHP, HAP, PCB, PCDD/F, Chlorobenzènes.

Les nonylphénols, LAS, chlorophénols, pour lesquels des études ont pu être réalisées, présentent un **risque de transfert de pollution vers le milieu aquatique plus important** (les plus solubles).

6. PERSPECTIVES - CONCLUSIONS SUR LES SUBSTANCES A SURVEILLER DANS LES BOUES

6.1 DONNEES

L'épandage agricole des boues d'épuration s'inscrit dans une logique du recyclage dans le milieu naturel et d'économie des ressources non renouvelables [réutilisation des boues du fait de leur intérêt agronomique (riche en matières organiques, en chaux...)]. Toutefois, l'application de boue d'épuration en agriculture ne doit pas apporter d'effets nuisibles sur les terrains amendés, ni sur l'environnement. Par conséquent, la contamination en élément trace des boues d'épuration doit être limitée voire inexistante¹².

Pour cela, la directive 86/278/CEE fixe le cadre légal en matière d'épandage de boues. Elle réglemente l'utilisation des boues d'épuration en agriculture, de manière à éviter des effets nocifs sur les sols, la végétation, les animaux et l'homme, tout en encourageant leur utilisation correcte en imposant des restrictions diverses. Elle définit pour 7 métaux lourds des valeurs limites de concentration pouvant être contenues dans les boues. Le nouveau projet de cette directive (version du 24/05/2000) est plus contraignant et prévoit des mesures réglementaires plus draconiennes pour les métaux [Cd, Cu, Ni, Pb, Zn, Hg, Cr] et fixe, pour la première fois, des VLC pour certains composés organiques [AOX, LAS, DEHP, NPE, HAP, PCB, PCDD/F].

La recherche bibliographique réalisée, auprès de divers pays, a mis en évidence que les composés réglementés sont présents en quantité non négligeable dans les boues. D'autres composés non réglementés également sont retrouvés. Les substances couramment retrouvées sont :

- 7 métaux réglementés [Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn] ;
- 3 métaux non réglementés à cette date, ayant un fort potentiel d'adsorption sur les boues et présentant un risque de transfert pour le milieu aquatique d'où risque d'impact [As, Se, Ag] ;
- 6 familles de substances réglementées (nouveau projet de la directive 86/278/CEE version du 24/05/2000) [AOX, HAP, PCB, DEHP, LAS, PCDD/F, Alkylphénols] ;
- 8 familles de substances non réglementées et retrouvées dans les boues d'épuration de quelques pays, ayant un fort potentiel d'adsorption sur les boues et présentant un risque de transfert pour le milieu aquatique d'où risque d'impact. Il s'agit : Chlorophénols, Chlorobenzènes, Diphényléthers bromés, Organoétains, nitrobenzènes, pesticides, toluène, autres.

La majorité des substances sont des substances toxiques ou nocives pour les écosystèmes aquatiques de par leur toxicité, leur persistance, leur bioaccumulation ou leur potentiel cancérigène. Certaines substances présentent un risque de transfert vers le milieu aquatique (cf Tableau 17 et Tableau 18).

¹² Article 16 de la Directive 2000/60/CE vise à renforcer la protection de l'environnement aquatique par des mesures spécifiques conçues pour réduire progressivement les rejets, émissions et pertes de substances prioritaires, et l'arrêt ou la suppression progressive des rejets, émissions et pertes de substances dangereuses prioritaires dans l'eau.

6.2 SUBSTANCES A SURVEILLER EN FRANCE : PRECONISATIONS ET PROPOSITIONS D'ACTIONS

Face à ce constat et au suivi des boues d'épandage limité à quelques composés par la réglementation française, une surveillance plus poussée semble nécessaire.

Nous proposons de :

1. Organiser un inventaire sur différents types de stations d'épuration en orientant notre recherche sur les substances retrouvées dans les boues des autres pays et pour lesquelles aucune donnée ou peu de données sont disponibles en France.

La recherche portera sur :

- Les substances figurant dans le nouveau projet de la directive 86/278/CEE (version du 24/05/2000). Ces substances sont couramment retrouvées dans les boues de stations d'épuration de pays européens ou autres, à des teneurs non négligeables. De plus, ces substances présentent un potentiel d'adsorption sur la matrice boue important et/ou peuvent sous certaines conditions présenter un risque de transfert via le milieu aquatique.

Famille	Liste des substances
Composés traces organiques	DEHP, LAS, NPE, Dioxines et Furannes ^① et AOX ^②

- ① La principale source de PCDD/F identifiée dans les eaux résiduaires (Mc Lachlan et al 1996) est l'utilisation de PCP comme fongicide sur les textiles. Les actions sont à mener en priorité en amont si cette famille de substances est retrouvée en France dans les boues (actions réalisées dans divers pays européens).
- ② Il s'agit d'un indice mesurant les composés organohalogénés absorbables sur charbon actif (c'est à dire les substances organiques contenant des halogènes présentes dans l'eau). Ce paramètre est contrôlé uniquement en Allemagne et en Autriche. Il ne permet pas d'identifier les substances individuellement, mais une forte valeur de cet indice indique la présence de substances organiques halogénées, telles que des solvants chlorés par exemple.
- Les substances ayant un potentiel d'adsorption sur les boues moyen ou fort et présentant un risque pour le milieu aquatique. A celles-ci se rajoutent toutes les substances n'ayant pas fait l'objet d'une étude sur l'aspect impact environnemental. Il s'agit de :

Famille	Liste des substances
Métaux	Arsenic, Sélénium et Argent (Tableau 12)
Composés traces organiques	Chlorophénols, toluène, chlorobenzènes, diphényléthers bromés, organoétains, pesticides.(Tableau 14)

2. Etendre la surveillance aux substances éventuellement retrouvées au cours de l'inventaire.

Afin de pouvoir mener à bien la surveillance et la recherche de substances dans les boues, certaines précautions et actions doivent être envisagées et poursuivies.

6.3 FAISABILITE

6.3.1 MISE EN PLACE D'UN INVENTAIRE EN FRANCE

Les résultats de l'étude mettent en évidence la présence de substances dangereuses, au sens de la DCE, dans les boues et leur potentiel de « relargage » vers les milieux aquatiques en cas d'épandage.

Actuellement des études sur la présence de substances dangereuses dans les stations d'épuration urbaines (action 3RSDE) permettent l'accès à certaines données en amont et en aval. En particulier, l'absence des substances dans les rejets peut laisser supposer leur présence dans les boues.

Nous proposons dans un premier temps, de vérifier si les substances mises en évidence dans divers pays sont retrouvées, dans les boues, en France :

- par l'exploitation des résultats disponibles (fin 2006) dans le cadre de l'action RSDE et d'autres études disponibles (AE RMC, AEAP). Cette étude permettra également une meilleure connaissance des boues d'épandage en fonction du type de traitement mis en œuvre (type de station d'épuration) et du nombre d'habitant raccordé ;
- par la création d'un groupe de travail technique constitué des professionnels de la filière « boue » via le SPDE. Le premier objectif de ce groupe sera de collecter le maximum d'informations disponibles sur la présence de substances dans les boues : résultats d'études menées en interne par des traiteurs d'eau, campagnes locales d'analyses des boues, résultats de projets type AMPERES (projet européen dont le CEMAGREF est leader, etc...).

Dans un second temps, de réaliser des analyses sur des sites choisis (en partenariat avec le groupe), en fonction du type de station d'épuration et du nombre d'équivalent Habitant traité. Les analyses porteront sur eau amont, eau aval et sur boues.

La participation des experts de l'INERIS aux groupes de travail français et européens sur l'analyse des boues permettra également de mettre en œuvre les méthodes analytiques validées ou de développer des méthodes internes (probablement peu d'essais cette année en 2006, quelques uns ciblés sur les substances majoritairement retrouvées en STEP dans l'opération RSDE).

6.3.2 POURSUITE DES TRAVAUX EN NORMALISATION – METHODES D'ANALYSES VALIDEES

Les prestataires analytiques doivent maîtriser l'analyse des composés trace. Ceci exige en général une instrumentation analytique sophistiquée et des analystes qualifiés. Or actuellement, peu de méthodes d'analyses sont validées dans le domaine des boues. Les documents de référence sont quasi inexistantes pour assurer la conformité analytique (assurance qualité du résultat). La comparabilité des données sera donc difficile à assurer au cours du temps.

