

épandages de boues d'épuration urbaines sur des terres agricoles : impacts sur la composition en éléments en traces des sols et des grains de blé tendre

**Denis Baize¹, Christian Courbe², Olivier Suc³, Christophe Schwartz⁴,
Martine Tercé⁵, Antonio Bispo⁶, Thibault Sterckman⁴,
Henri Ciesielski⁷**

¹ Unité de science du sol, 45166 Olivet cedex

² Chambre d'agriculture de Haute Vienne, 87065 Limoges cedex

³ SATEGE – Chambre d'agriculture de la Somme, 80096 Amiens cedex 3

⁴ ENSAIA – INPL / INRA, laboratoire Sols et environnement, 54505 Vandœuvre-lès-Nancy cedex

⁵ INRA Paris - Mission Environnement Société, 147 rue de l'Université, 75338 Paris cedex 07

⁶ ADEME – Gestion biologique des sols, 49004 Angers cedex 01

⁷ INRA, laboratoire d'Analyses des sols, 62000 Arras

Denis.Baize@orleans.inra.fr

Introduction et problématique

Les éléments traces métalliques (ETM – cadmium, chrome, cuivre, mercure, nickel, plomb, zinc, etc.) sont des constituants indésirables des boues d'épuration urbaines. Comme certains d'entre eux sont potentiellement toxiques et ne présentent aucun intérêt agronomique, leur présence génère une certaine inquiétude, parfaitement compréhensible lorsqu'il est question d'épandre ces déchets sur des sols destinés à produire des aliments pour l'Homme ou les animaux (CTP, 2000 ; Borraz, 2000 ; Tercé, 2001 ; Barbier et Lupton, 2003 ; Nicourt et Girault, 2003). On doit noter cependant que, sous le même vocable, on peut trouver des boues de compositions extrêmement diverses, selon qu'il s'agit de petites stations de bourgs ruraux ou de grosses stations d'une grande agglomération industrielle. D'où l'importance de bien connaître et de bien suivre la concentration en ETM dans les boues d'épuration produites.

Heureusement, les efforts déployés depuis 30 ans ont porté leurs fruits : les teneurs en ETM dans les boues ne cessent de diminuer au cours du temps (annexe 1 et figure 1). Ces efforts doivent être poursuivis sans relâche, de façon à réduire autant que possible les apports de métaux aux terrains agricoles.

Quel est le devenir des ETM lorsqu'ils sont épandus sur des sols agricoles, les formes des métaux (ainsi que leurs phases porteuses) pouvant changer considérablement

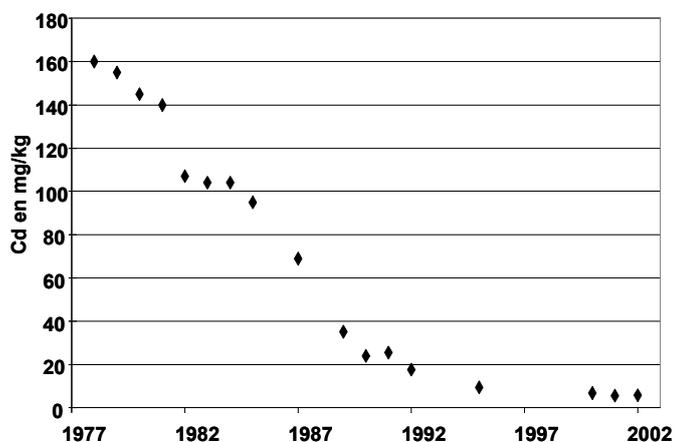


Figure 1. Concentrations moyennes annuelles en cadmium des boues d'Achères (Seine aval) en fonction du temps.

depuis les boues récemment épandues jusque dans le sol lui-même, 5 ou 10 années plus tard (Chaussod *et al.*, 1997) ? Certains constituants des sols récepteurs (comme les oxydes de fer, de manganèse, les minéraux argileux, les matières organiques) joueront-ils un rôle d'immobilisation complète des métaux ? Et, dans un tel cas, l'accumulation progressive indéfinie de ces métaux n'aura-t-elle pas d'effets nuisibles à court ou moyen terme (20-100 ans) ? Par exemple le transfert des métaux dans les plantes donc dans notre chaîne alimentaire (notion de phyto-disponibilité) ? Ou bien y aura-t-il, au contraire, migration rapide de ces métaux vers les nappes phréatiques (notion de mobilité) ou vers les eaux superficielles par ruissellement et entraînement de particules solides ?

Enfin, un effet de « bombe à retardement » est-il à redouter à moyen ou long terme, c'est-à-dire le relargage des métaux immobilisés dans un premier temps, sous l'influence d'un changement environnemental important, par exemple une acidification progressive de certains sols abandonnés par l'agriculture ?

Les teneurs « totales » en ETM dans les sols

Pour atteindre une teneur vraiment « totale », il faut employer un processus analytique capable d'extraire toutes les formes de l'élément chimique que l'on veut doser, y compris celles intégrées dans les réseaux cristallins des minéraux silicatés.

La teneur totale en un élément trace est une mesure d'un stock à un moment donné. La répétition dans le temps en un même point de ces mesures permet un suivi des teneurs et de constater d'éventuels accroissements. Les teneurs totales sont faciles à obtenir analytiquement et elles ne posent pas de problème d'interprétation, quel que soit le contexte pédologique de l'échantillon (pH, granulométrie, présence de carbonates, d'oxydes, etc.), à la différence des extractions partielles ou séquentielles. Mais elles ne permettent pas de distinguer les formes chimiques présentes (« spéciation »). Ce type d'analyse ne donne donc aucun renseignement sur la mobilité de l'élément dans le sol ni sur sa disponibilité ou sa toxicité vis-à-vis des organismes vivants.

Généralement, il n'y a pas de relation directe entre la teneur totale d'un ETM dans le sol et la quantité absorbée par une plante. Outre les formes chimiques sous lesquelles se trouve chaque métal, cette absorption est déterminée par certaines propriétés du sol (pH, abondance de constituants susceptibles de retenir fortement les métaux) et par les spécificités physiologiques et génétiques des végétaux. Une fois absorbés par les racines (ou, plus rarement, directement par les stomates des feuilles quand il s'agit de retombées atmosphériques), les ETM sont accumulés sur place ou transférés dans diverses parties de la plante (feuilles, tiges, grains) où ils sont stockés. Chaque espèce végétale a son propre comportement vis-à-vis des phénomènes d'absorption des ETM puis de transfert et stockage vers tel ou tel organe.

Dosage des ETM dans les organes végétaux et extractions « partielles »

Si l'on veut vraiment savoir si les épandages de boues d'épuration urbaines ont un impact sur la composition des organes végétaux que nous consommons (grains de blé ou de maïs, feuilles d'épinards, tubercules de pommes de terre, etc.), il faut désormais doser les ETM directement dans ces organes. Et il faut acquérir également une bonne connaissance des concentrations observées dans ces mêmes végétaux en agriculture « normale », c'est-à-dire en l'absence d'épandage de boues. C'est pour obtenir de telles références qu'ont été lancés les programmes AGREDE-QUASAR¹ (Baize *et al.*, 2003) et GESSOL²-La Châtre (Baize et Tomassone, 2003). Cf. tableaux en annexes 2 et 3. Tous ces travaux s'avèrent indispensables pour fournir des réponses fiables à nos diverses interrogations. Ces

¹ Programme INRA Agriculture et épandage de déchets urbains et agro-industriels. Qualité des sols et des récoltes.

² Programme du ministère en charge de l'Environnement Fonctions environnementales des sols et gestion du patrimoine sol.

études sur la composition des produits agricoles doivent prendre en compte non seulement l'espèce végétale (blé dur, maïs, betterave) et la variété, mais aussi les pratiques culturales antérieures, sans oublier les types de sols, si diversifiés dans notre pays.

La méthode la plus simple pour approcher la spéciation des métaux traces des sols repose sur l'utilisation de réactifs chimiques qui extraient une part plus ou moins importante des métaux présents dans un échantillon de sol séché à l'air et passé à 2 mm. Cette extraction est suivie de la mesure dans la solution de la concentration des métaux extraits. Dans le cas des extractions « partielles » (dites également « sélectives »), on utilise un seul réactif chimique et la spéciation recherchée est alors essentiellement fonctionnelle. Par le choix judicieux du réactif employé et des conditions opératoires, on s'efforce de n'extraire que les formes des métaux traces qui nous intéressent : formes « mobiles » ou formes phytodisponibles.

Mais cette approche de la phytodisponibilité par extractions partielles se heurte à des objections de principe. En effet, il est bien présomptueux de vouloir simuler, par une réaction chimique instantanée « in vitro », en faisant réagir un réactif chimique sur un échantillon de sol tamisé et séché, l'absorption, c'est-à-dire une réaction biochimique qui intervient à l'interface entre la solution du sol et les racines d'une population de plantes (cultivées ou non) au cours d'une période de plusieurs mois (développement de la culture). Il existe effectivement de nombreuses méthodes dont les protocoles (et donc les résultats) ne sont pas valablement comparables. Aucune ne semble universelle c'est-à-dire valable pour tous les sols, tous les éléments et toutes les plantes.

Un certain nombre de publications françaises ont déjà été consacrées aux impacts des épandages de boues d'épuration sur la composition des sols et des végétaux cultivés (notamment Chaussod *et al.*, 1997 ; Tercé, 2001). Mais, à cette époque, de nombreux essais n'avaient pas encore fourni d'informations utilisables. Dans cet article, nous allons présenter les résultats de plusieurs expérimentations, dont certains assez récents, en nous focalisant sur le blé tendre. Ils proviennent d'un certain nombre d'études menées en France par divers instituts de recherche et/ou plusieurs chambres d'agriculture. Leur objectif commun était d'évaluer l'impact d'épandages de boues d'épuration urbaines réalisés sous différentes conditions de composition et de tonnages :

- sur les teneurs totales en métaux mesurées sur échantillons de sols ;
- sur les quantités plus facilement phytodisponibles estimées par des extractions chimiques partielles ;
- et sur la composition en métaux des grains de céréales (maïs, blé – ce dernier constituant un produit agricole majeur dans la chaîne alimentaire humaine et de première importance pour l'économie française).

Dans cet article, on se limitera le plus souvent au cadmium (Cd) car c'est, parmi les ETM les plus toxiques, le métal le plus mobile et le plus phytodisponible. Cet élément est, avec le mercure et le plomb, le plus tributaire des activités humaines agricoles et industrielles. Sauf anomalies désormais bien connues et localisées (Baize *et al.*, 1999), ses teneurs naturelles sont généralement très faibles dans les sols (de l'ordre de 0,10 à 0,15 mg/kg dans les horizons de surface) et les apports anthropiques de toutes origines ont souvent fait tripler ou quadrupler ces teneurs.

1. Épandages excessifs de boues chargées en ETM (années 1970 et 1980)

Boues d'Achères (Seine aval) dans le Vexin

Sous le prétexte qu'elles constituaient une source intéressante de matières fertilisantes, des boues d'épuration très chargées en ETM ont été épandues sur des terres agricoles proches de cette grande station, à une époque où n'existaient ni surveillance ni réglementation (Bernardon, 1993 ; Gaultier *et al.*, 2003). Les tonnages apportés ont été parfois considérables. 22 parcelles non expérimentales du

Vexin ont été étudiées par Bernardon (1993) qui a calculé que, au cours des années 1975 à 1986, 1 à 4 épandages de boues avaient représenté des flux entrants de 0,22 à 4,3 kg de Cd/ha – de 6,5 à 40 kg de Pb/ha – de 28 à 189 kg de Zn/ha et de 8 à 61 kg de Cu/ha.

De tels apports ont eu un impact très net sur les teneurs totales en ETM des sols récepteurs (figure 2) et notamment sur les sols limoneux (Néoluvisols de loess – Baize, 1997) (figure 3). Sur ce diagramme on voit que 3 horizons de surface de sols ayant reçu de forts épandages de boues présentent des teneurs en cadmium beaucoup plus élevées que les teneurs agricoles habituelles observées pour cette série de sol (0,20 à 0,40 mg/kg). En revanche, les rares études portant sur la qualité des grains de blé n'ont pas montré de différences significatives (Bauvois *et al.*, 1985 ; Tercé *et al.*, 2002). Bauvois *et al.* ont analysé 23 échantillons de grains de blé récoltés en 1983 et 1984 (dont 2 provenant de parcelles témoins sans boues). Quelques résultats sont présentés sur la figure 4. On notera qu'il n'y a aucun lien entre les deux variables cadmium et zinc et que tous les dosages de plomb dans les grains de blés excédaient largement le seuil réglementaire européen actuel de 0,23 mg/kg de matière sèche (MS), y compris les deux parcelles témoins (aberration analytique ou réalité ?).

