

Diffusion de HAP et PCB par épandage de boues urbaines et dépôts atmosphériques sur le bassin de la Seine

Antoine Roy de Lachaise¹, Sylvain Théry², Martine Blanchard¹, Marie-Jeanne Teil¹, Donatienne Ollivon¹, Brigitte Garban¹, Marc Chevreuil¹.

¹Ecole Pratique des Hautes Etudes / UMR Sisyphe 7619, 4 place Jussieu, Tour 56-3^{ème} étage, BC 105, 75252 Paris cedex 05. e mail : antoine.royde_lachaise@ccr.jussieu.fr

²UMR Sisyphe 7619, 4 place Jussieu, Tour 56, 3^{ème} étage, BC 105, 75252 Paris cedex 05

1. Introduction.....	1
2. Méthodologie.....	2
3. Résultats.....	3
3.1. Répartition et qualité des apports par épandage et par les dépôts atmosphériques.....	3
3.2. Evaluations des flux de contaminants à l'échelle des bassins et des parcelles d'épandage.....	4
4. Conclusion.....	5
5. Bibliographie.....	5

1. Introduction

L'épuration des eaux usées des agglomérations urbaines qui élimine une grande partie des contaminants organiques provenant des activités domestiques, urbaines et industrielles, produit des quantités importantes de boues résiduaires. Ainsi, en France, 850 000 tonnes de boues sèches sont produites à raison de 18 à 20 kg matière sèche/habitant/an et 60 % de ce tonnage sont valorisés par épandage agricole. Cette production pourrait atteindre 1 300 000 tonnes en 2005 (ADEME, 2001).

A l'heure actuelle, la qualité des boues destinées aux sols agricoles est réglementée par l'Arrêté du 8 janvier 1998 qui limite les teneurs en micropolluants organiques, notamment les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et les polychlorobiphényles (PCB). Les boues d'épandage du SIAAP répondent à un label de qualité et de traçabilité et ainsi, les boues d'Achères ont obtenu la certification ISO 9003 en septembre 1999. Par ailleurs, au niveau européen, un projet de modification de la Directive 86-278/CEE du 12 juin 1986 est en cours d'élaboration.

Les HAP sont des contaminants d'origine naturelle ou anthropique issus de combustions incomplètes qui proviennent notamment, des transports routiers et du chauffage urbain (les émissions en France ont été estimées à 250 tonnes pour l'année 2000 – CITEPA, 2004). La norme qualitative des boues prend en compte 3 HAP dont le fluoranthène, le benzo-a-pyrène et le benzo-b-fluoranthène, avec des teneurs limites de 5, 2,5 et 2 mg/kg de matière sèche (MS), respectivement. Les PCB sont des contaminants d'origine industrielle, utilisés dans les fluides diélectriques de transformateurs et de condensateurs. Malgré leur interdiction d'utilisation dispersive, depuis 1976 et dans les nouveaux équipements clos, depuis 1986, ils sont omniprésents dans l'environnement du fait de leur rémanence élevée. La teneur réglementaire maximale admise de PCB dans les boues est de 0,8 mg/kg de MS pour la somme de sept parmi les 209 composés (28, 52, 101, 118, 138, 153, 180). L'objectif de cette étude est d'évaluer l'impact des boues urbaines sur la contamination des sols par les HAP et les PCB, et de le comparer à celui des dépôts atmosphériques totaux sur le bassin versant de la Seine.

2. Méthodologie

Les informations fournies par le SIAAP et la SEDE-Environnement pour deux périodes d'étude (d'octobre 1999 à octobre 2000 et de mars 2001 à février 2002) concernent 8 stations d'épuration (STEP) : Achères, Valenton, Reims, Evry, Meaux, Saint Thibault-des-Vignes, Versailles et Chartres. Ces stations épandent leurs boues sur différents sous-bassins versants de la Seine : Seine 1, Seine 2, Seine 3, Seine 4, Estuaire, Eure, Oise, Marne et Yonne (**Figure 1**).