Toutefois, depuis 1993, des travaux de normalisation européenne sont en cours sur les "méthodes de caractérisation des boues et produits". Ces travaux sont menés au sein du CEN TC 308, sous la présidence française et avec le secrétariat de l'AFNOR. Un programme Horizontal a été financé par la Direction Générale de l'Environnement de l'UE en décembre 2002, son acronyme est « HORIZONTAL ». L'objectif principal est d'harmoniser les méthodes d'analyse des boues, des sols, bio-déchets. De même une commission de normalisation « Harmonisation des méthodes » a été créée en France pour refléter l'organisation européenne dite « horizontale ».

Nous continuons de poursuivre activement les travaux de normalisation sur les boues de station d'épuration (au travers des commissions ad-hoc et des travaux du programme européen «HORIZONTAL») et biosurveillance de l'environnement.

L'INERIS s'engage à participer aux essais sur paramètres de base (7 paramètres), métaux traces (7 méthodes) et micropolluants organiques (BDE, DEHP, HAP, PCB, nonylphénols, LAS, AOX).

A l'issue de ces essais, les méthodes pourront être proposées au CEN en vue de leur adoption en tant que norme européenne et seront donc utilisables en particulier pour l'analyse des boues de STEP auprès des différents prestataires d'analyses de boues.

6.3.3 REFLEXION SUR LE DEVELOPPEMENT D'UN AGREMENT BOUES

Aucune exigence réglementaire (agrément, accréditation) pour les prestataires de l'analyse de boues n'est imposée aujourd'hui par le Ministère de l'Agriculture.

Il pourrait sembler cohérent que soit défini un cadre pour l'exercice de la prestation d'analyse de boues, de manière analogue à celui établi pour l'analyse des eaux environnementales¹³.

¹³ Arrêté du 12 novembre 1998 *portant modalités d'agrément des laboratoires pour certains types d'analyses des eaux ou des sédiments* et sa révision en cours.

7. ANNEXES

Annexe 1 : Eléments traces métalliques mis en évidence en Europe / USA	1
Annexe 2 : HAP et PCB mis en évidence en Europe / USA	3
Annexe 3 : Autres composés traces organiques mis en évidence en Europe	5
Annexe 4 : Organisation de la normalisation relative à la caractérisation des boues	9

Annexe 1 : Eléments traces métalliques mis en évidence en Europe / USA

Survey of potentially toxic elements in sewage sludge : values in mg/kg DS « Pollutants in Urban Wastewater and Sewage Sludge », EC 2001

Country	Cadmium				Chromium				Copper				Mercury				Year/s of Survey
	Mean	Median	Min.	Max.	Mean	Median	Min.	Max.	Mean	Median	Min.	Max.	Mean	Median	Min.	Max.	
Austria	1.5	1.2	0.4	3.4	62	54	25	130	264	240	170	540	5.1	2.1	1.0	48.0	1994 / 1995 - Scharf, S et al, 2000
Germany	1.5				50	52	46	52	275				1.2				1995 / 1997- CEC, 1999
Denmark	1.4	25			33	34	24.8	40.3	284				1.29				1995 / 1997- CEC, 1999
France	4.1				69.0		58.8	80	322				2.85				1995 / 1997 – CEC, 1999
Finland	1.0				85.7	84	82	91	288				1.4				1995 / 1997- CEC, 1999
Greece (a)	1.6				885.8				302				4.1				1996 – Cristoulas, D.G et al, 1997
(b)	1.4				43.8				103								1997 – Agelidis M.O et al, 1997
Italy			0.8	23			14.8	1400			160	373			0.46	5	1998 / 1999 – Braguglia et al, 2000
Ireland	2.8								641				0.6				1997 – CEC, 1999
Luxembourg	3.8								206				1.9				1997 – CEC, 1999
Netherlands	3								190				1.8				1990 – Wiart, J. et al, 1995
Sweden	1.5				38.4		37.7	39	522				1.85				1995 / 1996 – CEC, 1999
UK	3.5				159.5		157	162	562				2.50				1995 / 1996CEC, 1999
Norway	0.97				28.5				287.1				1.34				1998 – SFT, 2000
Poland	9.93	13.5	0.8	15.3	144.2	136.5	6.8	289.0	237.5								1999 – Bodzek, B. et al, 1999
EU	4.0				145				380				2.7				1992 – Hall, J.E. et al, 1994
	2.2				74				365				2.0				1994 / 1998
USA	38.1	8.95			589	150			639	444			3.24	2.3			1988 - USEPA 1992
	25				178				616				2.3				1992 –Bastian, R.K.. 1997
Limites	Agricultural Soils			Sewage Sluge	Agricultural Soils			Sewage Sluge	Agricultural Soils			Sewage Sluge	Agricultural Soils			Sewage Sluge	Year/s of Survey
EU	1 - 3			10 1*	30 – 100 (proposed)			1000 600*	50 - 140			1000 50*	1 – 1.5			10 0.5*	CEC, 1999
USEPA				39				1200				1500				17	USEPA 1993

Country	Nickel				Lead				Zinc				Arsenic			Sélénium		Year/s of Survey
	Mean	Median	Min.	Max.	Mean	Median	Min.	Max.	Mean	Median	Min.	Max.	Median	Min.	Max.	Mean	Median	
Austria	39	35	14	94	109	100	40	290	1188	1250	700	1700						1994 /1995- Scharf, S et al, 2000
Germany	23.3				67.7				834									1995 / 1997 – CEC, 1999
Denmark	22.8				59.9				777.2									1995 / 1997 – CEC, 1999
France	35.5				119.9				837.6									1995 / 1997 – CEC, 1999
Finland	41				43				606									1995 / 1997 – CEC, 1999
Greece (a) (b)	67 23.6				283 140.6				2752 1236									1996 – Cristoulas, D.G et al, 1997 1997 – Agelidis M.O et al, 1997
Italy			25	182.5			41	560			391	4213			1.1	1.8		1998 / 1999 – Braguglia et al, 2000
Ireland	54				150				562									1997 – CEC, 1999
Luxembourg	24				128				1628									1997 – CEC, 1999
Netherlands	37				145				1320									1990 - Wiart, J. et al, 1995
Sweden	19.3				48.2				620.5									1995 / 1996 – CEC, 1999
UK	58.5				221.5				778					2.5				1995 / 96- CEC, 1999-As et Se (1996/97)- Environment Agency of England and Wales, 1999
Norway	15.4				21.7				340									1998 – SFT, 2000
Poland	41.1				211.8				3641									1999 – Bodzek, B. et al, 1999
EU	44 33				97				1000 817									1992 – Hall, J.Eet al, 1994 1994 / 1998
USA	90.6 71	46.5				204 170	152		1490 1285	970			11.0 4.9	6.7		6.14 6.0	4.5	1988 - USEPA 1992 1992 –Bastian, R.K.. 1997
Limites	Agricultural Soils		Sewage Sluge		Agricultural Soils		Sewage Sluge		Agricultural Soils		Sewage Sluge		Agri-cultural Soils	Sewage Sluge	Agri-cultural Soils	Sewage Sluge	Year/s of Survey	
EU	30 - 75		300	50*	50 - 300		750 70 *		150 - 300		2500 150*							CEC, 1999
USEPA			420				300				2800			41			36	USEPA 1993

Légende : * For sluge applied to soil lower and higher limits are allowed for soil with pH in the range 5-6 and > 7 respectively (Commission of the European Communities (2000) working document on Sluge : 3rd draft. ENV. E.3.LM, 27 april, Brussels.

EU 1992 for B, DK, F, D, EL, IRL, I, L, NL, P, ESP, UK

EU 1994 – 1998 is derived from table values for AT, D, DK, F, FI, IRL, L, SE, UK and NO

UK and EU is sluge used in agriculture

Greece : (a) values are specific to Athens WWTS, (b) values are average of two rural WWTS.