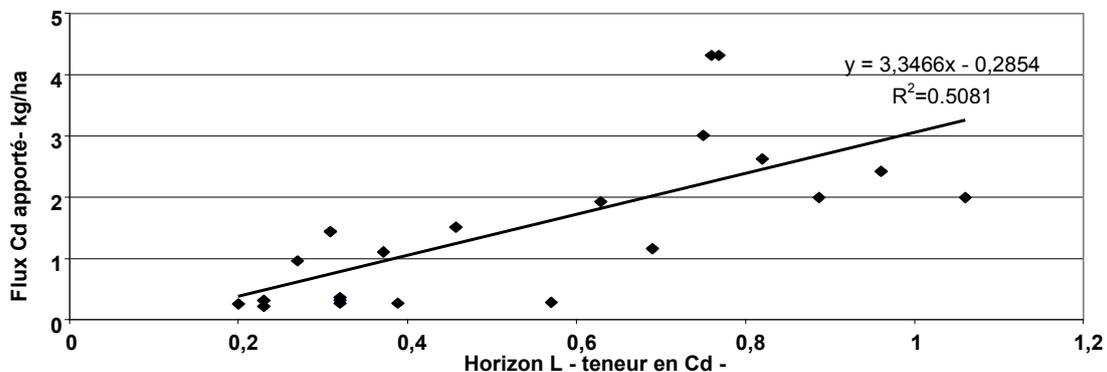


Figure 2. Sols du Vexin. Flux d'apports de cadmium (estimations) vs teneurs en cadmium mesurés dans les sols (horizons labourés) après apports de boues d'Achères (Bernardon, 1993).

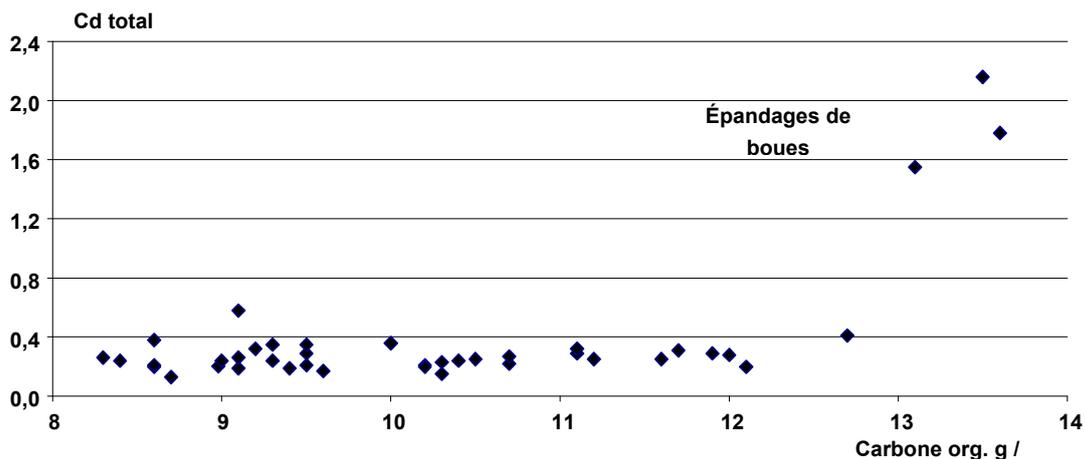


Figure 3. Luvisols issus de loess du Vexin. 39 horizons labourés. Il n'y a pas de relation entre carbone organique et teneurs en cadmium total mais les 3 sites ayant reçu des boues dans les années 1970 montrent de nettes contaminations en cadmium ainsi qu'un enrichissement en carbone.

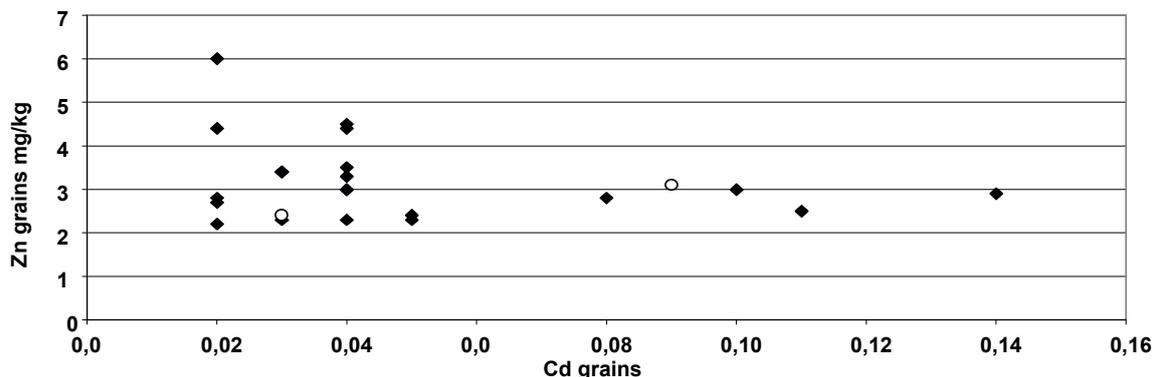


Figure 4. Vingt-et-une parcelles du Vexin ayant reçu des boues d'Achères dans les années 1970 et deux parcelles « témoins » sans boues. Relation entre teneur en cadmium et teneurs en zinc dans les grains de blés (Bauvois *et al.*, 1985).

L'essai de Bézu-le-Guéry

Un autre exemple nous est fourni par une expérimentation menée par la chambre d'agriculture de l'Aisne au cours de la décennie 1970 avec des boues d'Achères, sur des sols limoneux très hydromorphes (Luvisols Dégradés issus de limons anciens) à Bézu-le-Guéry en Haute-Brie (Bauvois *et al.*, 1985 ; Ducaroir, 1993). Au total, 208 t/ha de boues (soit 118 t/ha MS) ont été apportées en deux épandages « à double dose » (1974 et 1977). Si on admet une teneur en cadmium des boues de cette époque de 160 mg/kg de Cd MS (*cf.* annexe 1), les flux de cadmium ainsi épandus peuvent être estimés à 18,9 kg/ha (ce qui correspondrait à une augmentation en concentration d'environ +4,8 mg/kg de l'horizon de surface labouré). De telles conditions expérimentales ne pouvaient pas ne pas avoir un impact très visible sur les teneurs totales en métaux de l'horizon de surface (tableau I).

Tableau I. Essai de Bézu-le-Guéry. Teneurs totales en ETM des horizons de surface. Mesures en 1983. (Bauvois *et al.*, 1985)

	4 placettes avec boues (118 t/ha MS)		4 témoins sans boues	
	mini	maxi	mini	maxi
Cd	2,47	3,38	0,09	0,21
Cr	56,6	67,7	27,2	37,6
Cu	42,0	52,5	7,0	9,2
Hg	0,29	0,35	0,04	0,06
Ni	16,0	20,4	11,5	15,1
Pb	43,9	48,5	18,8	23,6
Zn	143	169	33	46

En 1993, l'horizon de surface du sol montrait toujours une contamination importante en cadmium, zinc, cuivre, plomb et chrome (Ducaroir, 1993). Cette contamination peut être également mise en évidence par une approche dite « typologique ». Il existe, en effet, pour tous les horizons (surface et profondeur) de cette série de sols, aussi bien sous agriculture que sous forêts, une excellente relation entre teneurs totales en zinc et en fer (Baize, 1997). Cette relation est rompue pour l'horizon de surface du site expérimental de Bézu, où l'on dose 162 mg de zinc par kg au lieu des 40 mg/kg que la teneur en fer laissait prévoir (figure 5).

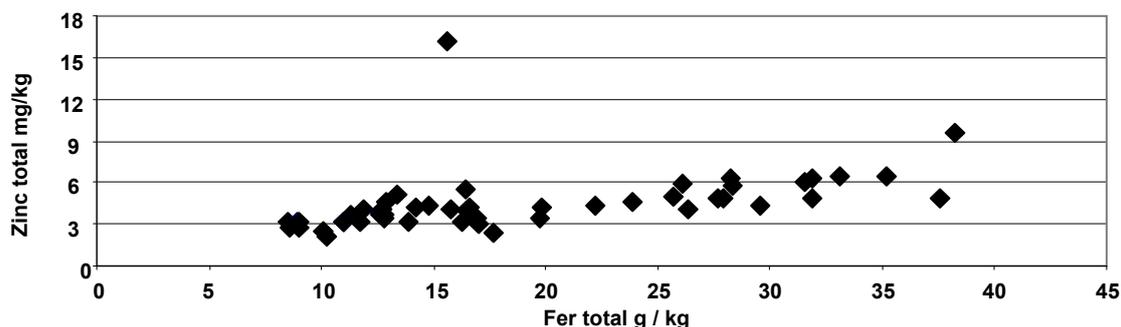


Figure 5. Luvisols Dégradés issus de limons anciens du sud-est du Bassin parisien (tous horizons – agriculture et forêts). Relation entre teneurs totales en zinc et en fer. L'horizon de surface de la parcelle expérimentale de Bézu est notablement contaminé en zinc.

Sur ce site, il n'y a pas eu d'analyses de blé mais seulement d'escourgeon (Bauvois *et al.*, 1985). Sur les grains récoltés en 1983, les résultats ci-dessous ont été obtenus (4 répétitions avec boues versus 4 témoins sans boues) :

moyenne Cd	avec boues = 0,79	témoins = 0,33 mg/kg
moyenne Pb	avec boues = 2,30	témoins = 1,56 mg/kg

En 1984 ont été récoltées des betteraves sucrières. Sur les racines ont été obtenus les résultats suivants :

moyenne Cd	avec boues = 0,43	témoins = 0,09 mg/kg
moyenne Pb	avec boues = 1,78	témoins = 0,87 mg/kg

Sur cet essai de Bézu-le-Guéry, suite à des épandages expérimentaux correspondant à des flux démesurés, on a pu noter un impact très important sur la composition en ETM des sols, ainsi qu'un effet très sensible sur la composition des produits végétaux récoltés 6 et 7 années après le dernier épandage.

Premiers essais au domaine expérimental de La Bouzule (Meurthe-et-Moselle)

Le dispositif a été mis en place en 1974 sur des parcelles de 10 m² (Morel et Guckert, 1984). Des boues de la ville de Nancy (teneur moyenne en cadmium 27 g/kg) ont été épandues en 1974-1975 et 1979 à des doses comprises au total entre 30 et 340 t/ha MS, soit des flux cumulés de cadmium variant de 0,81 à 9,18 kg/ha. Le sol est limono-argileux en surface, sur 40 cm environ, puis argileux et peu perméable en profondeur.

L'application des boues s'est marquée en 1981 par un accroissement significatif des teneurs totales de l'horizon labouré en zinc, cuivre, cadmium et plomb. Mais on ne retrouve, par analyse de cet horizon de surface, que la moitié des quantités apportées. Les fractions d'ETM présumées « assimilables » ont été suivies par des extractions partielles au DTPA³ sur échantillons de sols, réalisées à six dates entre mars 1979 et octobre 1981. Il a été constaté que la quantité de cadmium extraite au DTPA est liée linéairement à la dose appliquée, mais également qu'on observait une diminution régulière au cours du temps, ce qui serait l'indice d'une évolution des métaux vers des formes de moins en moins mobilisables (*ageing*).

³ Diéthylène triamine pentaacétique.

Les essais du domaine de Couhins (INRA Bordeaux)

Ce dispositif expérimental très célèbre a été mis en place en 1974. Il a donné lieu à de nombreuses publications dont les principales sont : Juste et Solda, 1977 ; Legret *et al.*, 1988 ; Gomez *et al.*, 1992 ; Juste et Mench, 1992).

Les parcelles ne faisaient que 6 m sur 3 m et il y avait 4 répétitions pour chaque modalité. L'objectif initial était de comparer les traitements suivants : i) témoins ne recevant qu'une fumure minérale ; ii) fumiers ; iii) boues de la station d'épuration d'Ambarès et iv) boues de la station d'épuration « Louis Fargue » (Bordeaux).

Les boues d'Ambarès (petite ville de 9000 habitants) ont été choisies comme représentant des boues urbaines « ordinaires ». Elles contenaient à l'époque 60 mg de Cd/kg et ont été épandues à raison de 10 et 100 t/ha MS tous les 2 ans.

Les boues de Louis Fargue ont été choisies car elles étaient extraordinairement chargées en cadmium et nickel suite à la présence d'une usine de piles et accumulateurs en amont de la station d'épuration. On avait affaire là plus à des boues industrielles qu'à de simples boues urbaines. Ces boues ont été épandues trois fois en 1974, 1976 et 1978, à raison de 100 t/ha MS. Selon Legret *et al.* (1988) leur teneur en cadmium a atteint une valeur maximale de 2672 mg de Cd/kg (moyenne 1830 mg Cd/kg).