A partir des données fournies : quantité de boues épandue sur chaque parcelle et teneur en contaminants, les flux de micropolluants, exprimés en $\text{g}/\text{km}^2/\text{an}$, ont été calculés et les résultats, restitués à l'échelle des différents sous-bassins (Roy de Lachaise, 2004). Les données concernant les dépôts atmosphériques, proviennent d'études antérieures (Ollivon *et al.*, 2001 ; Garban *et al.*, 2002 ; Teil *et al.*, 2004). Les conditions pluviométriques pour les deux périodes d'étude 1999-2000 et 2001-2002, de 952 et 932 mm, respectivement, correspondent à des pluviosités élevées, supérieures d'environ 25 % à la moyenne annuelle de 1970 à 2002.

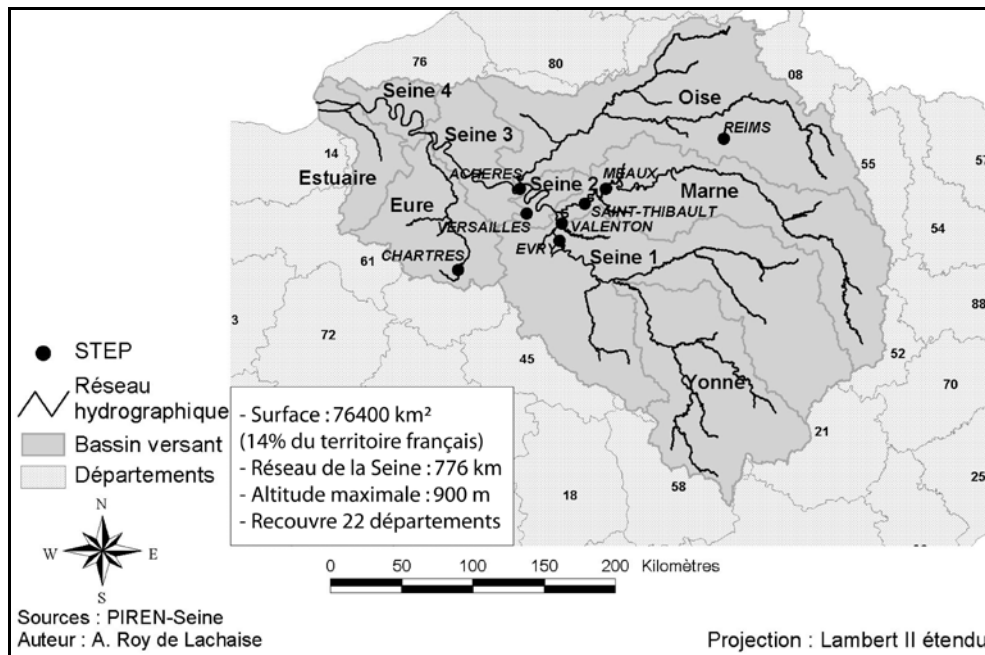


Figure 1: Localisation des STEP étudiées sur le bassin versant de la Seine.

3. Résultats

3.1. Répartition des apports par épandage et par les dépôts atmosphériques

Par spatialisation du parcellaire d'épandage des boues, nous avons observé que la logique de répartition des épandages suivait la limite des communes et non celles des départements ou des sous-bassins. Cette répartition, organisée en deux groupes situés à l'est et à l'ouest de l'agglomération parisienne, dépend de l'acceptation par l'exploitant cultivant dans les limites d'une même commune et dont les activités agricoles sont généralement des cultures céréalières ou industrielles.

De 1998 à 2002, les variations inter-annuelles des apports de boues par sous-bassin, se sont situées dans des rapports de 2 à 5. Les apports de boues par épandage, en tonnes par km² et par sous-bassin, ont été plus importants sur l'Eure et Seine 3, en regard de Seine 4, Estuaire et Yonne, où ils ont été négligeables (**Figure 2**). La pratique des épandages est en effet, une activité assujettie d'une part, aux dispositions des Arrêtés municipaux et préfectoraux et d'autre part, à l'acceptation des exploitants

agricoles soumis aux exigences des coopératives. Ainsi, seulement 2 % de la Surface Agricole Utile (S.A.U.) sont exploités pour ce mode de valorisation des boues urbaines.