Annexe 2 : HAP et PCB mis en évidence en Europe / USA
Survey of organic pollutants in sewage sludge : mg/kg DS (a) PAHs

PAHs	Country	Mean	Median	Min.	Max.	Year/s of Survey - Source
Benzo [a]Pyrène Indéno [1,2,3-cd]Pyrène	Austria	0.30 0.27	0.22 0.21	0.09 0.07	0.67 0.58	1994/1995 – Scharf, S et al, 1997
Somme des 16 HAP Benzo [a]Pyrène Fluoranthène Indéno [1,2,3-cd]Pyrène Benzo [a]Pyrène Somme de 6 HAP Somme de 16 HAP*	Germany (municipal)	6.4 0.35 1.2 0.3 0.5	0.4	2.6 0.1 0.6 0.1 0.4 0.25	15.3 1.1 2.7 0.8 3.4 12.83 16.28	1996 - Hessische Landesansatalt fur Umwelt (1991-1996) 1996 - Hessische Landesansatalt fur Umwelt (1991-1996) 1996 - Hessische Landesansatalt fur Umwelt (1991-1996) Hessische Landesansatalt fur Umwelt (1991-1996) 1994 Litz. N, et al 1998 UMK-AG2000 UMK-AG 2000
Benzo [a]Pyrène Fluoranthène Indéno [1,2,3-cd]Pyrène Somme de 18 HAP Somme de 18 HAP	Denmark	0.15 0.3 0.67	0.07 0.1 0.23	<0.01 <0.01 <0.01 <0.01 0.42	1.4 3.3 0.63 8.5 2.4	Torslov et al, 1997 Torslov et al, 1997 Torslov et al, 1997 Torslov et al, 1997 (cit in Paulsrud 2000) Torslov et al, 1997 (cit in Paulsrud 2000)
Fluoranthène	Spain	3.4		1.1	6.0	Moreda, JM, et al (1998a)
Benzo [a]Pyrène Fluoranthène	France			0.04 0.15	11 31	1994 - Conseil supérieur d'hygiène publique de France, 1998
Benzo [a]Pyrène Fluoranthène Indéno [1,2,3-cd]Pyrène	Greece	0.24 1.1 0.11	0.24 1.3 0.12	0.1 0.38 0.05	0.36 1.4 0.15	Manoli, E. et al 1999

PAHs	Country	Mean	Median	Min.	Max.	Year/s of Survey - Source
Somme de HAP Somme de 6 HAP Fluoranthène	Sweden	1.2-2.2	0.7-1.4 1.6			1995/1998 - Statistika meddelanden 1998 Tidestrom 1997 UKwIR 1995
Somme de 10 HAP Benzo [a]Pyrène Fluoranthène	UK	27.8	2.6 2.5	6.0 0.1 1.1	83.8 7.5 4	1994 Sweetman 1994 1989 - Wild.S, R, et al, 1989 1991 - UKWIR 1995
Somme de 6 HAP	Switzerland Municipal	0.5	0.35	0.04	1.83	UKWIR 1995
Benzo [a]Pyrène Fluoranthène Indéno [1,2,3-cd]Pyrène	Italy	<0.05 <0.05 <0.05				2000 – Braguglia et al, 2000
Somme des HAP	Poland	72.3	74.4	32.7	114.3	1999 - Bodzek, B et al, 1999
Somme des HAP	Canada			1	20	Webber et Nichols, 1995
Benzo [a]Pyrène Fluoranthène	USA	13.8 9.95	4.7		154 154	1988 - USEPA 1992 – USEPA 1999

	Limites	Agricultural soils	Sewage sludge	
Somme de 10 HAP	EU		6 (proposed)	European Union, 2000
Benzo [a] pyrène	USEPA		21.4	Smith, SR.2000

Survey of organic pollutants in sewage sludge : mg/kg DS (a) PCBs

PCB	Country	Mean	Median	Min.	Max.	Year/s of Survey – Source
PCB (28, 52, 101, 138, 153, 180)	Austria	0.07	0.05	0.02	0.07	1994/1995 – Scharf, S, et al, 1997
	Germany	0.01- 0.04 0.154 0.158 0.340		0.05	15	1991-96 – Leschber, R 1997 1996 UMK-AG2000 1994 UMK-AG2000 1989 UMK-AG2000 1985-87 – Drescher-Kaden et al, 1992
	Denmark	0.05	0.03	<0.03	0.2	TorslovJ, et al, 1997
	Spain			0.05	0.93	Moreda, JM, et al (1998b)
PCB (101, 118, 138)	France			0.03	0.4	1994 Conseil supérieur d'hygiène publique de France, 1998
	Sweden	0.1	0.1			1995/1998 – Statistika meddelanden 1998
	UK		0.34	0.01	21.5	Mcintyre. A,E, et al 1984
	Norway		0.0422	0.017	0.10	Paulsrud et al 2000
	Canada	0.25				Webber et Nichols, 1995
	USA	1.46	1.48		14.8	1988 – USEPA 1992 – USEPA 1999

	Limites	Agricultural Soils	Sewage sludge	
	EU		0.8 (proposed)	European Union, 2000
	USEPA		6.6	Smith, SR.2000

Annexe 3 : Autres composés traces organiques mis en évidence en Europe

Concentrations of DEHP in Sewage Sluges of various countries (Sources : Survey of organic pollutants in sewage sludge (mg/kg ds) and Organic Contaminants in sewage sludge for agricultural use (mg/kg dw)

DEHP	Country	Mean	Median	Min.	Max.	Year/s of Survey - Source
	Austria			23.4	34.4	Hohenblum, P, et al 2000
Bis-(2ethylhexyl)-phthalate	Germany	20-60		<2.4	320	1991-96 Drescher-kaden et al .1992 – Leschber, R.1997
	Denmark	38	25	3.9	170	Torslov J, et al 1997
Bis-(2ethylhexyl)-phthalate	Sweden			6.7	28	UKWIR 1995
	Swedish (1989-1991)		170	25	661	National Swedish Environmental Protection Board, 1992 cit in Paulsrud et al, 2000
	Norway		58	< 1	140	Paulsrud et al.2000
	Norwegian (1989)		83	27	1115	Virerust, 1989
Bis-(2ethylhexyl)-phthalate	Canada	68.0		11	959	Bridle, T.R. et al 1983
	USA	110	17		891	1988 USEPA 1992 – USEPA 1999

	Limits	Agricultural Soils	Sewage Sludge	Year/s of Survey - Source
	EU		100 (proposed)	European Union, 2000

Concentrations LAS in Sewage Sluges of various countries (Sources : Survey of organic pollutants in sewage sludge (mg/kg ds) and Organic Contaminants in sewage sludge for agricultural use (mg/kg dw)

LAS	Country	Mean	Median	Min.	Max.	Year/s of Survey – Source
	Austria	8107	7579	2199	17955	1994/1995 Scharf, S, et al. 1997
	Germany	5000		50	16000	1985-87 Drescher-Kaden et al. 1992
	Denmark	2700	530	11	16100	Torslov J, et al 1997.
Aerobic	Spain			100	500	Berna JL et al, 1989
Anaerobic				12100	17800	Prats D, et al 1993.
	Finland	9700				McEvoy &Giger 1986
	Italy			11500	14000	Cavelli L, et al 1993
	UK	8700	10400	60	18800	Holt MS et al 1992
Anaerobic	Switzerland			2900	11900	Jones & Northcott 2000
	Norway (1995, 1997)		54	< 1	424	Paulsrud et al.2000
Aerobic	USA	152				McAvoy DC, et al 1984
Anaerobic		4680		1680	7000	Rapaport RA, et al 1990
	Limits		Agricultural Soils		Sewage sludge	
	EU				2600 (proposed)	European Union, 2000

Concentrations Dioxins and Furans in Sewage Sluges of various countries (Sources : Survey of organic pollutants in sewage sludge (ng TEQ/kg ds) and Organic Contaminants in sewage sludge for agricultural use (ng/kg dw)

DIOXINS & FURANS	Country	Mean	Median	Min.	Max.	Year/s of Survey – Source
	Germany	15-45		50	16000	1991-1996 – Leschber, R. 1997
	Germany 1994	22				UMK-AG 2000
	Germany 1995	19				UMK-AG 2000
	Germany 1996	17				UMK-AG 2000
	Spain	55 620	42	7 29	160 8300	1994-1998 – Eljarrat. E, et al, 1999 1979-1987 – Eljarrat. E, et al, 1999
	Sweden	24		23	25	Rappe et al, 1989
	Swedish (1989/1991)			3.0 5.7	68.8 115	Paulsrud et al 2000 National Swedish Environmental Protection Board, 1995 cit in Paulsrud et al, 2000
	UK	40.2		7.6	192	UKWIR 1995
	Danish			10.3	34.2	Torslov et al 1997
	Canada			120	36000	Webber et Nichols, 1995
Dioxins	USA	82.7 90.4	37.4	0.49	2321 1820	1988 – USEPA 1992 et USEPA 1999
	Limites	Agricultural soils		Sewage sluge		Year/s of Survey – Source
	EU			100 (proposed)		European Union, 2000

AOX content in sludges from Germany (UMK-AG2000)

Year	Mean mg/kg dm	Highest P 90 among German Bundeslaender mg/kg dm
1994	206	370
1995	201	400
1996	196	363

Annexe 4 : Organisation de la normalisation relative à la caractérisation des boues

1. Système de normalisation

La normalisation est organisée à différents niveaux. On trouve le niveau :

- International : ISO (International Standardisation Organisation)
- Européen : CEN (Comité Européen de Normalisation)
- National : AFNOR (Association Française de NORmalisation)

Chaque niveau est organisé par milieu ou par matrice. La matrice « Boue » présente la particularité de relever de plusieurs milieux environnementaux :

- le milieu « eaux » qui les produit au travers de l'épuration des eaux usées,
- le milieu « sols » qui les reçoit via leur valorisation par épandage.