Gomez *et al.* (1992) ont calculé les flux cumulés de cadmium ainsi appliqués :

Ambarès – 100 t/ha x 8 épandages	→ 27 kilogrammes de Cd/ha
Louis Fargue – 100 t/ha x 3 épandages	→ 641 kilogrammes de Cd/ha

Le sol de l'expérimentation s'avère très particulier : sur au moins un mètre d'épaisseur, il ne contient qu'environ 4 % d'argile et plus de 80 % de sables. Son pH initial était de 5,3. De tels sols sont appelés localement « graves sablo-caillouteuses ».

L'essai a été mené en monoculture de maïs. Des suivis ont été régulièrement effectués des propriétés du sol et de la composition des plantes à différents stades de végétation.

Dans ces conditions, un impact énorme a été observé sur l'horizon de surface des parcelles ayant reçu au total 300 t/ha de boues de Louis Fargue : en 1989 la concentration en cadmium de l'horizon de surface s'élevait à 94,9 mg/kg de sol sec ! Et encore, Gomez *et al.* (1992) ont calculé que la moitié du cadmium apporté par les épandages n'était pas retrouvée dans le premier mètre du sol ! Une partie de ce cadmium manquant a peut-être été évacuée latéralement, associée à des particules entraînées par ruissellement. Les parcelles sont en effet très petites et les parcelles témoins, en 1992, contenaient 1,3 mg/kg de cadmium, ce qui n'aurait pas dû être. Des pertes massives vers la profondeur ne sont pas non plus à exclure étant donné le caractère sableux, filtrant et acide du sol.

En 1976, dans les parcelles ayant reçu deux applications de boues de Louis Fargue (soit 200 t/ha MS), les grains de maïs à maturité contenaient 0,50 mg/kg de cadmium vs 0,17 dans les parcelles témoins et les parcelles « fumier » (Juste et Solda, 1977).

Cette expérimentation a consisté à réaliser des épandages massifs correspondant à des flux extravagants (jusqu'à 641 kg de Cd/ha) sur un sol « extrême », très sableux et plutôt acide, dans lequel aucun constituant n'était susceptible de fixer les ETM apportés. Il ne faut donc pas s'étonner de l'impact de tels épandages sur le sol de l'essai et sur les plantes qui y ont été cultivées ultérieurement (pas seulement sur les grains). C'est sur ce même terrain que l'équipe INRA de Bordeaux a multiplié dans les années 1990 et plus récemment des recherches sur les meilleurs procédés de réhabilitation de sols pollués par immobilisation *in situ* (Mench *et al.*, 2000a ; 2000b ; 2002).

Il est donc évident qu'une telle expérimentation constitue aujourd'hui un laboratoire passionnant pour les chercheurs mais ne représente en rien la réalité contemporaine des épandages de boues d'épuration sur les sols agricoles.

2. Épandages de boues urbaines chargées en cadmium en Limousin (avant la mise en place de la réglementation de 1998)

Le Limousin s'est spécialisé dans des élevages de qualité. Dans cette région, la rotation consiste le plus souvent en 4 ou 5 ans de prairies temporaires, suivis d'un maïs ensilage puis d'une céréale à paille. Les sols de cette région présentant très souvent des pH acides, on peut craindre un risque de transfert des ETM apportés par les boues du sol vers les végétaux consommés par les animaux et donc vers l'homme.

Dans le passé, les boues d'épuration de certaines collectivités du Limousin ont été très chargées en cadmium (ex. : 20,7 mg/kg en moyenne pour l'une d'entre elles, avant 1998). Ce cadmium provenait pour une part de rejets industriels liés à la fabrication et à la décoration des porcelaines et, pour une autre part, du milieu naturel (spécialement en milieu granitique). Depuis fin 1999, ces rejets industriels n'affectent plus la qualité des boues. La chambre d'agriculture de Haute-Vienne a cependant mené une étude de la qualité des sols et des récoltes (grains de blé – variété Trémie) selon le protocole du programme AGREDE-QUASAR (Courbe *et al.*, 2002). 36 sites ont été étudiés, correspondant à des sols développés dans trois roches métamorphiques (leptynites, migmatites et gneiss) et à des sols issus de diorites.

Quatre types de sites ont été distingués en fonction de l'importance des flux de cadmium apportés par les épandages dans les 10 dernières années :

- sites témoins sans épandages (n = 22) ;
- sites ayant reçu moins de 100 g/ha (n = 2 – code FF = flux faibles) ;
- sites ayant reçu environ 300 g/ha (n = 4 – diorites – code FM = flux moyens) ;
- sites ayant reçu entre 500 et 600 g/ha (n = 8 – code FE = flux extrêmes), soit beaucoup plus que les flux cumulés autorisés désormais par la nouvelle réglementation française de janvier 1998 (150 g/ha sur 10 ans depuis le 1^{er} janvier 2001). Ces parcelles ont probablement reçu trois fois plus de cadmium sur les 30 dernières années.

Dans ce contexte d'agriculture peu intensive, des teneurs totales en cadmium du sol supérieures à 0,40 mg/kg peuvent être suspectées de résulter de contaminations exogènes. Sur les 36 échantillons de sols analysés, 11 valeurs dépassent ce seuil de 0,40 mg/kg dont 3 sont comprises entre 1 et 2 mg/kg. 8 d'entre elles correspondent aux parcelles ayant reçu des flux extrêmes (FE) et deux autres aux sols issus de diorites ayant reçu des flux moyens (FM). En ce qui concerne le plomb, 10 teneurs totales excèdent 50 mg/kg dont 7 sites FE. Pour le zinc, deux valeurs se distinguent nettement du lot en culminant à plus de 200 mg/kg : il s'agit de deux sites FE.

Dans les grains de blé, 12 valeurs égalent ou excèdent 0,11 mg/kg MS, concentration maximale recommandée pour le cadmium dans les grains de céréales par le Conseil supérieur d'hygiène publique de France (CSHPF). Huit d'entre elles ont été mesurées dans les sites FE et 3 dans des sites FM mais cette abondance du cadmium dans les grains de blé n'est pas en relation avec le pH mesuré dans le sol. Deux concentrations de plomb seulement excèdent le seuil de quantification du laboratoire (0,20 mg/kg) tout en restant éloignées de la valeur maximale recommandée par le CSHPF (0,57 mg/kg MS), ces deux valeurs correspondent à des sites FE.

Des extractions partielles au DTPA ont été réalisées sur échantillons de sols. Les quantités de cadmium extraites rendent assez bien compte des teneurs en cadmium mesurées dans les grains

(figure 6 : $R^2 = 0,71$). Au-delà d'un seuil de 0,10 mg/kg extraits au DTPA, il y a une très forte probabilité pour que la concentration dans le grain de blé Trémie soit égale ou supérieure à la valeur recommandée du CSHPF (0,11 mg de Cd/kg MS). Un tel modèle prédictif devra être validé sur de nouveaux prélèvements.

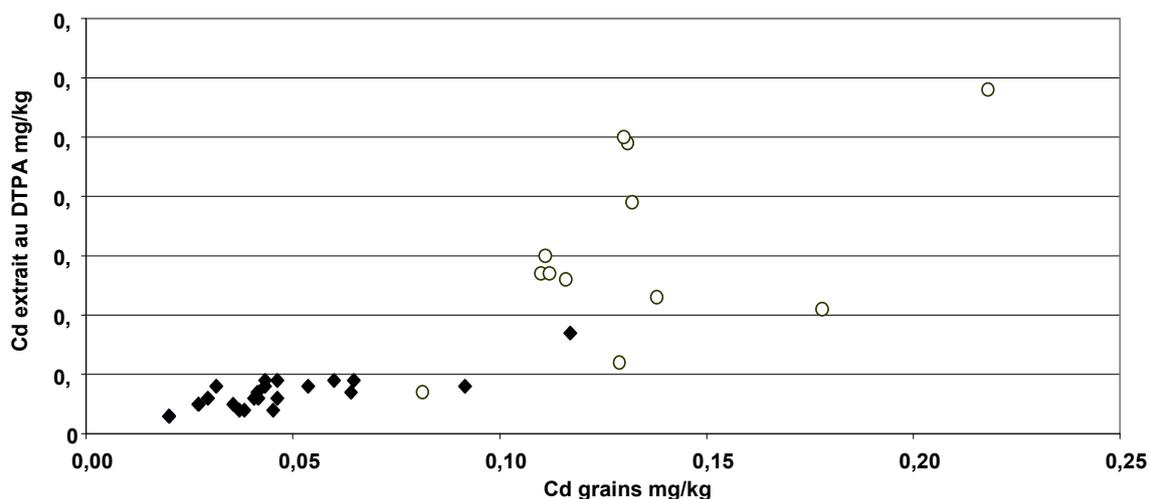


Figure 6. Sols du Limousin (36 horizons labourés). Relation entre cadmium extrait au DTPA sur échantillons de sols et cadmium dosé dans les grains de blé. Les sites FM et FE sont figurés par des ronds. (Courbe et al., 2002).

On notera que les 4 sites FM à sols issus de diorites présentent des teneurs en cadmium assez faibles dans les sols (0,22 à 0,47 mg/kg) mais des concentrations dans les grains tout aussi élevées que dans le cas des 8 sites FE « métamorphiques » (0,08 – 0,13 – 0,14 et 0,18 mg/kg). Ceci signifie que, malgré une quantité totale plus faible, le cadmium exogène des sites « diorites » reste phytodisponible pour le blé.

En conclusion de cette étude menée en Limousin, il apparaît que les épandages modérés de boues ayant apporté des flux de cadmium compatibles avec la nouvelle réglementation (sites FF) ne se marquent ni dans les analyses de sols ni dans les analyses de grains de blé. Au contraire, les apports les plus importants et continus de cadmium (sites FM diorites et sites FE) se marquent nettement dans les sols comme dans les blés. Le lecteur notera que ce cas très particulier appartient au passé. Il présente un intérêt scientifique mais ne remet nullement en cause les règles édictées par la réglementation française de janvier 1998, ni l'épandage raisonné de boues urbaines en agriculture.

IV. Épandages de boues conformes à la réglementation de 1998 sur des sols agricoles

Programme INRA AGREDE-QUASAR (Baize *et al.*, 2003)

Cette étude a été menée en deux temps, en collaboration avec plusieurs chambres d'agriculture. Nous avons travaillé d'abord sur des sols n'ayant pas reçu d'épandages de boues d'épuration ou autres déchets urbains. Nous nous sommes limités à une seule espèce (le blé tendre), et à deux variétés seulement, en raisonnant l'échantillonnage par « séries de sols ». La récolte des épis de blé à maturité

a été faite sur 1 m² et sur une douzaine de parcelles assez éloignées les unes des autres pour chaque série de sols. Les teneurs en ETM des grains ont été déterminées. En chaque site de prélèvement des grains, l'horizon de surface du sol a été caractérisé par des analyses approfondies (caractérisation agropédologique, teneurs totales en ETM, extractions partielles des métaux par différents réactifs). Nous avons ainsi acquis des références pour des sols variés et sous agriculture « sans boues ». Cf. annexe 1.

Dans un deuxième temps, nous avons travaillé, selon le même protocole, sur des sites ayant reçu des épandages de boues, appartenant aux mêmes séries de sols. Au total, 163 sites ont été étudiés (dont 33 « avec boues »), appartenant à 11 séries de sols contrastées. Il s'agit de sols développés à partir d'une large gamme de roches sédimentaires (matériaux limoneux quaternaires, terrasses fluviales, sédiments marins parmi lesquels des craies et des calcaires jurassiques) et provenant de 9 départements de la moitié nord de la France.

Nous avons ainsi pu mettre en relation directe la composition des grains de blé et les caractéristiques analytiques du sol où a poussé chaque échantillon de grains de blé. Dans les rares autres études françaises (DGCCRF 1989 ; Barrier-Guillot *et al.*, 2003), les lots de grains analysés ont été sélectionnés par départements d'origine ou par « bassins de production » et on ne sait rien de la nature et des propriétés des sols où ils ont été cultivés.

Les quantités de boues épandues sur les parcelles étudiées dans le cadre de ce programme étaient tout à fait raisonnables et respectueuses de la réglementation. Les flux de cadmium peuvent être estimés entre 0,8 et 15 g pour un ou deux épandages.

Des extractions « partielles » par sels neutres ont été réalisées sur échantillons de sols, puis Cd, Cu, Pb et Zn extraits ont été dosés. Trois réactifs ont été utilisés et comparés : CaCl₂ 0,01 M – NaNO₃ 0,1 M – et NH₄NO₃ 1 M.

Les échantillons de sols « ayant reçu des boues » n'ont montré aucune particularité par rapport aux autres « sans boues ». Le pH s'avère le principal facteur pour expliquer les quantités de cadmium et zinc extraites : les plus grandes quantités de ces métaux ont été obtenues pour les pH les plus bas (< 6,5). Pour le cuivre, c'est l'inverse, les quantités maximales extraites ont été obtenues dans certains échantillons à pH basiques (> 8,0).