Les stations du SIAAP produisent environ 20 % des boues urbaines au niveau national, avec 94 000 t recyclées en agriculture (SIAAP, 2003). L'échantillonnage des données concernant le SIAAP et 6 autres syndicats qui recyclent des boues en fertilisation sur le bassin versant de la Seine, a été assimilé à la totalité des boues urbaines épandues sur le bassin de la Seine. Cependant, dans cette première évaluation des deux modes d'apport de contaminants, il n'a pas été tenu compte des apports de polluants aux sols agricoles par d'autres secteurs de l'activité économique tels que l'élevage, ainsi que les industries agro-alimentaires, textiles, chimiques et papetières. Pour cette dernière, les deux tiers (850 000 t) de la production nationale annuelle de boues brutes représentent un tonnage équivalent à celui de la matière sèche des boues urbaines.

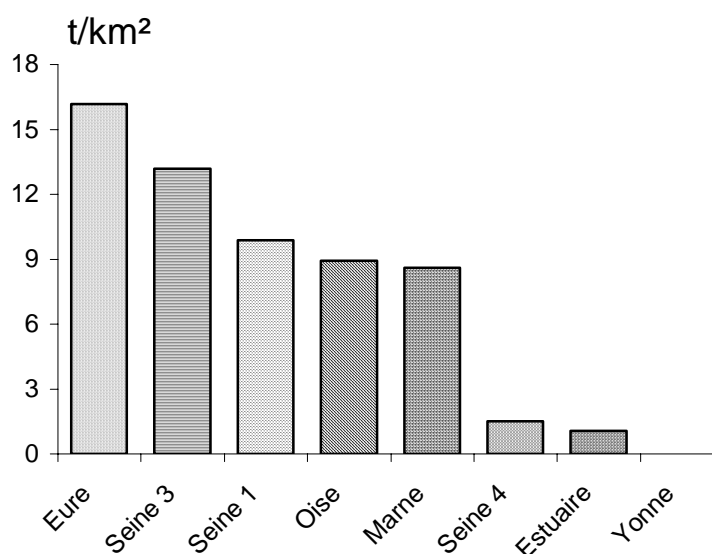


Figure 2: Apports des épandages de boues par sous-bassins de la Seine de 1998 à 2002.

Les études antérieures précitées (Ollivon *et al.*, 2001 ; Garban *et al.*, 2002 ; Teil *et al.*, 2004) ont montré que dans les dépôts atmosphériques totaux, les flux (en $\mu\text{g}/\text{m}^2$) de HAP étaient essentiellement contrôlés par la densité de population tandis que les flux (en $\mu\text{g}/\text{m}^2$) de PCB étaient surtout sous la dépendance de la pluviométrie, pour les deux périodes : octobre 1999 - octobre 2000 et mars 2001 - février 2002 (Teil *et al.*, 2000). La concentration de ces derniers dans les dépôts totaux (**Figure 3**) est en effet moins bien corrélée à la densité de population ($r : 0,88$), que celle des HAP ($r : 0,98$).

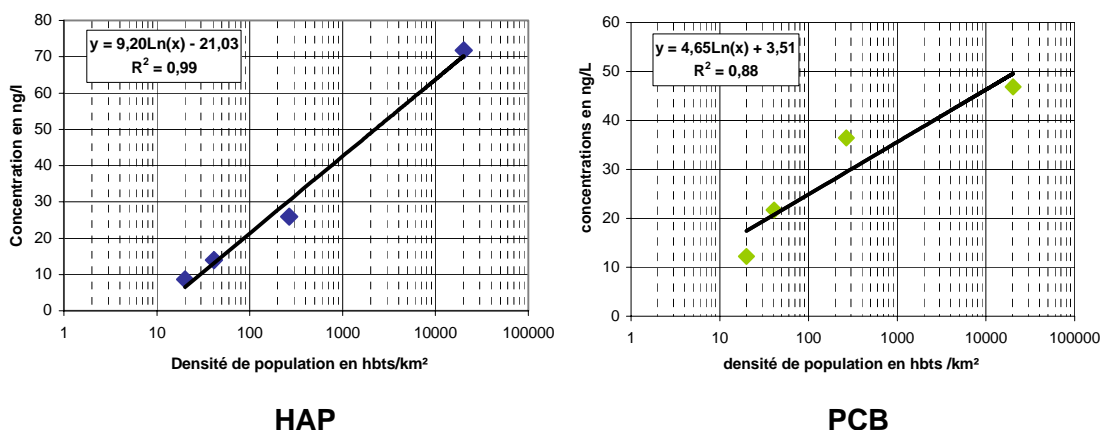


Figure 3: *Corrélation entre la concentration moyenne annuelle de Σ 3 HAP ou de Σ 7 PCB et la densité de population de Pleumeur-Bodou, de Paris, de Coulommiers et d'Eclaron pour la période 1999-2000.*