Au niveau international, chaque commission « milieu » de l'ISO prend en compte les boues par rapport à sa matrice. Le CEN et l'AFNOR se sont dotés d'instances spécifiques aux boues.

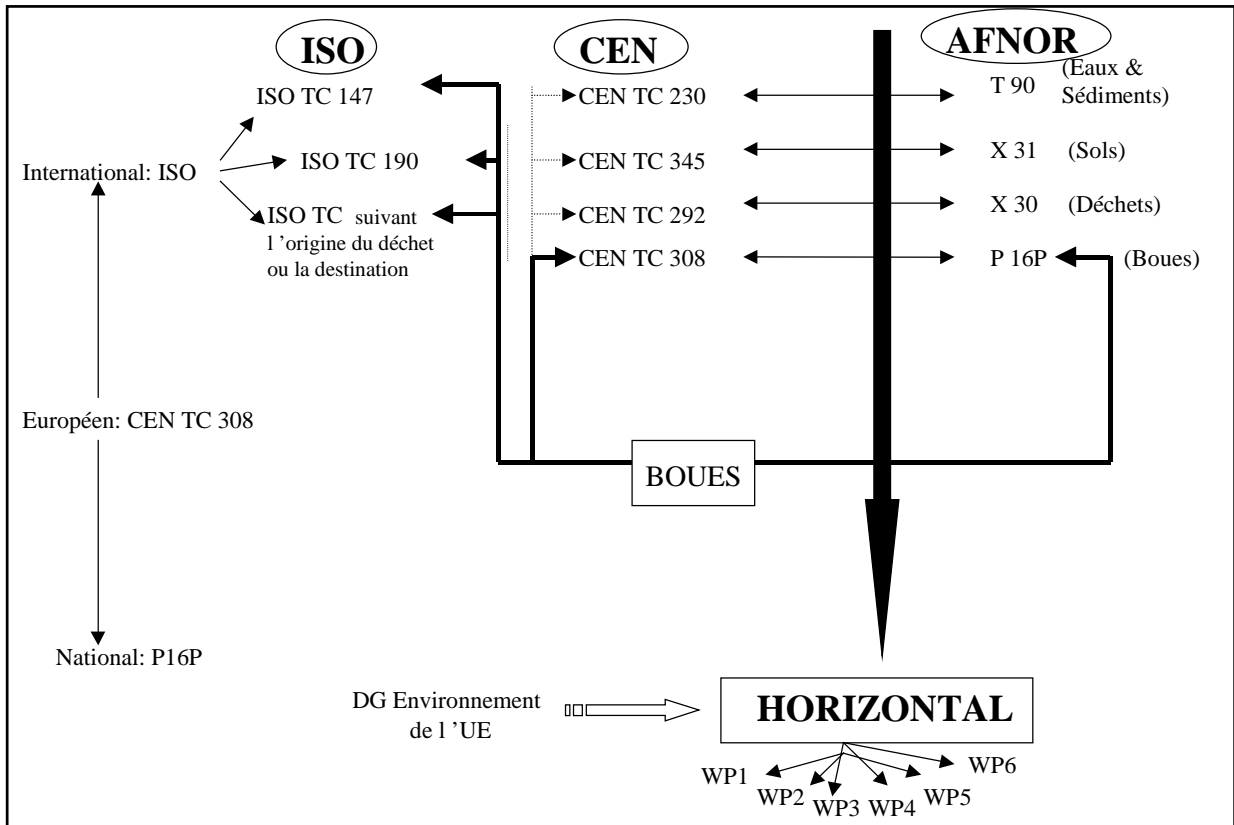
Dans le but d'unifier les normes sur les boues, un programme de pré-normalisation européen « Horizontal » a été initié par la DG ENV et l'UE.

L'organisation de la normalisation relative à la caractérisation des boues est présentée par le Graphe 1.

Aujourd'hui, les normes relatives aux boues publiées en France chaque année sont majoritairement d'origine étrangère : sur 14 normes nouvelles publiées en 2005, 7 sont élaborées par le Comité Européen de normalisation (CEN), 6 françaises (AFNOR) et 1 est d'origine internationale (ISO).

A ces 14 méthodes normalisées s'ajoutent 7 textes européens de recommandations techniques, rapports techniques ou guides de bonnes pratiques.

On note une nette accélération des travaux dans ce domaine, puisque le nombre de textes relatifs aux boues publiées en 2004 était de 10, et qu'une vingtaine de textes verra le jour en 2007.



Graph 1 : L'organisation de la normalisation relative à la caractérisation des boues

▪ Au niveau international

L'ISO (organisation internationale de normalisation) est une fédération des organismes nationaux de normalisation de 149¹ pays, un par pays, de toutes les régions du monde, représentant des économies développées, en développement et en transition. Chaque membre de l'ISO est le principal organisme de normalisation dans son pays. Les membres proposent les nouvelles normes, participent à leur élaboration et apportent, en collaboration avec le Secrétariat central de l'ISO, leur soutien aux 3 000 groupes techniques chargés de l'élaboration concrète des normes.

C'est un réseau mondial qui identifie les normes internationales nécessaires pour les entreprises, les gouvernements et la société, les élabore en partenariat avec les secteurs qui les appliqueront, les adoptent au moyen de procédures transparentes fondées sur la contribution des pays, et les met à disposition pour une application dans le monde entier. Les normes ISO expriment un consensus international issu du plus large éventail possible de parties prenantes.

Lorsque le résultat des travaux est publié sous forme de normes internationales ISO, les membres de l'ISO peuvent les adopter en tant que normes nationales et les traduire.

¹ Au 1^{er} mars 2005

- **Au niveau européen**

Le Comité Européen pour la Normalisation (CEN) est l'instance européenne qui fédère les organismes nationaux de normalisation des pays européens.

Le comité technique CEN TC 308 a pour vocation d'être l'instance où toutes les approches sont concentrées et où tous les acteurs des différentes filières se retrouvent pour aborder dans sa globalité, l'unique problème des boues sous l'angle de leur production et de leur devenir.

L'adaptation de la directive 91/271/CEE sur l'assainissement des agglomérations, conjuguée à une évolution de la réglementation ainsi qu'à la décision de révision de la directive 86/278/CEE relative à l'utilisation des boues en agriculture, et la parution de la Directive Cadre Eau 2000/60/CEE préconisant la réduction voire la suppression des rejets de substances prioritaires dont certaines pourraient être présentes dans les boues, ont incité l'ensemble des parties intéressées en Europe à travailler sur les boues, dans le cadre de la normalisation.

Face aux exigences réglementaires, de nouveaux sujets de travail ont été intégrés au CEN TC 308. Ils concernent essentiellement l'évaluation du risque lié à l'utilisation des boues.