La grande majorité des sols ayant reçu des boues montrait des pH nettement basiques, supérieurs à 8,0. On a observé, pour ces échantillons, des résultats similaires à ceux de même pH n'ayant pas reçu de boues (Baize *et al.*, 2003).

Au cours de cette étude, il n'a donc jamais été possible de mettre en évidence un impact significatif des épandages de boues sur la composition des sols (extractions partielles) ni sur celle des grains de blé. Dans le cas des séries de sols à tendance naturelle à l'acidité (sols sableux quartzeux, Luvisols Dégradés), les teneurs en cadmium les plus élevées dans les grains correspondent aux sites dont les sols montrent les pH les plus bas, inférieurs à pH 6,5 (figure 7).

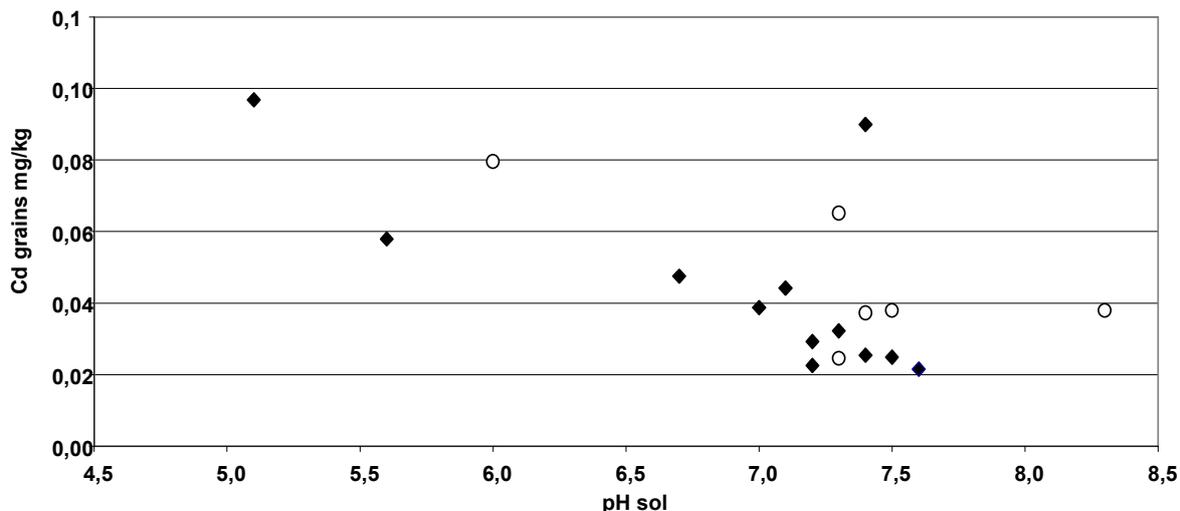


Figure 7. Programme Quasar - série E (Luvisols issus de limons de l'Indre et de l'Indre-et-Loire). Relation entre cadmium dosé dans les grains de blé et pH du sol. Les sites ayant reçu des boues sont figurés par des ronds.

Expérimentations sur le blé en Bourgogne et Franche-Comté (Deléan et Kockmann, 2003)

Certaines études ont été réalisées en serre (essais en pots sur la bio-accumulation des métaux – 3 boues x 3 plantes x 6 types de sols). D'autres ont été menées en plein champ sur 28 parcelles jugées représentatives des sols de ces deux régions.

L'objectif de ce réseau de parcelles de référence était de mesurer l'accumulation réelle d'ETM dans les grains de blé et de savoir si cette accumulation était majorée par l'apport de boues d'épuration. Le réseau de parcelles a été mis en place en deux temps :

- 15 parcelles n'ayant jamais reçu de boues ont fait l'objet d'un épandage avant blé sur la moitié de leur surface ; des mesures de teneurs en ETM dans les sols et dans les grains sont réalisées ensuite permettant de comparer des couples « avec » et « sans » boues (campagne 1999-2000) ;
- 13 autres parcelles ayant reçu un ou plusieurs épandages de boues dans les cinq années précédentes où a été étudié un éventuel effet à plus long terme (campagne 2000-2001).

Parmi les types de sols étudiés (dont les matériaux parentaux, le type pédologique et les granulométries étaient très variés), certains montrent des teneurs naturelles élevées en nickel, chrome, cadmium ou cuivre. Les flux de métaux apportés par les boues ont respecté la réglementation. Pour le cadmium, ils ont été estimés entre 0,6 et 21 g/ha selon les cas.

Le rapport final est formel : aucun lien n'a été mis en évidence entre la présence d'éléments traces métalliques dans les plantes et les épandages de boues, quelles que soient la quantité et la fréquence des apports (figure 8). Le risque de transfert est davantage lié au type de sol et notamment à son acidité.

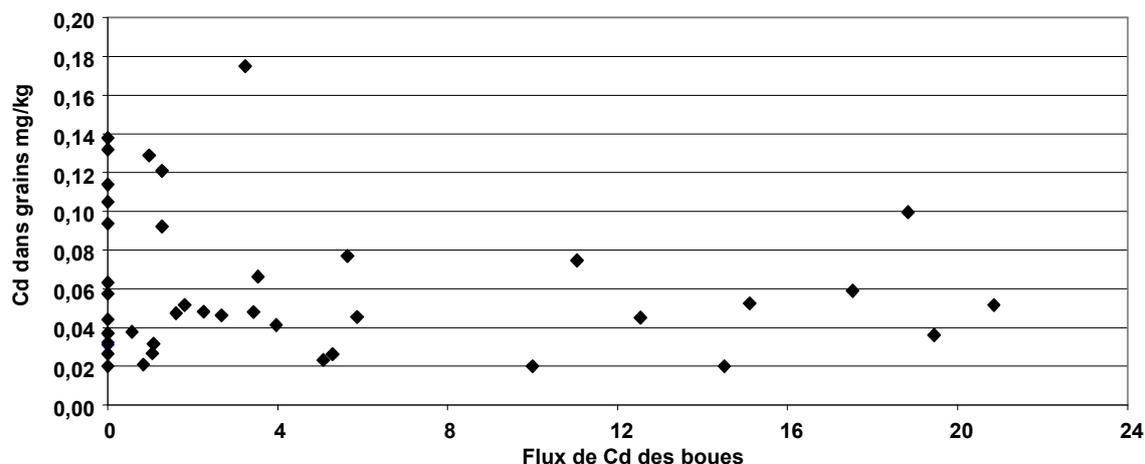


Figure 8. Essais en Bourgogne et Franche-Comté (Deléan et Kockmann, 2003). Relation entre les teneurs en cadmium dans les grains de blé et les flux de ce métal apportés par les épandages de boues.

Observatoire mis en place dans la Somme (Suc et Dehaine, 2004)

Cet observatoire, mis en place depuis 2000, a consisté les trois premières années en un réseau d'une quarantaine de parcelles agricoles. Il a été réduit ultérieurement à seulement une dizaine de parcelles pour des questions de coût et pour travailler sur une seule famille pédo-géologique (sols limoneux profonds des plateaux). Au départ, les pH de ces sols étaient compris entre 7,2 et 8,2 dans les horizons de surface.

Depuis 1997, les 2/3 des parcelles suivies ont reçu 2, 3 ou 4 épandages de boues urbaines, sélectionnées parce qu'un peu plus « riches » en ETM que celles d'autres stations. Les informations sur les apports de boues ne sont guère fiables avant 1998. Il est donc difficile de savoir si d'autres épandages ont eu lieu plus anciennement et quels ont pu être les flux de métaux correspondants. Les autres parcelles constituent des « témoins sans boues ».

Calculés sur 10 ans et pour 4 épandages de boues, ces épandages correspondent à des apports de 9 à 15 T de MS par hectare, ce qui correspond à des flux cumulés de cadmium compris entre 7 et 27 g/ha (calcul théorique).

Les analyses ont porté sur les teneurs totales en ETM des sols et sur la composition des récoltes successives (grains de blé et de maïs, betteraves et pommes de terre). Les prélèvements ont été réalisés selon le protocole QUASAR pour le blé, et selon les préconisations de la réglementation « boue » pour les sols pour les autres cultures.

Le graphique de la figure 9 est représentatif des résultats obtenus sur toutes les parcelles suivies et pour tous les ETM étudiés. Aucune relation n'apparaît entre la teneur des sols et la teneur des récoltes. La composition des sols et des grains de blé n'est pas différente si on compare les parcelles avec épandages et les témoins sans boues. Toutes les valeurs semblent s'échelonner de manière aléatoire au sein d'un intervalle de variation assez large qui peut résulter aussi bien de nuances agro-pédologiques que d'un effet lié aux différents cultivars. Les variations inter-annuelles (observées à partir de tests d'égalité des moyennes) sont également non significatives.

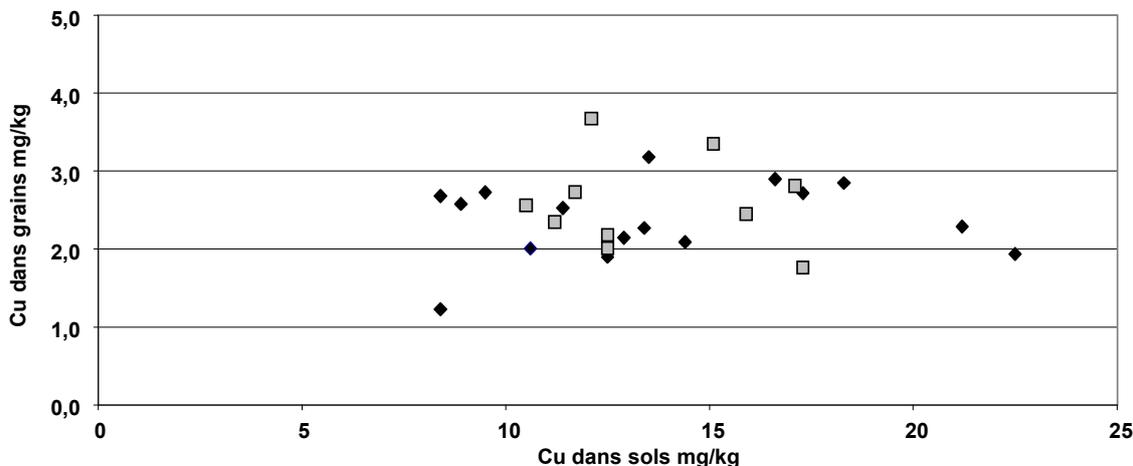


Figure 9. Essais dans la Somme sur Néoluvisols issus de loess (Suc et Dehaine, 2004). Relation entre cuivre dosé dans les grains de blé (récolte 2002) et cuivre dosé dans les sols (horizons de surface) après épandages. Les 10 sites témoins (sans boues) sont figurés par des carrés.

La figure 9 est très caractéristique de ce que l'on obtient dans la plupart des études menées actuellement en France : aucune différence significative n'apparaît entre les sites « avec boues » et les sites « sans boues » en ce qui concerne les teneurs totales en ETM ou la composition des grains.

Essais blé et betterave à Barneau et Bouy – (SEDE Environnement, 1999-2003)

Ces essais ont été menés par la SEDE en collaboration avec deux opérateurs majeurs de l'industrie agro-alimentaire et du négoce des céréales, avec le soutien de fonds publics : l'ADEME, l'Agence de l'Eau Seine-Normandie, le Syndicat interdépartemental de l'agglomération parisienne (SIAAP). Des protocoles identiques ont été suivis sur deux sites expérimentaux : à Barneau (commune de Soignolles-en-Brie, Seine-et-Marne) sur sol limoneux profond (pH surface = 7,3 avant épandages) et à Bouy (Marne) sur un sol hypercalcaire issu de craie de Champagne crayeuse.

L'expérimentation a porté sur le blé et la betterave sucrière. Des épandages de boues non chaulées de la station d'épuration Seine amont (Valenton, Val-de-Marne) ont été effectués en septembre 1997 et automne 1999. Ces boues contenaient environ 5,4 mg de Cd/kg MS. Les blés (variété Trémie) ont été récoltés en 1999 et 2001. Le dispositif comportait 12 placettes de 40 x 9 m constituant 4 répétitions de 3 traitements : (i) témoin (fertilisation en phosphore par du super 45 ; (ii) D1 = dose normale de boues (20 t/ha brutes, soit 6 t/ha MS) ; (iii) D3 = dose triple (60 t/ha de boues brutes). Les flux effectifs de cadmium apportés à chaque épandage ont pu être assez bien évalués : de 32 à 56 g/ha pour les traitements D1 et de 114 à 134 g/ha pour les traitements D3.