3.2. Evaluations des flux de contaminants à l'échelle des bassins et des parcelles d'épandage

Les charges polluantes maximales en HAP et PCB par épandage des boues, pour les deux périodes, ont été apportés sur les sous-bassins de l'Oise, à l'est de l'agglomération parisienne et de l'Eure, à l'ouest de l'agglomération parisienne (**Tableau 1**).

A l'échelle des sous-bassins versants de la Seine, les charges polluantes par les épandages de boues ont été moins importantes que celles provenant des dépôts atmosphériques totaux quelle que soit la période : 8 et 5 fois pour les HAP, 50 et 13 fois pour les PCB (**Tableau 1**). De plus, les charges polluantes par les deux modes d'apport ont présenté une nette stabilité entre les différents bassins, au cours des deux périodes.

Tableau 1 : *Charges polluantes annuelles des apports par épandage et par les dépôts atmosphériques suivant les bassins en g/km² de bassin.*

Période	Contaminant	Apport	Seine 1 (amont Marne)		
			Oise	Eure	
1999-2000	HAP	Boues	3	5	8
		Atmosphère	23	25	24
		Total	26	28	32
	PCB	Boues	0,5	0,5	2
		Atmosphère	25	25	24
		Total	26	26	26
2001-2003	HAP	Boues	3	8	5
		Atmosphère	15	15	14
		Total	18	23	19
	PCB	Boues	0,5	0,5	1
		Atmosphère	6,5	6,5	6
		Total	7	7	7

Au contraire, à l'échelle des surfaces de parcelles épandues, les charges polluantes par les dépôts atmosphériques totaux bien que non négligeables, ont été inférieures à celles des boues, représentant 9 et 6 % de leur apport pour les HAP et 68 à 13 %, pour les PCB. Alors que les charges polluantes par les apports atmosphériques ont été relativement stables pour les deux types de contaminants suivant les bassins, elles ont différé jusqu'à un facteur 4 pour les PCB entre les deux années d'étude. Pour 1999-2000 et 2001-2002, les charges polluantes par les épandages de boues ont varié d'environ de 50 à 70% pour les HAP et de 10 à 25% seulement pour les PCB, respectivement

(**Tableau 2**). Cette observation souligne l'importance relative des deux types d'apports selon les échelles, de temps ou d'entité considérées : bassin versant ou surface d'épandage.

Tableau 2: Charges polluantes des apports par épandage et par les dépôts atmosphériques en g/km^2 de parcelles épandues.

Bassin	Apport	1999-2000		2001-2002		Estimation sur 10ans	
		HAP	PCB	HAP	PCB	HAP	PCB
Seine 1	Boues	2510	367	2627	500	2510-2627	367-500
	Atmosphère	23	25	15	6.5	150-230	65-250
	Total	2533	392	2642	506	2660-2867	432-750
Oise	Boues	4372	485	5368	559	4372-5368	485-559
	Atmosphère	23	25	15	6.5	150-230	65-250
	Total	4394	510	5383	565	4522-5598	550-809
Eure	Boues	1960	434	1639	362	1639-1960	362-434
	Atmosphère	14	24	14	5,6	140	56-240
	Total	1984	458	1653	368	1509-2100	418-674

Sur la base d'un seul épandage par parcelle en 10 ans, nous avons comparé les charges polluantes totales (épandage de boues et dépôts atmosphériques) aux limites réglementaires sur 10 ans de l'Arrêté du 08/01/1998. Concernant les estimations de flux décennaux pour les deux périodes d'étude sur l'ensemble du bassin de la Seine, les apports de HAP, ont été inférieurs d'environ 80%, au seuil réglementaire défini en somme 3 des HAP : $14500 g/km^2$ et les apports de PCB, inférieurs d'environ 50% seulement, au seuil défini en somme de 7 PCB: $1200 g/km^2$. Cependant, au regard des flux totaux en HAP et PCB sur les parcelles épandues du bassin versant de l'Oise la marge de sécurité y est relativement moins importante. Sur ce bassin, elle n'est plus que de l'ordre d'un facteur 3 pour les HAP et au mieux d'un facteur 2 pour les PCB.