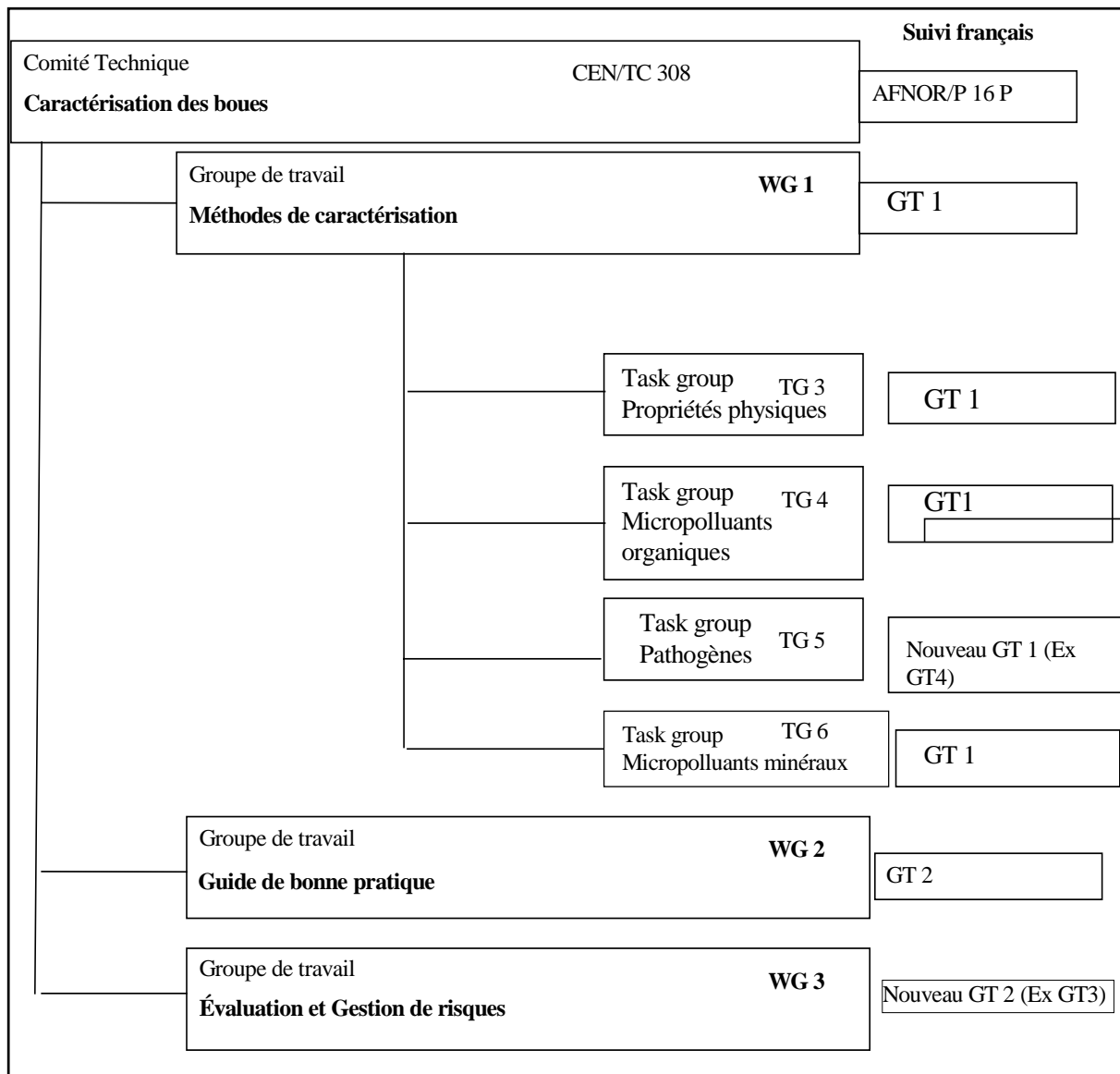
Des travaux de normalisation européenne sont en cours sur les "méthodes de caractérisation des boues et produits", depuis 1993, au sein du CEN TC 308, sous la présidence française et avec le secrétariat de l'AFNOR.

Le programme de travail du TC 308 comprend trois axes principaux :

- **Les méthodes d'analyses (WG1)** : (analyse physico-chimique et micro-biologique) : animé par l'Allemagne. Ce groupe est à ce jour divisé en différents Task-Group (TG) comme présenté en Graphe 2.
- **Les guides de bonnes pratiques (WG2)** : animé par la France.
- **La prospective (WG3)** : perspectives sur la production et l'élimination des boues : animé par le Royaume-Uni.

Dans le projet de révision de la Directive 86/278/CEE, la nouvelle prise en compte dans la caractérisation des boues de paramètres tels que les micro-polluants, les pathogènes et métaux lourds, ainsi que la définition de valeurs associées à ces paramètres, a revêtu une importance particulière. Les conséquences immédiates de la présence de ces nouveaux éléments dans la Directive, se traduisent pour les instances de normalisation correspondantes :

- par la nécessité d'identifier un seuil de risque,
- de produire des méthodes fiables et reproductibles relatives à ces éléments,
- de produire des méthodes qui se veulent harmonisées pour chacune des matrices concernées par la filière boue (sols, déchets, boues, eau via les sédiments et les MES) et autant que faire se peut « horizontales ».



Grappe 2 : La structure de l'organisation au sein du CEN/TC 308

2. Organisation de la normalisation en France

En France, la normalisation est suivie par l'AFNOR. L'AFNOR recueille les besoins en normalisation, coordonne l'élaboration des normes, diffuse les textes normatifs et est chargée de promouvoir leur utilisation. L'AFNOR représente également les intérêts français dans les instances de normalisations européennes (CEN) et internationales (ISO). Le P16 P "Caractérisation des boues" constitue la commission générale miroir française du CEN TC 308. Il n'existe pas de structure dédiée aux boues au sein de l'ISO.

De ce fait, l'AFNOR est en relation avec tous les organismes nationaux de normalisation tels que le DIN (Deutsches Institut für Normung) en Allemagne, le BSI (British Standards Institution) en Grande Bretagne ou encore le SCC (Standards Council of Canada) au Canada etc.

Dans le domaine de la certification, l'AFNOR a cinq missions essentielles :

- conseiller les entreprises dans le choix de certifications en fonction de leurs projets ;
- développer l'offre d'une certification fiable et crédible (succès de la norme NF) ;
- assurer la gestion et le fonctionnement des certifications ;
- animer un réseau de laboratoires ;
- représenter les intérêts des industriels français en Europe et dans le monde.

3. Programme HORIZONTAL

En parallèle à cette organisation, le programme Horizontal a été financé par la Direction Générale (DG) de l'environnement de l'UE (qui a donné mandat au CEN pour l'exécution de ce programme) en décembre 2002 avec comme axe principal de répondre à ce besoin d'harmonisation des méthodes d'analyse des boues, sols, bio-déchets, etc. Le but du programme Horizontal est donc de faciliter la régulation des niveaux majeurs dans les multiples décisions relatives aux différentes utilisations et la Commission Européenne. Le travail a débuté avec les « desk studies » sur tous les sujets pertinents du projet pour évaluer la faisabilité du développement de méthodes horizontales.

Une commission de normalisation « Harmonisation des méthodes » AFNOR/ENV a été créée en France pour refléter l'organisation européenne dite « Horizontale ». Son rôle est de participer pro-activement et d'être en mesure de définir des positions nationales vis-à-vis de l'ENV/TC, du programme horizontal, et de la récente CEN BT/TF 151, créée par le CEN pour accueillir les produits de sortie d'HORIZONTAL.

Le programme Horizontal est organisé en trois phases pour chaque sujet :

- La phase 1 (desk studies) : études bibliographiques de faisabilité.
- La phase 2 (rédactionnel pré-normatif) : élaboration de projet de norme.

Le programme de la phase 2 portant sur la conception de méthode doit être rédigé de manière à pouvoir être soumis à l'arbitrage de la BT/TF 151 et à informer les Comités Techniques (TC) sur l'orientation des travaux.

- La phase 3 (essais de laboratoires associés) : c'est la validation qui consiste tout d'abord à faire évaluer le projet de norme dans les différents pays.

Le temps accordé pour l'élaboration d'une norme par Horizontal est de 3 ans ; la première sortie d'Horizontal est prévue pour mi-2007.

Une large consultation a été organisée (« Desk Study ») et s'est terminée en 2004. Les résultats ont été analysés par le « Steering Committee » qui est l'instance décisionnelle du programme horizontal et qui est composé des financeurs, les animateurs des « Work-Package » (WP). Il a un rôle de conseil. Les thèmes prioritaires constituant les WP qui ont été retenus et qui feront l'objet d'expérimentation sont :

- l'échantillonnage (WP2)
- les contaminants organiques et inorganiques (WP4)
- les paramètres hygiéniques et biologiques (WP3)
- la lixiviation
- les propriétés mécaniques (WP6)
- l'interprétation des résultats

• **L'état d'avancement du programme Horizontal**

Toutes les « desk studies » (figurant dans le Tableau 1) ont été produites, certaines devaient être amendées. Tous les micropolluants organiques (sauf les PBDE (phase 1) et les médicaments (stoppés)) étaient en phase 2 (élaboration du texte de projet de norme) lors de la première consultation des experts.