Pour chaque placette élémentaire, un échantillon de sol était constitué d'un composite de 10 prises avant épandages puis de 15 prises après épandages. Les prélèvements ont été opérés systématiquement par couches 0-30 / 30-60 et 60-90 cm.

Cet essai a été l'occasion de bien toucher du doigt les difficultés d'un tel suivi diachronique des teneurs en ETM dans les sols, en l'occurrence entre les mesures faites en septembre 1997 (« point zéro ») et après deux épandages en août 2001.

Nous avons vu que les flux d'apports en cadmium (*cf.* ci-dessus) étaient compris entre 32 et 134 g/ha pour chaque épandage (donc à multiplier par deux), ce qui correspond théoriquement à une augmentation en concentration de 0,016 à 0,068 mg/kg (calcul pour un horizon labouré de 30 cm

d'épaisseur et de densité apparente 1,3 - pesant 3900 t/ha). Ces faibles augmentations restent dans l'ordre de grandeur de l'incertitude analytique et de la variabilité spatiale acquise antérieurement par les pratiques agricoles.

De plus, à Barneau, le terrain expérimental n'était pas très homogène en ce qui concerne les teneurs en ETM initiales. Au moment de la mise en place de l'essai (1997), les teneurs totales en plomb des 12 placettes élémentaires variaient entre 32 et 89 mg/kg (tableau II).

Enfin, des incohérences ont été observées entre analyses des sols avant et après épandages pour chaque placette élémentaire (incohérences en grande partie gommées par le calcul des moyennes par traitement). Ainsi, les concentrations en cadmium et en plomb mesurées à Bouy et les teneurs en plomb mesurées à Barneau sont parfois inférieures en 2001 à celles mesurées en 1997. En outre, les fortes augmentations des teneurs en plomb obtenues à Barneau dans les placettes témoins entre 1997 et 2001 sont inexplicables puisque ces placettes n'ont pas reçu de boues (tableau II).

Tableau II. Concentrations en cadmium et en plomb mesurées dans les 12 placettes élémentaires de Barneau avant (1997) et après épandages de boues (2001).

Placette	Cadmium		Plomb	
	Avant (1997)	Après (2001)	Avant (1997)	Après (2001)
Témoin R1	0,279	0,300	88,6	47,9
Témoin R2	0,267	0,280	45,9	100,1
Témoin R3	0,269	0,280	39,7	65,5
Témoin R4	0,300	0,300	53,7	70,4
20 T / ha R1	0,359	0,320	32,0	38,7
20 T / ha R2	0,271	0,320	47,4	63,7
20 T / ha R3	0,305	0,360	43,4	83,1
20 T / ha R4	0,321	0,300	53,1	52,1
60 T / ha R1	0,277	0,340	36,1	43,4
60 T / ha R2	0,286	0,350	67,4	55,4
60 T / ha R3	0,319	0,370	52,1	120,7
60 T / ha R4	0,327	0,340	48,4	55,6

Il est possible que cela soit dû à la réalisation systématique des prélèvements sur une épaisseur constante de 30 cm, ce qui, du fait d'un état de compacité variable au cours du temps, ne correspond pas toujours à la véritable épaisseur de l'horizon de surface labouré.

Ainsi, en 2001, la tranche 0-30 cm pouvait correspondre à 28 cm d'horizon labouré + 2 cm d'horizon sous-jacent, beaucoup moins riche en cadmium, plomb et autres métaux, d'où des teneurs plus faibles qu'en 1997. À Bouy cela pourrait aussi expliquer pourquoi les teneurs moyennes en calcaire des sols des 3 traitements, mesurées en 2001, sont plus élevées de 10 % que celles mesurées en 1997 (par

exemple 76 % au lieu de 66 % pour les témoins). En prélevant sur 30 cm de profondeur en 2001 on aurait prélevé un horizon encore plus crayeux que l'horizon labouré.

Il apparaît donc qu'il faut respecter la limite inférieure de l'horizon labouré et non procéder par des incréments systématiques qui, souvent, ne correspondent pas à la réalité du terrain.

Les compositions moyennes des grains de blé obtenues pour les trois traitements (dans les deux sites et les deux années de récoltes) ne montrent pas de différence significative à Barneau 1999 (toutes valeurs Cd < 0,05) ni à Bouy (toutes valeurs Cd < 0,04), quelle que soit l'année et aussi bien après 2 épandages, y compris à dose triple (D3) – voir le tableau III. En revanche, on constate un impact significatif pour le zinc (tableau IV).

Tableau III. Teneurs moyennes en cadmium dans les grains de blé à Barneau et Bouy

Valeur maximale européenne (2001) = 0,23mg/kg MS ; CV = coefficient de variation.

	Barneau		Bouy	
	1999	2001	1999	2001
Témoin	0,049	0,041	0,023	0,034
D1	0,046	0,044	0,021	0,032
D3	0,048	0,075	0,016	0,028
CV %	10,9	54,2	15,2	9,0
stat	NS	NS	NS	NS

Tableau IV. Teneurs moyennes en zinc dans les grains de blé à Barneau et Bouy

CV = coefficient de variation.

	Barneau		Bouy	
	1999	2001	1999	2001
Témoin	22,9	23,1	17,5	20,2
D1	23,9	25,8	19,6	23,5
D3	25,1	30,6	21,2	27,7
CV %	7,4	8,1	7,1	5,4
stat	NS	HS	S	HS

Les essais de Poucharramet (Gavalda, 2001 ; Fourrié *et al.*, 2004)

Ils ont été menés à partir de 1997 sur les terrains du domaine expérimental de l'ENSA Toulouse à Poucharramet (Haute-Garonne), sur deux types de sols : i) sols de boubènes sur anciennes terrasses de la Garonne (essais maïs) ; ii) sols alluviaux argileux (essai succession blé/colza). L'objectif était de comparer les impacts de boues urbaines chaulées, de boues liquides, de boues biologiques de traitement de lisiers de porcs, et même de boues granulées à 90 % de MS (Gavalda, 2001), tous ces effluents étant apportés à des doses « raisonnées » (tableau V).

Tableau V. Composition des boues épandues à Poucharramet. Flux de cadmium correspondants.

	Nombre d'épandages	matière sèche des boues %	tonnage t/ha MS	Cd dans boues mg/kg MS	flux cumulé de Cd g/ha
Fourrié et al., 2004					
Boues urbaines chaulées	2 ou 3	23 & 30	5,3 & 8,5	1	17 à 19
Boues liquides	2 ou 3	3,8 & 3,9	1,2 & 1,4	1 et < 1	4,1 à 6,6
Boues de lisiers	2 ou 3	1,7 & 2,2	0,6 & 0,8	< 1	1,8 à 2,2
Gavalda, 2001					
Boues granulées	1 en 1997	90,5	11,1	1,57	17,4

L'impact des apports de boues sur les sols n'a pas pu être correctement évalué, tout particulièrement en ce qui concerne le cadmium sur les essais blé/colzas. En effet, les stocks calculés de cadmium dans l'horizon de surface (à partir de dosages à l'eau régale) en 2002 (donc après 2 épandages) ont été systématiquement beaucoup plus élevés (parfois plus du double) que les stocks évalués en 2000 et ce même pour les trois parcelles témoins (sans aucun épandage de boues) !

Ceci résulte-t-il d'erreurs d'analyses, ou de calculs, ou d'une variabilité passée inaperçue des teneurs initiales dès avant le début de l'expérimentation ? Mais on voit mal comment cela pourrait expliquer cette augmentation systématique. Une chose cependant apparaît : certaines parcelles n'étaient pas homogènes au départ. Les pH, les capacités d'échanges cationiques (CEC), les teneurs « pseudo-totales » en cadmium variaient en fonction de la distance à la rivière.

L'absence d'impact visible sur les grains de blé est illustré par le tableau VI ci-dessous (Fourrié *et al.*, 2004).

Tableau VI. Teneurs en cadmium et zinc dans les grains de blé (mg/kg de MS). Essai de Poucharramet

	Cd		Zn	
	2001	2002	2001	2002
Boues urbaines chaulées	0,074	0,060	23,9	20,1
Témoin 1	0,063	0,065	22,7	19,0
Boues liquides	0,074	0,070	22,8	19,5
Témoin 2	0,070	0,072	23,8	19,0

En ce qui concerne les autres plantes (maïs, colza), aucune différence significative n'a été observée en comparant la composition des grains récoltés sur les parcelles témoins et ceux récoltés sur les parcelles ayant reçu des boues sous différentes formes.

Essai à Mayenne (F. Bunel, non publié)

L'expérimentation a été menée sur une durée de cinq ans avec des boues de la ville de Mayenne (15 000 habitants) sur un sol dont l'horizon de surface était limono-sableux et faiblement acide (pH initial 6,2). Le dispositif comportait 9 parcelles élémentaires de 10 m x 3 m correspondant à 3 traitements et 3 répétitions. Blé tendre et maïs ensilage ont alterné.

Les 3 parcelles « B » ont reçu 3 épandages (en 1999, 2001 et 2002) de 40 t/ha de boues (soit 5 t/ha MS), tandis que les parcelles « F » ne recevaient que du fumier de bovins et les parcelles « M » ne recevaient qu'une fertilisation minérale NPK. Les flux de cadmium ainsi épandus ont été estimés à 17,6 g/ha pour les parcelles « avec boues », contre 4,7 et 3,9 g/ha pour les parcelles « F » et « M » respectivement⁴.

En juillet 2003, à la fin de l'expérimentation, les sols (horizon de surface) et les grains de blé ont été prélevés et analysés. Aucune différence significative n'a pu être observée pour le cadmium entre les trois traitements, ni dans les échantillons de sols (valeurs comprises entre 0,10 et 0,13 mg/kg), ni dans les grains de blé (4 valeurs inférieures à 0,02 mg/kg ; 8 autres valeurs comprises entre 0,022 et 0,028 mg/kg).

Pour les autres ETM, les seules variations analytiques observables dans les sols sont peu significatives et probablement liées à de légères hétérogénéités géochimiques antérieures à la mise en place de l'essai.

Le dispositif expérimental d'Ensisheim (Schaub, 2004)

La motivation principale de sa mise en place (en 1995) était de disposer de références locales pour consolider la filière au plan régional. Il est géré par l'ARAA⁵ sur financements de l'ADEME, de l'Agence de l'eau Rhin-Meuse, du conseil général du Haut-Rhin et des producteurs de boues haut-rhinois.

Cette expérimentation permet de comparer trois pratiques de fertilisation : (i) avec apports de boues chaulées (station de Colmar puis SIVOM de Wittenheim, Kingersheim et Ruelisheim dit WIKIRU) ; (ii) avec apports de boues non chaulées (station d'Ensisheim) ; (iii) fertilisation minérale « raisonnée ». Le dispositif est constitué de 12 micro-parcelles de 10 m x 10 m (3 traitements x 4 répétitions) séparées par des bandes tampons. Le sol est caractéristique de la basse terrasse de la plaine du Rhin : décarbonaté, rougeâtre, caillouteux et limono-argilo-sableux, moyennement profond sur graviers rhénans. Le pH de l'horizon de surface était initialement de 6,0.

Il y est pratiqué une monoculture de maïs grain irrigué. Depuis 2001 le dispositif est en non-labour. Sont suivis de très nombreux paramètres « sols » (sur 4 couches jusqu'à 60 cm de profondeur) et « plantes » (grains et organes aériens) : 13 éléments en traces totaux (certains extraits au CaCl₂ et à l'EDTA) et 23 composés traces organiques.

Les épandages ont été effectués en 1995, 1998, 2001, 2003 et 2004 (4 seulement sont pris en compte dans le rapport de 2003 publié en novembre 2004). Les taux de cadmium dans ces boues ont varié entre 1,2 et 2,1 mg/kg MS.

En 10 ans, les 5 épandages ont apporté 20,7 t MS de boues chaulées (hors chaux) et 13,3 t MS de boues non chaulées, ce qui représente des flux de cadmium de 36 g/ha pour les boues chaulées de WIKIRU et 25 g/ha pour les boues d'Ensisheim (à comparer aux 53 g/ha de la fertilisation minérale sous la forme de superphosphate).

Dans les placettes ayant reçu des boues chaulées, le pH est monté de 6,0 à 7,45 dans la couche 0-5 cm et de 6,0 à 7,17 dans la couche 5-20 cm. Il en résulte moins de Cd, Mn, Ni, Cu, Zn échangeables (extraits par CaCl₂) pour ce traitement. C'est là un pur effet pH : quand celui-ci monte, les quantités extraites par un sel neutre diminuent. On ne note aucune différence de teneurs totales en ETM entre les 3 traitements, ni en surface, ni en profondeur.

⁴ Fumiers et engrais contiennent des éléments traces métalliques.

⁵ Association pour la relance agronomique en Alsace.

