

# EPANDAGE D'EFFLUENTS AGRO-INDUSTRIELS ET RISQUE DE LIXIVIATION

P. Robert<sup>1</sup>, N. Beaudoin<sup>2</sup>, S. Ouvrard<sup>3</sup>,

<sup>1</sup> ASAE (Association de Suivi Agronomique des Epandages) 2, esplanade Roland GARROS - BP 235  
51686 REIMS cedex ;

<sup>2</sup> INRA, UR1158, Agro-impact, site de Laon Pôle du Griffon - 180, rue Pierre-Gilles de Gennes  
02000 BARENTON-BUGNY ;

<sup>3</sup> Laboratoire Sols et Environnement, UMR 1120 Université de Lorraine-INRA ;, 2, avenue de la Forêt  
de Haye - BP 20163 - 54505 Vandoeuvre-lès-Nancy

Contact : [probert.asae@wanadoo.fr](mailto:probert.asae@wanadoo.fr)

## Introduction

L'épuration des effluents d'industries agroalimentaires (sucreries, distilleries, féculerie,...), en Champagne-Ardenne notamment, est assurée majoritairement à travers l'épandage des effluents bruts sur les sols agricoles. L'INRA de Chalons en Champagne (Dutil, Muller, 1979) puis de Reims-Laon a mené des recherches sur cette thématique spécifique dès les années 1970 notamment sur le devenir des éléments organiques et minéraux majeurs. Les expérimentations sur des lysimètres en sol non remanié, les études de minéralisation des effluents, les suivis agronomiques des épandages réalisés ont permis d'appréhender la dynamique des éléments épandus et ainsi, de définir les bonnes pratiques agronomiques d'épandage.

En complément des études initiales de périmètre d'épandage (études agro-pédologiques, études hydrogéologiques) et des bilans agronomiques annuels ainsi que des suivis de nappe qui encadrent cette technique épuratoire mise en œuvre avec des doses d'apport raisonnées et des conditions de conduites culturales imposées, il était nécessaire d'acquérir de la connaissance pour s'assurer de la pleine compatibilité environnementale de cette technique épuratoire au regard des micropolluants organiques (hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), polychlorobiphényles (PCB), alkylphénols, di-éthyl hexyl phtalate (DEHP), halogènes organiques adsorbables (AOX), tributylétain cation, isoproturon), des éléments traces métalliques et du caractère pseudo-toxique (matières inhibitrices) des effluents épandus vis-à-vis de la préservation de la qualité des eaux souterraines.

Il est important de noter dans ce contexte que les effluents ne sont pas rejetés directement dans l'aquifère mais sur le sol, avec certaines précautions. Ce dernier exerce un pouvoir épurateur, grâce à la fois à son complexe argilo-humique et à son activité microbienne. Ce pouvoir est variable suivant l'élément : très proche de 100 % pour les bactéries, matières en suspension (MES), ions chargés positivement ; variable pour les petites molécules et/ou ions chargés négativement.

Les objectifs de cette expérimentation menée de 2013 à 2016 étaient de caractériser la dynamique de micropolluants métalliques et organiques susceptibles d'être présents dans les effluents agro-industriels et d'appréhender les risques pour les eaux souterraines au droit des parcelles agricoles épandues. La stratégie était de mesurer des flux d'eau et des teneurs *in situ* à la base d'un sol agricole représentatif, sur des micro-parcelles sujettes à un épandage comparés à un traitement témoin sans épandage. L'étude cible en priorité les micropolluants tout en vérifiant les paramètres agro-environnementaux habituellement étudiés.

L'étude permet d'appréhender les performances du sol vis-à-vis de ces éléments et en conséquence les éventuels coefficients de pollution évitée vers le milieu aquatique (nappe dans le cas présent) dans le calcul des redevances pollution de l'Agence de l'eau Seine Normandie.

## Matériel et Méthodes

### **Description et caractéristiques du site**

Le site expérimental retenu est celui de Fagnières (51) équipé depuis les années 1970 de cases lysimétriques suivies par la station INRA et d'une station météorologique Agroclim. L'utilisation des cases lysimétriques pour une autre étude a conduit pendant l'été 2013 à implanter, à proximité, un dispositif de plaques lysimétriques dédié qui présentait le triple avantage de bénéficier de la connaissance du milieu (sol-climat), de faciliter la collecte des lixiviats et de mutualiser les interventions techniques. A l'endroit choisi pour le dispositif, le savart avait été défriché en 1968 pour

être cultivé sans apport d'engrais jusqu'en 1995, puis laissé en sol nu fréquemment travaillé depuis 1995.

Le nouveau système d'expérimentation par plaques lysimétriques ouvertes est composé de 12 micro-parcelles réparties en 2 blocs (B1 et B2). Chaque bloc comporte 6 micro-parcelles : une micro-parcelle par type d'effluent (5) et un témoin. Chaque micro-parcelle est équipée de deux plaques lysimétriques implantées à 120 cm et à 150 cm de profondeur respectivement sur le bloc I et II. Les lixiviats récupérés proviennent de 2 micro-parcelles par type d'effluent. Ils s'écoulent par capillarité puis par gravité et sont collectés dans le couloir des lysimètres existants, à la température ambiante du sol, soit environ 12 °C.

Le dispositif est installé sur une rendzine développée dans un paléosol crayeux à poche de cryoturbation (Tableau 1), et appartient à la classe la plus répandue en Champagne crayeuse.