Le Tableau 1 regroupe l'ensemble des « desk studies » de la première et seconde série². Les groupes HAP et PCB coopèrent de manière satisfaisante, et assurent la liaison avec le CEN TC 292 (déchets). Le groupe LAS/NP également assure la liaison avec le CEN TC 292. Les travaux du groupe phtalates ne sont repris en normalisation que par l'ISO TC 190 (sols).

² La première sortie de « desk study » est issue de la première consultation des experts du programme horizontal en août 2003. Elle est suivie de la seconde série qui résulte d'un programme complémentaire appelé HORIZONTAL-Org (aniques).

Tableau 1 : les différentes « desk study » du programme Horizontal

N° des WP	N° des DS	Thèmes		
1	-	Projet général		
2	2	Echantillonnage		
3	3-1	E.coli & Salmonella		
	3-2	E.coli & Salmonella (méthodes rapides)		
	4	Enterococci & Clostridium		
	5	Œufs d'helminthes viables		
	6	Pathogènes		
4	7	Biodégradabilité		
	8-1	Phytotoxicité		
	8-2	Germination		
	9	Impuretés		
5	10	AOX	26	Médicaments
	11	HAP	27	Retardateurs de flamme polybromés
	12	PCB	28	Dioxines et furannes
	13	LAS & Nonylphénols	32	Densité volumique et EC
	14	DEHP		
6	15	pH		
	16	Nutrient, N-nutrient, P-5 méthodes	24	Elément-Traces AAS-Flamme
	17-1	Matière sèche et LOI	24	Fluorimetry
	17-2	COT	25 v.2	Phosphore soluble
	18	Destruction		
	19	ICP, Eléments-Traces		
	20	AAS, Eléments-Traces		
7	21	Flowability		
	22	Solidité		
8	23	Lixiviation		

X : Draft desk studies – 2nd set

- AOX : passage du document pré-normatif (phase II) à la phase III (validation de la méthode par essais interlaboratoires)
- PCB, HAP : passage du document pré-normatif (phase II) à la phase III (validation de la méthode par essais interlaboratoires) - études de faisabilité ont été menées sur des matrices pertinentes suivant un plan d'expérience acceptable.
- NP : passage du document pré-normatif (phase II) à la phase III (validation de la méthode par essais interlaboratoires) - tests de robustesse pertinents, matrices judicieusement choisies.
- DEHP : passage du document pré-normatif (phase II) à la phase III (validation de la méthode par essais interlaboratoires). Essais de robustesse – essais interlaboratoires de validation prévus.
- Retardateurs de flamme (PBDE) : maintien en phase II. Elargir l'étude de robustesse à une plus grande variété de matrices.
- Hormones, produits pharmaceutiques : passage en phase II en juin 2006 – Sujet sans obligation normative, qui aura comme produit de sortie un rapport de faisabilité.
- Dosage des métaux par ICP : le texte actuellement proposé est un doublon de la norme ISO 11885 (matrice eau), maintenant ancienne. L'ISO TC 190 (sols) a actuellement à son programme de travail un texte plus pertinent.
- Dosage des métaux par AAS, GFAAS, dosage du Hg : la commission donnera son accord pour passage en phase III (phase de validation par EIL) sous réserve que la cohérence des trois documents soit assurée (prétraitement essentiellement).

4. Harmonisation des méthodes caractérisation des boues

- **Au niveau européen : CEN/TC 308**

Le programme de travail du WG1 du CEN TC 308 est essentiellement orienté vers le choix de méthodes de référence et la description de méthodes d'analyse permettant de connaître la composition des boues. La connaissance de la composition de ces boues oriente la décision pour le choix de la filière de gestion.

Le fait que le projet de directive ait été « gelé » en 2002/2003, a permis au WG1 de travailler sur de nombreux nouveaux sujets (pathogènes, micro-polluants, propriétés physiques, etc).

Il s'est réuni deux fois en 2005, la première réunion s'est tenue à Vienne en mars, la seconde à Madrid en septembre, elle a suivi celles des workshops organisés par le programme Horizontal.

WG 1/TG 1 : Eléments traces métalliques : ce groupe de travail a produit la norme d'extraction à l'eau régale EN 13346. Depuis, il se réunit principalement pour suivre les travaux du programme Horizontal, à la fois en ce qui concerne les mises en solution et les dosages.

WG 1/TG 2 : Eléments nutritifs : Les déterminations de l'azote ammoniacal et du phosphore total sont les deux derniers sujets traités par ce groupe. Les documents ont été finalisés et doivent être soumis au vote. Toutefois comme entre temps, les

mêmes sujets ont été repris par le programme Horizontal, il est probable que ces projets de normes ne verront jamais le jour. Après la réunion de Madrid, il a été décidé que ce groupe resterait inactif et que l'ensemble du dossier du programme Horizontal concernant les composés minéraux serait suivi uniquement par le GT1.

WG 1/TG 3 : Propriétés physiques : est dans une phase active de rédaction des projets de son programme.

WG 1/TG 4 : Micro-polluants organiques : ce groupe a initié dans le domaine des organiques des travaux portant sur HAP, PCB, AOX³ repris aujourd'hui au sein du programme Horizontal avec des animateurs issus en majorité du WG1/TG4. Il n'y a donc pas de problème en termes de communication et la réunion de Madrid a été l'occasion de faire un bilan d'étape sur différents sujets comme les HAP, PCB, phtalates, nonyl-phénols (voir état d'avancement du programme Horizontal).

WG 1/TG 5 : Microbiologie : animé par la France, le groupe a rédigé 3 méthodes de détection des E.Coli et Salmonelles. Les rapports techniques correspondants devraient être prêts pour publication en 2005.

- **Au niveau national de la commission de normalisation : P16 P**

Concernant les travaux purement français de la P16P, un groupe de travail spécifique sur les micro-polluants a permis de publier une norme française expérimentale sur les HAP et PCB.

Une restructuration de la commission P16P du domaine « caractérisation des boues » a été effectuée à la suite de différents événements (la création et le début du fonctionnement du programme de recherche horizontal, l'importance croissante des travaux sur les paramètres micro-biologiques). De plus, pour participer au programme horizontal, dont le but est de mieux coordonner les efforts sur l'analyse et d'éviter les duplications de méthodes similaires pour des matrices différentes, les experts de la P16P ont ressenti le besoin de renforcer leurs actions et de s'inscrire dans une structure française forte, pertinente et bien représentée dans les instances de ce programme horizontal.

³ Le TC 308/WG 1 souhaite focaliser ses efforts sur les AOX, ce paramètre étant « orphelin d'intérêt » de part du TC 345 (sols). Cet avis n'est pas partagé par certains membres, et le Danemark indique qu'un travail pré-normatif a été confié à Madame Ulla Lund en vue de tester cette même méthode sur les sols.

8. BIBLIOGRAPHIE

Abad E, Martínez, Planas C, Palacios O, Caixach J et Rivera J, *Priority organic pollutant assessment of sludges for agricultural purposes*, Chemosphere, 2005 article in press.

ADEME et le cabinet Arthur Anderson, 1999. *Etude sur la situation de la filière épandage de boues en Europe et dans divers pays du monde (USA, Canada, Australie)*.

ADEME, IRH. 1995, *Les micropolluants organiques dans les boues résiduelles de stations d'épuration urbaines*. Editions ADEME, Cahier Technique, collection Valorisation Agricole des boues d'épuration, 209p.

ADEME. janvier 2001, dossier documentaire : *Les boues d'épuration municipales et leur utilisation en agriculture*, Direction de l'Agriculture et des Bioénergies.

Amundsen, C. E., Andersen, S.; Vethe, O. and K. Esser (1997). *Organic contaminants in some norwegian sludge amended soils.- Specialty conference on management and fate of toxic organics in sludge applied to land*. Copenhagen, 30 April - 2 may 1997. Preprint

Arrêté du 8 janvier 1998 (JO du 31 janvier 1998) fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages de boues sur les sols agricoles pris en application du décret n° 97-1133 du 8 décembre 1997 relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées.