En ce qui concerne l'impact sur les plantes, les seules différences significatives sont observées pour le traitement avec apports de boues chaulées. Ces différences portent sur Mn et Ni dans les grains et sur Mn et Cd dans les parties aériennes du maïs. Toutes ces valeurs diminuent, en relation avec l'augmentation notable du pH dans les 40 premiers centimètres du sol. En revanche, il n'y a aucune différence dans les teneurs en cadmium des grains de maïs pour les 3 traitements mis en comparaison (0,011mg/kg MS).

Conclusion du rapport 2003 : « Suite à 4 épandages de boues et 8 cultures de maïs, une réponse à la question de départ peut être avancée. À court terme, il n'y a pas de risque pour la chaîne alimentaire *via* une accumulation des 13 éléments traces ou des 23 composés traces dans le maïs, ni d'atteinte à la fertilité des sols ».

Plate-forme expérimentale de Colmar (Leclercq *et al.*, 2004)

Elle a été mise en route en 2000 sur un terrain de 2 ha du site expérimental INRA de Colmar. Destinée à fonctionner pendant 10 ans, elle est gérée par l'INRA et l'ARAA. Ses ambitions sont de « fournir des données scientifiques et techniques à l'ensemble des chercheurs impliqués dans la thématique valorisation des boues par recyclage agricole ». De nombreux paramètres y sont suivis : relatifs au sol (données agro-pédologiques de caractérisation, éléments et composés organiques traces), à la qualité des produits récoltés, aux retombées atmosphériques...

Le sol, formé par décarbonatation partielle d'un loess, est calcaire et limono-argileux sur toute son épaisseur (de 55 à 90 cm au dessus du loess intact). Le pH était de 8,25 au départ (taux de calcaire compris entre 11 et 16 % en surface).

Six traitements sont mis en comparaison selon un dispositif de 48 placettes de 9 m x 10 m avec 8 répétitions (4 avec apports d'azote et 4 sans) : (i) épandages de boues urbaines déshydratées ; (ii) les mêmes boues compostées ; (iii) composts de fractions fermentescibles d'ordures ménagères collectées sélectivement ; (iv) un fumier de bovins ; (v) le même fumier composté ; (vi) témoins sans épandages. La succession culturale a été (de 2001 à 2005) : maïs – blé – maïs – orge – maïs.

Trois épandages de boues (réalisés en début des années 2001, 2003 et 2005 – teneurs en cadmium des boues comprises entre 1,1 et 1,4 mg/kg), à raison d'environ 3 t MS à chaque fois, ont apporté un flux cumulé de cadmium de 11,3 g/ha. Les épandages (aux mêmes dates) de boues compostées à des tonnages plus élevés ont apporté un flux cumulé de cadmium estimé à 23,3 g/ha.

Les deux premiers épandages ne semblent pas avoir eu d'impact majeur sur les sols analysés en décembre 2004 par rapport aux analyses du « point zéro » initial de septembre 2000. En ce qui concerne le cadmium, les teneurs totales moyennes seraient passées de 0,24 à 0,26 mg/kg dans les deux traitements qui nous intéressent comme dans les témoins.

Tableau VII. Teneurs moyennes en cadmium des grains récoltés sur la plate-forme expérimentale de Colmar (en mg/kg)

Nb E./ récolte = nombre d'épandages reçus au moment de la récolte

	maïs 2001	blé 2002	maïs 2003	orge 2004
Boues	0,04	0,013	< 0,01	< 0,02
Compost boues	< 0,02	0,014	< 0,01	< 0,02
Témoin	< 0,02	0,013	< 0,01	< 0,02
Nb E/ récolte	1	1	2	2

Dans la même période de temps, les quantités de cadmium extraites par l'EDTA seraient passées de 0,10 à 0,11 mg/kg pour les trois traitements mis en comparaison et celles extraites au CaCl₂ sont toutes demeurées inférieures au seuil de quantification (1 µg /kg).

Aucun impact n'est visible sur les grains récoltés dans un contexte de teneurs très faibles (*cf.* tableau VII). Il est vrai que le sol entièrement calcaire n'est pas un milieu favorable au transfert du cadmium du sol vers la plante.

Évaluation des risques écotoxicologiques liés à la valorisation agricole de déchets et produits dérivés à La Bouzule¹

Ce programme de recherches, initié par l'ADEME en 1996², a comme objectif d'évaluer les risques de transfert des polluants issus des déchets vers le sol, les eaux, les végétaux et la chaîne alimentaire dans un cadre proche des pratiques réglementaires actuelles.

L'étude comporte le suivi du devenir de polluants (mobilité, biodisponibilité, transferts) et de leurs effets sur le système sol-eau-plante. Ainsi, les flux de polluants vers les végétaux, leur accumulation et leur transfert vers les horizons profonds du sol et les eaux souterraines sont régulièrement mesurés. Des tests de toxicité sont également réalisés sur les déchets avant épandage et sur des échantillons de terre collectés avant et après épandages (encadré 1).

Les horizons de surface du sol de l'expérimentation sont argilo-limoneux sur 35 cm (30 à 34 % argile). En profondeur on atteint des horizons argileux lourds à mauvais drainage interne (50 à 58 % d'argile), issus de marnes du Lias lesquelles apparaissent à environ 85 cm. Le terrain, de pente < 1 %, est drainé. Le pH initial était compris entre 6,9 et 7,2 dans l'horizon de surface.

Encadré 1. L'approche écotoxicologique spécifique des travaux menés à La Bouzule (1996-2006)

À ce jour, les contraintes réglementaires reposent principalement sur des critères de qualité physico-chimique des milieux ou des matières rejetées. Ces critères se limitaient jusqu'à récemment à des données issues d'une démarche analytique menée sur les matériaux eux-mêmes ou sur des éluats obtenus par un test de lixiviation normalisé ou des extractions partielles. Toutefois, l'approche analytique suppose que les polluants, dont on cherche à se prémunir, sont identifiables et en nombre relativement restreint, ce qui est rarement le cas. Par ailleurs, la teneur extractible ne donne aucune indication sur les phénomènes de synergie et d'antagonisme entre polluants, sur les quantités déjà stockées dans les organismes vivants et potentiellement relargables dans le milieu ou accumulables dans la chaîne alimentaire. Cette approche ne renseigne donc pas sur la toxicité du milieu analysé vis-à-vis des organismes vivants, que seules les méthodes biologiques sont capables d'évaluer.

Les tests biologiques de toxicité et de génotoxicité sont ainsi des outils novateurs, utilisés depuis plusieurs années pour évaluer l'innocuité de substances et de matrices complexes. Ils sont complémentaires des analyses physico-chimiques car ils renseignent sur la biodisponibilité des polluants et leurs effets. Ces outils permettent une approche globale intégrant l'ensemble des molécules et éléments présents. De plus cette approche est capable de s'affranchir de certaines des contraintes des analyses physico-chimiques classiques, qui conduisent souvent à sous-estimer ou surestimer les dangers et les risques liés aux polluants (difficulté d'analyser les mélanges souvent complexes de molécules).

¹ Bispo *et al.*, 2001, 2005 et 2006 ; Schwartz *et al.*, 2004).

² Ce programme mené par dix-huit laboratoires, intitulé "Évaluation des risques écotoxicologiques liés à la valorisation de déchets en agriculture" (VADETOX), se poursuit jusqu'en 2006 à l'initiative du laboratoire Sols et environnement (INPL/ENSAIA/INRA) et du service Impact sur les milieux (Groupe IRH Environnement), avec le soutien de l'ADEME, de l'agence de l'Eau Rhin-Meuse, de la communauté urbaine du Grand Nancy, du conseil général du Bas-Rhin, de l'INERIS, de l'INRA et du ministère en charge de l'Environnement (GESSOL).

Le dispositif est formé de 40 placettes de 10 x 4 m (soit 40 m²) en 4 blocs. Huit déchets et produits dérivés sont testés dont une boue digérée de STEP urbaine sous 3 formes (tabl. VIII), plus 2 témoins recevant uniquement une fertilisation minérale « minimale » et « optimale », soit 10 modalités au total.

Tableau VIII . Les tests sur trois formes de boues de La Bouzule

Boue urbaine	Code	% de matière sèche	teneur en Cd mg/kg de MS
liquide	B1	4 %	0,8 à 1,9
déshydratée	B2	18 à 29 %	0,6 à 1,9
déshydratée compostée	B3	34 à 45 %	1,5 à 3,0

Chaque déchet ou produit dérivé a été appliqué quatre fois (printemps 1997, automne 1997, automne 1998, printemps 2002) à une dose conforme à la réglementation (10 t/ha/an), soit 40 kg de MS par parcelle, soit des flux cumulés de cadmium compris entre 50 et 88 g par hectare.

Les labours sont effectués sur 20 cm de profondeur. Pour éviter les carences nutritionnelles et n'observer que d'éventuels effets toxiques sur les végétaux, une fertilisation minérale uniforme est appliquée à toutes les placettes. Tout d'abord, des cultures de colza et de blé ont alterné, laissant place à des maïs ensilage à partir de 2002.

Des échantillons moyens de terre ont été régulièrement prélevés après épandage des déchets et après récolte des végétaux (soit 11 campagnes de prélèvements, numérotées T1 à T11, plus le « point zéro » de mars 1997 codé T0). Les échantillonnages sont effectués toujours suivant le même plan. 16 prélèvements élémentaires pris au cœur de chaque placette (rectangle central de 8 x 2 m) sur l'épaisseur 0-20 cm constituent un composite. Au moment du « point zéro » les teneurs totales en cadmium de l'horizon de surface étaient comprises entre 0,06 à 0,09 mg/kg. Cette teneur initiale très faible est probablement liée à l'exploitation en prairies permanentes depuis de nombreuses années.

Impact sur les sols

L'impact de la mise en culture est très net pour les teneurs totales en cadmium, puisque l'on passe de 0,07 mg/kg en 1997 à 0,27 et 0,28 mg/kg en 2003 ! Mais on ne note pas de différences significatives entre ces placettes ayant reçu des boues et celles ayant reçu des fertilisations « minimale » et « optimale » (respectivement 0,28 et 0,24 mg/kg) !

La teneur initiale du sol en cadmium étant très faible, l'augmentation relative peut paraître importante mais on aboutit néanmoins à des teneurs modestes, légèrement inférieures au niveau de la médiane nationale des horizons de surface des sols labourés (0,30 mg/kg). On constate un effet des épandages de boues sur la composition des sols mais il n'est pas différent de l'effet d'une fertilisation minérale classique.

Impact sur les cultures

Toutes les teneurs de cadmium mesurées pour les grains de blé sont < 0,025 mg/kg, qu'il s'agisse de blés de 1998 (récoltés après 2 épandages), des blés de 2000 et des blés de 2001 (après 3 épandages), pour les placettes B1, B2, B3 comme pour les placettes témoins fertilisation minimale et optimale.

En ce qui concerne les parties aériennes des maïs ensilage de 2002 et 2003 (après 4 épandages), toutes les teneurs en cadmium se sont avérées < 0,1 mg/kg dans toutes les placettes. Aucun impact des épandages n'a donc été décelé sur les végétaux par rapport aux « témoins ».

Autres études

Ducasse-Cournac *et al.* (2002) ont dressé la liste de 136 expérimentations agronomiques menées en France sur l'intérêt et l'impact de diverses matières organiques et minérales résiduelles. Toutes ne s'intéressent pas aux ETM et un certain nombre ne concerne pas les grandes cultures. Outre celles présentées dans cet article, on peut citer : Vandœuvre-sur-Barse (chambre d'agriculture de l'Aube), observatoire de la qualité des sols de l'Aisne, l'essai de Feucherolles Les Beurreries (seulement composts de boues), Vesoul, Châlons-en-Champagne, Angers et Nouzilly.

V. Conclusions générales

Le lecteur voudra bien nous excuser pour cette longue énumération qui peut sembler quelque peu lassante ! En effet, nous avons recherché une certaine exhaustivité en nous focalisant principalement sur le cadmium et le grain de blé tendre (le blé dur accumule plus de cadmium dans le grain que le blé tendre) et en nous limitant volontairement aux seuls travaux menés en France.

Un premier point, majeur, doit être souligné. La formule « épandage de boues d'épuration urbaines sur des terrains agricoles » ne rend pas bien compte des différences colossales de flux de métaux apportés selon les circonstances : tonnages appliqués cumulés et composition des boues (laquelle a varié beaucoup et varie encore dans le temps et dans l'espace). Le tableau IX (p. 57) présente les estimations des flux de cadmium apportés dans le cadre des divers essais évoqués dans cet article. Ces flux vont d'à peine 1 g de Cd par ha (petites stations à boues très « propres » – faibles tonnages) à 4320 g de Cd par ha (quatre épandages de boues d'Achères dans les années 1970 et 1980). Sans parler de l'expérimentation de Bézu-le-Guéry où les deux épandages « à double dose » ont apporté 18,9 kilos de cadmium, ni de celle de Couhins Louis Fargue (641 kg) !