4. Conclusion

Cette étude met en évidence des variations inter-annuelles des apports de boues par sous-bassin, situées dans des rapports de 2 à 5, sur l'ensemble du bassin versant de la Seine, de 1998 à 2002. La logique de répartition des épandages de boues a suivi les limites communales. Par ailleurs, les apports en HAP et PCB par les dépôts atmosphériques totaux, peuvent être respectivement évalués à partir, de la densité de population et de la pluviométrie.

A l'échelle du bassin versant de la Seine, les charges polluantes par les dépôts atmosphériques pour les deux types de polluants sont prédominantes. Cependant, l'apport de micropolluants par épandage d'autres déchets issus des activités d'élevage ou industrielles, comme les boues des industries papetières, n'étant pas ici pris en considération, il est vraisemblable que les charges en contaminants provenant respectivement de l'atmosphère et de l'ensemble des activités d'épandage soient du même ordre de grandeur. Cela concernerait notamment, l'apport de contaminants sur les bassins versants de l'Oise et de l'Eure en 2001-2002.

A l'échelle des surfaces épandues, les charges polluantes par épandage des boues, prévalent. En considérant les apports cumulés des deux voies d'apport, les charges polluantes restent bien inférieures aux seuils réglementaires, notamment pour les HAP.

Remerciements

Nous tenons à remercier toutes les personnes qui nous ont aidés à réaliser ce travail, les membres de l'UMR Sisyphé, les participants du programme *PIREN-Seine*, et en particulier, les personnels de la *SEDE-Environnement* et du *S.I.A.A.P.* et des syndicats d'assainissement qui ont contribué à la diffusion des données relatives à la qualité et à la gestion des boues urbaines.

5. Bibliographie

- Ministère de l'industrie et de la recherche, 1975. Arrêté du 26 juillet 1975. JO 26-07-1975. p 7600.
- Ministère de l'équipement, du logement, de l'aménagement du territoire et des transports, 1987. Décret du 2 février 1987. 87-59 : pp 1272-1274.
- Ministère de l'aménagement du territoire et de l'environnement, 1998. Arrêté du 8 janvier 1998. 97/1133 : pp 1563 –1571.
- ADEME, Ed. (2001). Les boues d'épuration municipales et leur utilisation en agriculture. Dossier documentaire. Paris: 59 p.
- CITEPA (2004). Site internet. Emissions dans l'air en France.
http://www.citepa.org/emissions/nationales/Pop/pop_hap.htm
- Garban B., Blanchoud H., Motelay-Masseï A., Chevreuil M. and Ollivon D. Atmospheric bulk deposition of PAHs onto France : trends from urban to remote sites, *Atmospheric Environment* (2002). **36**, 5395-5403.
- Garban B., Ollivon D., Teil M.-J. and Blanchard M. (2002). Activités humaines et transferts de polluants organiques persistants (POP). Programme PIREN-Seine. Rapport d'activité 2001. Paris: 34 p.
- Ollivon D., Garban B., Teil M.-J., Blanchard M. and Chevreuil M. (2001). Flux atmosphériques de polluants organiques persistants (POP) sur le bassin versant de la Seine - comparaison avec des sites éloignés (Bretagne et Vosges). Paris, Programme PIREN-Seine. Rapport d'activité 2000: 22 p.
- Roy de Lachaise A. (2004). Diffusion de micropolluants organiques sur le bassin de la Seine par épandage de boues urbaines : comparaison avec les apports atmosphériques. EPHE, Section des Sciences de la Vie et de la Terre, Paris. Mémoire de diplôme EPHE, 123 p.
- SIAAP, 2003. www.ordif.com/documentation/it_boues_AESN_SIAAP.pdf
- Teil M.-J., Blanchard M., Ollivon D., Garban B; et Chevreuil M. Origines et qualité des apports en polluants organiques persistant : Hydrocarbures aromatiques polycycliques et polychlorobiphényles, de temps sec et de temps de pluie à la station *Seine Aval*. Programme Piren Seine. Rapport d'activité 2000 : 12 p.