Arrêté du 2 février 1998 (Journal Officiel du 3 mars 1998) relatif aux prélèvements et à la consommation d'eau ainsi qu'aux émissions de toute nature des installations classées pour la protection de l'environnement soumises à autorisation.

Baize, D, 1997 – *Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols (France). Références et stratégies d'interprétation*. INRA Editions, Paris, 410p

Bennie, DT, 1999 – *Review of the environmental occurrence of alkylphenols and alkylphenols ethoxylates*. Water Quality Research Journal of Canada 34 (1), 79-122

Bolz U, Hagenmaier H et Körner W, *Phenolic xenoestrogens in surface water, sediments, and sewage sludge from Baden-Württemberg, south-west Germany*, *Environmental Pollution*, Vol. 115, 2001, 291-301p.

Bourjat V., rapport de stage, *Méthodes de caractérisation des sols pollués : Etude de l'interaction polluant-matrice Application au cas particulier des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques*, INERIS. 1998

Bourelrier P.H, Berthelin J. 1998. *Contamination des sols par les éléments en traces : les risques et leur gestion*. Académie des Sciences. Rapport n°42, 440p.

Bossert, I.P et Bartha, R 1986. *Structure-biodegradability relationships of polycyclic aromatic hydrocarbons in soils.* Bulletin of Environmental and Contaminant Toxicology, 37, 490-495.

BRGM, 2001, *Guide sur le comportement des polluants dans le sol et les nappes.* Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement, Direction de la Prévention des pollutions et des Risques, éditions BRGM, 2001.

Cabinet Arthur Andersen. 1999. *Audit environnemental et économique des filières d'élimination des boues d'épuration urbaine.* Les études des agences de l'eau, n°70, 28p. + annexes

Circulaire DE/GE n°357 du 16 mars 1999 (JO du 10 décembre 1997) relative à la réglementation relative à l'épandage des boues de stations d'épuration urbaines. Texte modifié par la Directive de la commission n° 98/15/CE du 27 février 1998 (JOCE n° L 377 du 28 février 1998).

Circulaire du 9 novembre 2004 (BOMEDD n°05/5 du 15 mars 2005) relative à l'assainissement des zones usées urbaines. Exécution de l'arrêt de la Cour de justice des Communautés européennes du 23 septembre 2004 en ce qui concerne l'insuffisance de la désignation des zones sensibles à l'eutrophisation dans les bassins Artois Picardie, Loire Bretagne, Rhône Méditerranée et Seine Normandie. Identification des objectifs de traitement plus poussé. Saisine des comités de bassin.

Colombé G, *Mobilisation des éléments traces minéraux (ETM) par les plantes cultivées dans différentes situations. Mémoire d'ingénieur de l'école supérieure d'agriculture de Purpan, 81 p.+annexes. 1999.*

CTP. 2001. *Les boues d'épuration et leur utilisation en agriculture.* Dossier documentaire. ADEME éditions, 58p. + fiches

Décret n°97-1133 du 8 décembre 1997 (JOCE n° L. 135/40 du 30 mai 1991) relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées.

Directive du Conseil n° 91/271 du 21 mai 1991 relative au traitement des eaux urbaines résiduaires. Journal Officiel des Communautés Européennes n° L. 135/40 du 30 mai 1991. Texte modifié par la Directive de la Commission n° 98/15/CE du 27 février 1998 (JOCE n° L 377 du 28 février 1998).

Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture. Texte modifié par la Directive du conseil n°91/692/CEE du 23 décembre 1991 (JOCE n° L 377 du 31 décembre 1991).

Directive 2000/60/CE du parlement européen et du Conseil, du 23 octobre 2000, établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau. Journal Officiel des Communautés européennes n° L327 du 22 décembre 2000. Texte modifié par Décision du Parlement européen et du Conseil n° 2455/2001/CE du novembre 2001 (JOCE n° L331 du 15 décembre 2001).

Duarte-Davidson, R. & K. C. Jones (1996): *Screening the Environmental Fate of Organic Contaminants in Sewage Sludge Applied to Agricultural Soils: II. The Potential for Transfers to Plants and Grazing Animals. Screening des Verbleibs von organischen Schadstoffen in der Umwelt nach Klärschlammausb.* The Science of the Total Environment, 185(1-3), 59-70.

European Union. 2000. Working document on sludge, 3rd draft. Brussels, 27 April 2000. ENV.E.3/LM. *Appendix IV: Limit value for concentrations of organic compounds and dioxins in sludge for use on land.* 20 pages including appendices. http://europa.eu.int/comm/environment/waste/sludge_en.pdf

Environmental Working group Policy Analysis – Dumping Sewage Sludge on Organic Farms ? Hettenbach T, Cohen B, Wiles R, Cook K – April 30, 1998.

FEIX I., WIART J. (1998). *Connaissance et maîtrise des aspects sanitaires de l'épandage des boues d'épuration des collectivités locales*, ADEME éd., 74p.

Fent, K ; Jones, K ; Alcock, R [Eds] : *Organotin compounds in municipal wastewater and sewage sludge: Contamination, fate in treatment process and ecotoxicological consequences* ORGANIC CONTAMINANTS IN SEWAGE SLUDGES. – The Science of the Total Environment, Meeting Info. : Int. Symp. On Organic Contaminants in Sewage Sludges. Lancaster(UK). 16-17 may 1995., 151 – 159.

Gan, D. R. and P.M. Berthouex (1994). *Disappearance and crop uptake of PCBs from sludge-amended farmland.* -Water Environment Research, ISSN: 1061-4303., 66(1), 54-69.

Ghanem.A 2006 - *Les pesticides dans les boues valorisées en agriculture: développements analytiques et évaluation des impacts écotoxicologiques* - INRA

Graud C., rapport de stage « *Valorisation de données d'analyses chimiques réalisées sur des effluents industriels rejetés dans le milieu aquatique* », INERIS 2005.

Graud L., rapport de stage « *Les micropolluants organiques et métalliques dans les boues d'épuration urbaines* », Communauté Urbaine de Bordeaux, Direction Opérationnelle Eau et Assainissement, 2001.

Grüttner, H., T. Madson, Vikelsoe J. and A. Smith (1997). *Fate of selected organic substances in Danish wastewater treatment plants with nutrient removal.* – Specialty conference on management and fate of toxic organics in sludge applied to land. Copenhagen, 30 April - 2 may 1997. Preprint

Günther, P and W. Pestemer (1992). *Phytotoxicity of surfactants to higher Plants.*- in: Hall, J.E., Sauerbeck, D. R. & P. L'Hermite (1992), 103-111.

Haigh, S. D. (1996): *A review of the interaction of surfactants with organic contaminants in soil.* -The Science of the Total Environment, 185(1-3), 161-170.

Helaleh Murad I.H, Al-Omair A, Nisar A et Gevao B, *Validation of various extraction techniques for the quantitative analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in sewage sludges using gas chromatography-ion trap mass spectrometry*, Journal of chromatography A, Vol. 1083, 2005, 153-160p.

Hembrock-Heger, A (1992). *Persistent Organic Contaminants in Soils, Plants and Food*.-in: Hall, J. E., Sauerbeck, D. R. & P. L'Hermite (1992), 78-89.

IFEN, 2001. Plus de 60% des boues d'épuration municipales ont été épandues en 1999 sur 2% des sols agricoles. Orléans, Ifen, 4p. (coll. Les Données de l'environnement, 63).

IGE, 2005 : Pesticides dans l'eau – Rapport IGE 2005 - p2 à p 31

INERIS, *les substances dangereuses prioritaires de la Directive Cadre sur l'Eau : Fiche de données technico-économiques (rapport final)*, janvier 2005, J-M. BRIGNON, L. MALHERBE, S. SOLEILLE, Unité MECO, Direction des Risques chroniques.

INERIS, *les matières en suspension et l'analyse des eaux : Influence des matières en suspension sur l'analyse des substances prioritaires dans les eaux*, décembre 2004, BECUE A et NGUYEN R, Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable

INERIS, 2003. *Essai interlaboratoires sur les substances prioritaires de la Directive Cadre Eau, Hydrocarbures Aromatique Polycycliques et Composés Organiques Halogénés Volatils*. Rapport MEDD, B. LEPOT-Direction des Risques chroniques.