D'où l'importance de toujours évaluer le mieux possible les flux d'ETM apportés réellement par les épandages de boues et de les comparer aux flux apportés par d'autres types d'apports (fertilisation phosphatée, composts, fumiers, lisiers, etc.).

Il est instructif de noter au passage qu'aux États-Unis, l'Agence pour la protection de l'environnement (EPA) limite à 18,4 kg/ha la quantité cumulée de cadmium qui peut être épandue en domaine agricole sur grandes cultures, la teneur en cadmium des boues ne devant pas dépasser 39 mg/kg (Chaussod *et al.*, 1997). On voit que les autorités françaises et européennes sont beaucoup plus exigeantes que l'agence américaine !

Souvent, on se heurte à de grosses difficultés lorsqu'on veut mesurer l'impact sur les sols des épandages tels que réalisés aujourd'hui. Il est vrai que les flux de cadmium sont désormais faibles voire infimes, correspondant à des augmentations en teneur dans l'horizon de surface très inférieures aux incertitudes analytiques :

- pour augmenter la concentration en un ETM de 1 mg/kg dans un horizon labouré (lequel pèse entre 3600 et 3900 t/ha), il faut apporter entre 3,6 et 3,9 kg de cet ETM/ha ;
- en conséquence, un apport de 100 g de cadmium par hectare provoquerait théoriquement une augmentation de la teneur moyenne de l'horizon labouré récepteur d'environ 0,028 mg/kg.

Autre difficulté, trop souvent négligée : les parcelles expérimentales s'avèrent souvent non homogènes pédologiquement ou au moins en ce qui concerne les teneurs initiales en ETM. On s'en aperçoit souvent trop tard. D'autres problèmes, souvent difficiles à identifier (prélèvements, pré-traitements, analyses), peuvent également conduire à des résultats d'analyses après épandages absurdes comparés à ceux obtenus avant : concentrations beaucoup plus faibles ou beaucoup plus fortes mais sans commune mesure avec les flux réellement apportés !

Quand les flux apportés ont été énormes (Couhins, Bézu-le-Guéry, premiers essais à La Bouzule, Vexin années 1970 et 1980), on constate des impacts très nets, se marquant aussi bien sur les teneurs totales des sols et sur les quantités de métaux extraites par extractions partielles que sur la composition de certains organes végétaux. Quand les flux de cadmium sont faibles, compatibles avec les exigences de la réglementation française, il est impossible de mettre en évidence le moindre impact sur les sols ou les plantes cultivées. Voilà qui est rassurant ! Au moins à court terme !

Le principal mérite de la réglementation française de 1998 sur l'épandage des boues a donc été d'inciter à grandement diminuer les flux d'ETM. Cet objectif a été atteint.

Mais un certain nombre de difficultés demeurent. D'abord, nous ne disposons pas encore de recul de longue durée sur les épandages à doses raisonnables. Comment évaluer les impacts des épandages de boues urbaines sur le long terme (100 à 200 ans) par des expérimentations menées à court terme (5 à 15 ans) ? En outre, beaucoup d'études restent à faire, notamment sur d'autres végétaux alimentaires plus accumulateurs de métaux que le blé (épinards, choux, laitues).

La meilleure façon de juger d'un éventuel transfert du sol vers les plantes est de pratiquer des analyses directes de tel ou tel organe végétal récolté, mais ce sont là des analyses coûteuses et délicates, posant des problèmes à de nombreux laboratoires d'analyse. D'où l'intérêt des extractions partielles avec des sels neutres ou des réactifs complexants (EDTA, DTPA) sur échantillons de sols, afin d'estimer le

mieux possible les risques de phyto-disponibilité ou de mobilité (Baize et Tomassone, 2003 ; 2005 ; ADEME et APCA, 2005).



Pour finir, il faut souligner l'importance majeure du pH du sol récepteur sur le risque de transfert des ETM (qu'ils soient d'origine naturelle ou anthropique) et notamment du cadmium du sol vers les plantes. Plus ce pH est bas, plus il y a de risque de phyto-disponibilité et de mobilité. Heureusement ce paramètre peut être aisément contrôlé à moyen terme par les agriculteurs, grâce à des apports réguliers d'amendements basiques calciques.

On notera que les boues chaulées portent en elles-mêmes le « contrepoison » face aux ETM apportés, en remontant le pH des sols récepteurs et en diminuant d'autant le potentiel de mobilité et de phyto-disponibilité des métaux potentiellement dangereux (au moins à court terme).

Mais qu'advierait-il en cas d'abandon des sols agricoles amendés antérieurement par des boues, dans les régions aux sols naturellement acides ? Une réacidification progressive ne risquerait-elle pas de mener à une désorption et à une libération des métaux ?

Enfin, il faut souligner le rôle de certains constituants naturels des sols comme puissants fixateurs des ETM : les matières organiques, les minéraux argileux, et surtout les oxydes (au sens large) de fer et de manganèse.

Les différents sols, en fonction de l'abondance de ces constituants et de leur morphologie (succession et épaisseur des différents horizons), ne présentent pas la même capacité de rétention des métaux apportés par l'homme. Leur « vulnérabilité » est donc très variable et mériterait d'être mieux prise en compte pour mieux localiser les épandages.

Tableau IX. Estimations des flux de cadmium apportés au sol dans le cadre de différents essais d'épandage de boues apportés dans le cadre des divers essais évoqués dans cet article. Comparaison avec des valeurs réglementaires et les flux liés à la fertilisation phosphatée.

Expérimentation	Étude	Référence	Années	Tonnage cumulé (5 t / ha)	Station d'épuration	Nombre d'épandages	Flux Cd (g / ha)	
							mini	maxi
Avant 1990	INRA Couhins (33) Louis Fargue	Juste <i>et al.</i> , 1977 ; Legret <i>et al.</i> , 1988	70	300 MS	Bordeaux	3		641 000
	INRA Couhins (33) Ambarès	Gomez <i>et al.</i> , 1992	70-80	800 MS	Ambarès	8		27 000
	La Bouzule (54)	Morel et Guckert, 1984	70-80	30 à 340 MS	Nancy	2	810	9180
	Bézu-le-Guéry (02)	Bauvois <i>et al.</i> , 1985	70	118 MS	Achères	2		18 900
	Bernardon-Vexin	Bernardon, 1993	70-80	15 à 60 MS	Achères	1 à 4	220	4 320
	Prog. ECOMET - Vélannes	Tercé <i>et al.</i> , 2002	70-90	80 MB	Achères	4		3 624
Depuis 1990	Quasar 1999 - séries H - J - E	Quasar 99	90	???	rurales	1 ou 2	1,2	15
	Quasar 1999 - série L	Quasar 99	90	18,5 à 60,7 MB	Auxerre	1 à 3		
	Bourgogne-Franche Comté	Deléan et Kockmann, 2003	90	???	région	1 à 4	0,57	21
	Prog. ECOMET - Gouzangrez	Tercé <i>et al.</i> , 2002	90	20 MB	Allemagne	1		10
	Somme	Suc et Dehaine, 2004	90-2000	9 à 15 MS / 10 ans	Somme	4 sur 10 ans	7	27
	Barneau - Bouy D1	SEDE 1999-2003	90	40 MB	Valenton	2	64	112
	Barneau - Bouy D3	SEDE 1999-2003	90	120 MB	Valenton	2	228	268
	Limousin FF	Courbe <i>et al.</i> , 2002	90		Limoges	sur 10 ans	< 100	< 100
	Limousin FM	Courbe <i>et al.</i> , 2002	90		Limoges	sur 10 ans	100	300
	Limousin FE	Courbe <i>et al.</i> , 2002	90		Limoges	sur 10 ans	500	600
	Essai Grignon (78)	Bourgeois et Michelin, 1997	90	24 MS	Plaisir	4		86
	Ensisheim (68) maïs	Schaub, 2004	90	13 & 21 MS / 10 ans	locales	5 en 10 ans	25	36
	Colmar (68) boues+boues compostées	Leclercq <i>et al.</i> , 2004	2000	3 T MS x 3	locales	3 en 5 ans	11	23
	La Bouzule (54)	Schwartz <i>et al.</i> , 2004	90-2000	10 T MS x 4		4 en 7 ans	50	131
	Poucharramet (31) sur blé	Fourrié <i>et al.</i> , 2004	2000	1,4 à 13,8 MS	Toulouse	3	2	18
	Calculs valeurs moyennes	Tercé, 2001	2000	2 MS / an	moyenne	1		5 *
20 MS / 10 ans				moyenne	10		50 *	
Réglementation européenne		CEC - Directive 1986				sur 1 an	150	
Réglementation France 1998		jusqu'au 1/01/2001	90			sur 10 ans	300	
		à partir du 1/01/2001	2000			sur 10 ans	150	
Apports par la fertilisation P		diverses				sur un an	0,3	6

* 2 t MS / ha / an - boues à 2,5 mg/kg de Cd

Remerciements

À François Bunel (chambre d'agriculture de Mayenne), Marie-Pierre Deléan et François Kockmann (chambre d'agriculture de Saône-et-Loire), Anne Schaub (ARAA Colmar), Hubert Brunet (SEDE Environnement), Sabine Houot (INRA, EGC Grignon) pour leur aide et notamment la transmission d'informations et/ou de données ■

Références bibliographiques

- ADEME et APCA, 2005. *Dérogations relatives à la réglementation sur l'épandage des boues de stations d'épuration. Comment formuler une demande pour les sols à teneurs naturelles élevées en éléments traces métalliques ?* Guide technique. J. Béraud et A. Bispo (coord.). D. Baize, T. Sterckeman, A. Piquet, H. Ciesielski, J. Béraud et A. Bispo (auteurs). 14 p. http://www.ademe.fr/htdocs/actualite/manifestation_s/Documents/guide_boues.pdf
- BAIZE D., 1997. *Teneurs totales en éléments traces métalliques dans les sols (France)*. INRA Éditions, Paris. 410 p.
- BAIZE D., DESLAIS W., GAUFFE M., 1999. Anomalies naturelles en cadmium dans les sols de France. *Étude et Gestion des Sols*, 2, 85-104.
- BAIZE D., MENCH M., SAPPIN-DIDIER V., MOCQUOT B., GOMEZ A., PROIX N., STERCKEMAN T., 2003. Phytodisponibilité des éléments traces métalliques dans les grains de blé. *Les Dossiers de l'environnement de l'INRA*, 25, 45-62.
- BAIZE D., TOMASSONE R., 2003. Modélisation empirique du transfert du cadmium et du zinc des sols vers les grains de blé tendre. *Étude et Gestion des Sols*, 4, 219-238.
- BAIZE D., TOMASSONE R., 2005. *Prédiction de la teneur en cadmium du grain de blé tendre à partir de mesures sur échantillons de sols*. Journées techniques "Transfert des polluants des sols vers les végétaux cultivés et les animaux d'élevage – Outils pour l'évaluation des risques sanitaires". ADEME, Angers, 5-14.
- BARBIER R., LUPTON S., 2003. Jeux et enjeux autour de la réglementation des épandages, une analyse socio-économique. *Les Dossiers de l'environnement de l'INRA*, 25, 139-148.
- BARRIER-GUILLOT B., BOTTÉ B., GRAVOUEILLE J.M., LEUILLET M., RAIMBAULT J.M., 2003. *Teneurs en éléments traces métalliques du blé tendre, du blé dur, du pois protéagineux et de la pomme de terre, récoltés en France en 1997 et 1998*. ADEME-Arvalis-ITPT, Paris, 139 p.
- BAUVOIS F., IRELAND-RIPERT J., DUCAUZE C., 1985. *Évaluation du degré de contamination des sols et des cultures consécutives à des épandages de boues d'Achères*. INA – Agence de bassin Seine-Normandie-SIAAP, 189 p.
- BERNARDON E., 1993. *Analyse critique de l'utilisation des boues dans le Vexin : problèmes posés par les éléments traces*. Mémoire DEA Ecologie fonctionnelle & Agronomie. INA-Paris Grignon & Univ. Paris VI et XI.
- BISPO A., SCHWARTZ C., LÉVY A., JOURDAIN M.J., MOREL J.L., 2001. Impact à long terme de l'épandage de boues urbaines et industrielles en agriculture. *L'Eau, l'Industrie, les Nuisances*, 247, 35-44.
- BISPO A., SCHWARTZ C., CHARISSOU A.M., JOURDAIN M.J., GAUTHIER L., CLUZEAU D., 2005. Valorisation agricole des déchets : vers une démarche pour la prévention des risques pour les écosystèmes, les résultats du programme National ADEME-VADETOX. In *Actes de la Journée « Evaluation des risques pour les écosystèmes »*, 17 mars 2005, Paris. ADEME Éditions, Angers, 14 p.
- BISPO A., SCHWARTZ C., CHARISSOU A.M., GAUTHIER L., CLUZEAU D., JOURDAIN M.J., FEIX I., MOREL J.L., 2006. Ecotoxicological characterization of wastes with regards to agricultural uses. In : B.M. Gawlik, H. Moser (eds) : *Problems around Soil and Waste. III The H-14. Criterion and (Bio)analytical Approaches for Ecotoxicological Waste Characterization*. Office des publications officielles de la Commission européenne, Luxembourg, 109-117.
- BORRAZ O., 2000. L'utilisation des boues d'épuration en agriculture : les ressorts d'une controverse. *Le Courrier de l'Environnement de l'INRA*, 41, 25-32.
- BOURGOIS S., MICHELIN J., 1997. Essai de Grignon sur la valorisation raisonnée des boues. Évolution des teneurs en éléments traces-métalliques des sols. In : *Aspects sanitaires et environnementaux de l'épandage agricole des boues d'épuration urbaines*, Journées techniques des 5 et 6 juin 1997. ADEME, p. 224-226.
- CHAUSSOD R., LINÈRES M., TERCÉ M., CHASSIN P., 1997. Déchets urbains : impacts sur la qualité des sols et des produits. In *Actes des 3èmes rencontres de la fertilisation raisonnée et de l'analyse de terre*. COMIFER-GEMAS, Blois, 241-257. COURBE C., BAIZE D., SAPPIN-DIDIER V., MENCH M., 2002. Impact de boues d'épuration anormalement riches en cadmium sur des sols agricoles en Limousin. In *Actes des 7èmes journées nationales d'Étude des Sols*, Orléans, 15-16.
- CTP (Comité Technique Permanent sur l'épandage des boues d'épuration), 2000. *Les boues d'épuration municipales et leur utilisation en agriculture. Dossier documentaire*. ADEME Éditions, Angers, 58 p. + fiches.
- DELÉAN M.P., KOCKMANN F. (coord.), 2003. *Programme de recherche de références relatives au recyclage agricole des boues en Bourgogne et Franche-Comté*. Chambre d'agriculture de Saône-et-Loire, 69 p.
- DGCCRF, 1989. Résultats de l'enquête concernant la teneur en cadmium et en plomb de blés récoltés en 1989. 11 p.

- DUCAROIR J., 1993. *Localisation et état de métaux lourds le long de profils de sol soumis à épandage de boues résiduaires*. Ministère de l'Environnement, Convention de recherche n°87 215. INRA Versailles, 90 p.
- DUCASSE-COURNAC A.-M., LECLERC B., MULLER-DAVID F., 2002. *Inventaire national des essais agronomiques réalisés avec des matières organiques et minérales d'origine urbaine et industrielle*. ADEME Éditions (Données et références), Angers, 192 p.
- FOURRIÉ L., MOUCHART A., BODET J.M., DESVIGNES P., CHAMPOLIVIER L., CHARNET F., GUIRESSE M., TEXIER C., 2004. *Etude des risques de transfert d'éléments traces métalliques du sol dans les plantes cultivées sur des sols enrichis en ces éléments*. ACTA, Arvalis, CETIOM, ENSA Toulouse, IDF, ITP. Rapport final 43 p + annexes.
- GAULTIER J.P., CAMBIER P., CITEAU L., LAMY I., VAN OORT F., ISAMBERT M., BAIZE D., TERCÉ M., 2003. Devenir des éléments traces dans les sols du Vexin français soumis à des épandages de boues. *Les Dossiers de l'environnement de l'INRA*, n°25, 63-73.
- GAVALDA D., 2001. *Devenir des éléments traces métalliques dans les Boulbènes (Luisols-Rédoxisols) après épandage de boues granulées*. Thèse, INP. Toulouse, 258 p.
- GOMEZ A., SOLDA P., LAMBROT C., WILBERT J., JUSTE C., 1992. *Bilan des éléments-traces métalliques transférés dans un sol sableux après 16 années d'apports continus et connus de boues de station d'épuration et de fumier de ferme en monoculture irriguée de maïs*. Convention de recherche n° 89-256, INRA, Bordeaux, 58 p.
- JUSTE C., SOLDA P., 1977. Effets d'applications massives de boues de stations d'épuration urbaines en monoculture de maïs : actions sur le rendement et la composition des plantes et sur quelques caractéristiques du sol. *Science du Sol*, 3, 147-155.
- JUSTE C., MENCH M., 1992. Long-term application of sewage sludge and its effect on metal uptake by crops. In D.C. Adriano (ed) : *Biochemistry of trace metals*. Lewis publishers, Boca Raton, 159-193.
- LECLERCQ D., HOUOT S., PARNAUDEAU V., SCHAUB-TREMEL A., 2004. Essai de longue durée : dispositif expérimental d'étude des effets du recyclage de produits résiduaires organiques en polyculture sur les paramètres agronomiques et les flux de micropolluants dans les différents compartiments de l'écosystème cultivé. In *Retour au sol des matières organiques. Journées techniques ADEME, Paris, avril 2004*. ADEME Éditions, Angers, 215-226.
- LEGRET M., DIVET L., JUSTE C., 1988. Migration et spéciation des métaux lourds dans un sol soumis à des épandages de boues de station d'épuration à très forte charge en Cd et Ni. *Water Research*, 22(8), 953-959.
- MENCH M., MANCEAU A., VANGRONSVELD J., CLIJSTERS H., MOCQUOT B., 2000a. Capacity of soil amendments in lowering the phytoavailability of sludge-borne zinc. *Agronomie*, 20, 383-397.
- MENCH M., BOISSON J., BUSSIÈRE S., CASTAING E., SOLDA P., VANGRONSVELD J., 2000b. Plant growth and trace elements in situ inactivation in contaminated soils: lessons from field trials. In *Proc. Intern. Conf. Soil Remediation*. Hangzhou, China, 268-274.
- MENCH M., SOLDA P., VANGRONSVELD J., 2002. Conséquences sur le transfert de Cd et Ni dans le grain de maïs cinq ans après un traitement de réhabilitation. In D. Baize & M.Tercé (éds.) : *Les Éléments traces métalliques dans les sols – Approches fonctionnelles et spatiales*. INRA Éditions, Paris, 409-419.
- MOREL J.L., GUCKERT A., 1984. Évolution en plein champ de la solubilité dans DTPA des métaux lourds du sol introduits par des épandages de boues urbaines chaulées. *Agronomie*, 4(4), 377-386.
- NICOURT C., GIRAULT J.M., 2003. Qualification de déchets des boues de stations d'épuration et réorganisation de la filière, dans deux départements marqués par le moteur urbain. *Les Dossiers de l'environnement de l'INRA*, 25, 125-138.
- SCHAUB A., 2004. *Site de références d'Ensisheim. Suivi des éléments et composés traces en monoculture de maïs suite à des épandages de boues urbaines chaulées ou non. Rapport 2003*. ARAA, Colmar. 73 p.
- SCHWARTZ C., CHARISSOU A.M., SÉRÉ G., FLORENTIN L., JOURDAIN M.J., MOREL J.L., 2004. *Impact à long terme de l'épandage de déchets en agrosystème*. Rapport, Convention de Recherche ADEME n°99 75023, 98 p.
- SEDE, 1999 à 2003. *Impact du recyclage agricole des boues d'épuration urbaine sur la qualité des productions betteravières et céréalières*. SEDE, avec le concours financier du SIAAP, de l'ADEME et de l'Agence de l'Eau Seine-Normandie. Divers documents.
- SUC O., DEHAINE C., 2004. *Suivi pluriannuel des éléments traces des sols et de quatre grandes cultures dans la Somme*. Journées Techniques ADEME "Retour au sol des matières organiques" 27 & 28 Avril 2004.
- TERCÉ M., 2001. Les impacts du recyclage des boues de stations d'épuration. In *Les nouveaux défis de la fertilisation azotée*. Actes des 5èmes rencontres de la fertilisation raisonnée et de l'analyse de terre. COMIFER-GEMAS, Blois, 297-306.
- TERCÉ M., MOREL J.L., BAIZE D., BERMOND A., BOURGEOIS S., CAMBIER P., GAULTIER J.P., LAMY I., MENCH M., MOCQUOT B., MOISAN H., 2002. Devenir du cadmium apporté par des épandages de boues urbaines en céréaliculture intensive. In D. Baize et M. Tercé (éds.) : *Les Éléments traces métalliques dans les sols – Approches fonctionnelles et spatiales*. INRA Éditions, Paris, 455-469.

Annexe 1. Concentrations en ETM dans les boues de la station d'Achères (Seine aval)

en milligramme de matières sèches ; moyennes annuelles de prélèvements réalisés tous les 15 jours

Élément	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1987	1989	1990	1991	1992	1992	1995	2000	2001	2002
Cd	160	155	145	140	107	104	104	95	69	35,2	24,0	25,6	17,7	18,2	9,5	6,9	5,6	5,8
Cr	636			530					383					219	118	113	104	111
Cu	1538			1900					1111	946	962	940	881	888	466	792	764	802
Ni	216			200					138					82,7	46	39,7	39,4	41,0
Pb	1638			1300					1060	862	891	785	680	685	387	329	276	246
Zn	5670			5600					4087	3382	3644	3604	3327	3339	1633	2058	1760	1704
Co	46			35					11,6							7,9	7,7	6,4
Hg	18			8					12					10	5,5	5,3	4,5	4,2

Moyennes 1980-1982 et 1978 -1985 *in* Bauvois *et al.* ; 1989 à 1992 *in* Bernardon, 1993 ; 2000 à 2002 : valeurs fournies par la SEDE.

Annexe 2. Concentration en éléments traces dans des grains de blé

Denis BAIZE, novembre 2001. Analyses des grains effectuées à l'USRAVE, INRA Bordeaux. Expression en mg/kg de matière sèche (sauf pour Hg et Mg)

	Cadmium	Cuivre	Chrome	Nickel	Plomb	Zinc	Thallium	Mercuré (µg/kg)	Magnésium (g/kg)
Nombre de mesures	470	367	343	365	299	464	204	201	264
dont > seuil quantification	458	365	235	352	98	464	2	201	264
Seuil quantification	0,01 ou 0,02	variable	0,04 à 0,10	0,03 à 0,10	0,07 à 0,20		0,07 à 0,10		
Minimum	< seuil q.	1,01	< seuil q.	< seuil q.	< seuil q.	7,0	< seuil q.	0,092	0,55
Maximum	0,50	9,01	1,81	2,9	2,13	98,7	0,09	6,35	2,67
1er décile	0,023	2,0	< seuil q.	0,10	< seuil q.	12,0	< seuil q.	0,28	0,73
Médiane	0,045	3,5	0,08	0,235	< seuil q.	15,5	< seuil q.	0,805	0,826
9ème décile	0,09	5,3	0,33	0,98	0,31	25,6	< seuil q.	1,64	1,07
Vibrisse supérieure	0,100	6,5		0,745		26,2		2,03	1,07
Valeur max recommandée par le CSHPF	0,115				0,59			35	
Valeur maxi. Europe (règlement 466 / 2001 du 8 mars 2001)	0,23				0,23				

Annexe 3.

Concentrations en cadmium dans les grains de blé tendre exprimées en mg/kg de matière sèche (à raison de 16 % d'humidité).

Pays	F	F	F	F	F	F	UK	USA	CH	S
	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)	(7)	(8)	(9)	(10)
Moyenne	0,053	0,048	0,069	0,058	0,042	0,046	0,038	0,055	0,050	0,051
Minimum	0,015	0,021	0,010	0,015	0,024	0,020	0,004		0,008	0,009
1er décile	0,026	0,028								
Médiane	0,044	0,046	0,065	0,041		0,042	0,034		0,044	0,043
9e décile	0,102	0,073								
Maximum	0,169	0,138	0,182	0,146	0,238	0,149	0,310		0,275	0,246
Nb échant.	128	75	37	11	766	56	393	400	152	197
*	6*	1*	5*	2*	26	1*	8*			3*

* nombre d'échantillons dont la teneur excède la concentration recommandée par le CSHPF

(1) Programme Quasar 1998.

(2) Enquête ADEME-Arvalis (2003) - année 1998.

(3) Communication personnelle H. Messenger (chambre d'agriculture de Charente Maritime (1997-2002).

(4) Mench, Baize et Mocquot (1997).

(5) DGCCRF (1989).

(6) Baize et Tomassone (2003) - programme GESSOL.

(7) Chaudri et al. (1995) - année 1993.

(8) Hyde et al. (1979).

(9) Quinche (1995) Suisse romande (variété Arina).

(10) Eriksson et Söderstöm, 1996 - sud de la Suède - année 1992.