INERIS, 2004. *Essai interlaboratoires sur les substances prioritaires de la Directive Cadre Eau, Pesticides et Chlorophénols*. Rapport final MEDD-Direction de l'Eau convention DE n° CV04000107 – Thème n°1, B. LEPOT-Direction des Risques chroniques.

INERIS, 2004. *PBDE dans les boues et sédiments : Mise en place d'une méthode d'extraction automatisée (ASE)*. Rapport final MEDD- Direction de l'Eau, A. BECUE/ C. DENIZE – Direction des Risques Chroniques.

INRA. *Les impacts environnementaux du recyclage des boues de station d'épuration*. Martine Tiercé – INRA-ME & S.

Jauzein M. *Les micropolluants organiques dans les boues résiduaire des stations d'épuration*. Publication Ademe, 220p. 1995

Juste C, Chassin P, Gomez A, Linères M et Mocquot B, *Les micropolluants métalliques dans les boues résiduaire des stations d'épuration urbaines*. ADEME Editions (Paris), 209p.1995

Litz, N. (2000). *Assessment of organic constituents in sewage sludge*. Water Science and Technology, Vol 42 No 9 pp 187-193.

Lyman, W.J, Reehl, W.F and Rosenblatt, D.H. *Handbook of Chemical Property Estimation Methods.* Washington, DC : 1990 American Chemical Society.

Madsen, T., Kristensen P., Samsö-Petersen, L., Törslöv, J. & J. O. Rasmussen (1997). *Application of sludge on farmland - quality objectives, level of contamination and environmental risk assessment.-Specialty conference on management and fate of toxic organics in sludge applied to land.* Copenhagen, 30 April - 2 may 1997.Preprint

Màrcia de Souza Pereira et Bertran Kuchy. *Heavy metals, PCDD/F and PCB in sewage sludge samples from two wastewater treatment facilities in Rio de Janeiro State, Brazil,* Chemosphere, Vol. 60, 2005, p844-883.

McGrath, S. (2000): *Persistent organic pollutants and metals from sewage sludges: their effects on soil plants and the food chain.* -in: Langenkamp, H. & L. Marmo (Eds.) (2000).

McLachlan, M. S.; Horstmann M. and M. Hinkel (1996). *Polychlorinated dibenzo-p-dioxins and dibenzofurans in sewage sludge: Sources and fate following sludge application to land.* -Sci. Total Environ., 185(1-3), 109-123.

Miège C. *Méthodes de caractérisation des HAP et des PCB dans les boues résiduaires de stations d'épuration,* ADEME, ESPCI. 1999. Synthèse bibliographique, Editions ADEME.

Ministère de l'écologie et du développement durable, paris 6 janvier 2005, prescriptions nationales en vue de l'élaboration d'un cahier des clauses techniques particulières pour un inventaire exceptionnel 2005 de la contamination des milieux aquatiques par certaines substances dangereuses.

Morales S, Canosa P, Rodríguez I, Rubí E et Cela R, *Microwave assisted extraction followed by gas chromatography with tandem mass spectrometry for the determination of triclosan and two related chlorophenols in sludge and sediments,* Journal of chromatography A, Vol. 1082, 2005, p128-135

Nylund, K., et al, 2002 *Analyses of brominated flame retardants in sewage sludge from 50 waste water treatment plants in Sweden].* Report from Institutet för tillämpad miljöforskning, Stockholms Universitet. Made available by Naturvårdsverket for the project. (In Swedish).

O'Connor, G. A. (1996): *Organic compounds in sludge-amended soils and their potential for uptake by crop plants.* -Sci. Total Environ., 185(1-3), 71-81.

ORDIF. 2003, *Compte rendu de la journée technique d'information et d'échanges : L'actualité des boues des stations d'épuration en Ile de France.*

Organic contaminants in sewage sludge for agricultural use – UE 2001

Organic Contaminants in Sewage sludge - Review of studies regarding occurrence and risks in relation to the application of sewage sludge to agricultural soil - Author: Lise Samsøe-Petersen, DHI Water & Environment, Copenhagen - SWEDISH ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY – rapport 5217

Pérez S, Guillamón M et Barceló D ; *Quantitative analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in sewage sludge from wastewater treatment plants*, Journal of chromatography A, Vol. 938, 2001, p 57-65

IC Consultants Ltd London, UK for the European Commission, *Pollutants in Urban Wastewater and Sewage Sludge*, October 2001, (ISBN 92-894-1735-8)
<http://europa.eu.int/comm/environment/>

Pollutants and nutrients in sludge and their effect on soil, vegetation and fauna. Session 2

<http://ec.europa.eu/environment/waste/sludge/workshoppart3.pdf>

Qiuping, Ye, Q., R. K. Puri, S. Kapila, W. R. Lower and A. F. Yanders (1991): *Studies on uptake of PCBs by Hordeum vulgare (barley) and Lycopersicon esculentum (tomato)*. -Chemosphere, 23, 1397-1406.

Rhee, G.Y, Bush, B, MP, Kane, M et Shane, L. 1989. *Anaerobic biodegradation of polychlorinated in Hudson river sediments and dredged sediments in clay encapsulation*. Water Research, 23,957.

Rippen, G. (2001). *Handbuch Umwelt-Chemikalien, Stoffdaten - Prüfverfahren - Vorschriften*, Loseblattsammlung.-ecomel Verlag, Landsberg/Lech, 2000.

Santodonato J. *Review of the estrogenic and antiestrogenic activity of polycyclic aromatic hydrocarbons : Relationship to carcinogenicity*, Chemosphere, Vol. 34, 1997, 835p.

Sulkowski, W. et Rosinka, A. 1999. *Comparison of the efficiency in extraction methods for polychlorinated biphenyls from environmental wastes*. Journal of Chromatography A, 845, 349-355.

SYPREA, 2000 : *Qualité des Boues : quoi de neuf?*. La lettre du SYPREA, Mars 2000.p6

USEPA. 2003. EPA makes final decision on dioxin in sewage sludge used in land applications – press release. 17 octobre 2003. <http://www.epa.gov/ost/biosolids/#rule>

Vanden Bossche H.2001 : Forum d'échanges sur l'usage en agriculture des boues urbaines. Compte rendu de la séance n°3 du 16/1/2001, 22p.

Wang, M,J. ; and Jones , K.C. 1994 . *Behaviour and fate of chlorobenzenes (cbs) introduced into soil-plant systems by sewage-sludge application – a review*. Chemosphere 28,1325-1360

Webber M.D et Singh S.S, « *Contamination des sols agricoles* » Agriculture et Agroalimentaire Canada – Direction générale de la recherche.

http://www.agr.gc.ca/nlwis-snite/index_f.cfm?s1=pub&s2=hs_ss&page=intro

Webber, M.D, Rogers, H.R, Watts, C.D, Boxall, A.B.A, Davis, R.D et Scoffin, R.1996. *Monitoring and prioritisation of organic contaminants in sewage sludges using specific chemical analysis and predictive, non-analytical methods.* The science of the Total Environment, 185, 27-44.

Wild, S.R et Jones, K.C 1995. *Polynuclear aromatic hydrocarbons in the United Kingdom Environment : a preliminary source inventory and budget.* Environmental Pollution, 88, 91-108

Documents électroniques :

ADEME. *Les boues d'épurations municipales et leur utilisation en agriculture.*

<http://www.acta.asso.fr/epuration/data/pages/chap5.htm>

AFNOR Information. <http://catafnor.afnor.fr/catafnor/pdf/boues.pdf>

Action Nationale de Recherche et de Réduction des Rejets de Substances Dangereuses dans les Eaux. <http://rsde.ineris.fr>

<http://aida.ineris.fr>

Les grands principes de la réglementation, la production de boues d'épuration en Ile de France et leur destination, la problématique de l'épandage des boues d'épuration.

http://www.ordif.com/indicateurs/boues_STEP.htm

Environnement Canada, Evaluation des substances existantes.

<http://www.ec.gc.ca/substances/ese/fre/pesip/final/public/npe.cfm>

Le Guide canadien d'évaluation des incidences sur la santé, Annexe I.

http://www.hc-sc.gc.ca/hecs-sesc/sehm/publications/guide_canadien

<http://ec.europa.eu/environment/waste/sludge/index.htm>