**Tableau 1. Données analytiques de la terre fine**

	Horizon	Profondeur (cm)		Calcaire (CaCO <sub>3</sub> ) total	Argile minéralogique	Carbone organique (oxydation)	Azote total	stock C	stock N
		haut (cm)	bas (cm)	g/kg	g/kg	g/kg	g/kg	Mg/ha	Mg/ha
moyenne	Ap	0	25	712	91	14,6	1,8	24,6	3,1
	AC	25	47	738		7,4	1,0	14,1	1,8
	C1	47	94	759		1,7		6,8	
	C3	94	130	887		1,0		3,6	
	C4	141		952		0,5			

La gestion de ces sols pose des questions générales d'intérêt agronomique ou environnemental. Ils sont naturellement pauvres et fragiles chimiquement mais ont de très bonnes propriétés physiques (Ballif et al., 1995). Le Tableau 2 donne une estimation de l'eau contenue dans la microporosité par horizon et pour un profil d'une épaisseur donnée, d'après les références de Ballif (1980 ; 1981) et Ballif-Herre (1991). Malgré une profondeur d'enracinement moyenne, atteignant au maximum 120 cm, la réserve d'eau utile pour les cultures (RU) atteint 288 mm, comparable à celle d'un sol limoneux épais du Santerre (280 mm de RU sur une profondeur de 150 cm).

**Tableau 2. Propriétés de stockage de l'eau dans la microporosité du sol, par horizon et par profil, d'après Ballif (1981)**

profondeur		Hum. pondérale seuil (g eau /100 g sol)		Masse vol. (kg/dm <sup>3</sup> )	stock total d'eau (mm)		stock d'eau utile à la plante (mm)	
Haut (cm)	bas (cm)	Hcc	HPf <sub>4.2</sub>		/horizon	cumul	/horizon	cumul
0	25	21,0	11,0	1,25	66	66	31	31
25	60	20,0	7,5	1,60	112	178	70	101
60	90	21,6	3,5	1,55	100	278	84	186
90	120	26,0	1,6	1,40	109	387	102	288
120	150	26,0	1,6	1,40	109	497	103	391

Le stock total d'eau à la capacité au champ (Hcc) est moindre qu'un sol limoneux épais (387 mm vs 505 mm avec une profondeur d'enracinement de 120 cm vs 150 cm), ce qui leur donne une plus grande sensibilité à la lixiviation des solutés (Beaudoin et al., 2005).

En conclusion, ce dispositif est représentatif des sols de craie à la différence d'une faible teneur en matière organique. Les sols de craie sont plus sensibles à la lixiviation à cause d'une moindre

capacité totale de stockage en eau que les sols limoneux épais (Beaudoin et al., 2005) et d'un moins bon synchronisme entre les besoins des plantes et la minéralisation d'azote par le sol. Les résultats de cette expérimentation auront donc tendance à maximiser les risques liés à l'épandage d'effluents liquides.

### ***Climat et drainage***

Les données acquises de façon continue sur le site depuis 1974 ont permis d'accéder à une rétrospective longue des données climatiques et de leur évolution (Beaudoin et al., 2016). Le site d'étude appartient à la vaste zone du climat tempéré océanique dégradée par l'influence continentale (Joly et al., 2010). En sol cultivé, la moyenne du drainage est de 115 mm an<sup>-1</sup>. Cependant, il est difficile de prendre cette valeur comme espérance du drainage actuellement ; de 150 mm an<sup>-1</sup> dans les années 1970, elle peut être estimée à 75 mm an<sup>-1</sup> en 2012.

#### ***Conduite du dispositif***

Après une réhydratation du profil suite à la mise en place du matériel, un gazon de ray-grass anglais a été implanté début septembre 2013 et est régulièrement fauché et les résidus de fauche restitués. Ces parcelles ne font pas l'objet de traitements phytosanitaires pour éviter tout impact sur la qualité des lixiviats.

#### ***Précipitations et irrigation***

Les précipitations de la première année d'expérimentation ont été marquées par une importante pluviométrie automnale, qui a suivi l'apport d'effluent sur la deuxième quinzaine du mois d'octobre et, ont été soutenues jusqu'en février 2014. Les températures ont été proches de la normale. Le drainage de cette première année a donc débuté assez rapidement à l'automne. Les faibles précipitations sur les mois de mars et avril ont rapidement mis fin à la période drainage ce qui se traduit par une pente négative du cumul P-ETP, dont le cumul est très proche de la normale des 41 ans observés (+19 mm).

Les précipitations de la deuxième campagne d'expérimentation, de 2014/2015, ont été assez faibles en automne, entraînant une restauration tardive de la réserve hydrique des sols, d'autant plus que les températures ont été plus fortes que la normale. Le drainage n'a débuté qu'en janvier soit environ 2 mois plus tard que l'année précédente. Le cumul P-ETP en mars faisait apparaître un déficit de 52 mm par rapport à la normale. Afin de combler ce déficit de cumul et favoriser un allongement de la phase de drainage en début 2015 assurant une migration normale des solutés, un apport d'eau potable à partir du réseau a été réalisé avec une lame d'eau de 100 mm fin mars 2015.

Les conditions climatiques de la troisième campagne d'expérimentation, de 2015/2016, ont été proches de la normale en automne et sortie d'hiver, conduisant à un léger déficit P-ETP quasi normal. Le drainage n'a cependant débuté que fin janvier, probablement à cause du déficit hydrique du sol issu de la campagne précédente. Constatant que le drainage moyen à la fois sous les micro-parcelles et sous le lysimètre 5, était deux fois moindre que normale à la mi-mars, deux apports d'eau potable, d'une lame d'eau de 100 mm chacun, ont été pratiqués mi-mars et début avril 2016. Les conditions printanières 2016 ont été ensuite exceptionnelles. Les fortes précipitations des mois de mai et juin, associées à un faible rayonnement solaire ont contribué à une reprise notable du drainage.

### ***Quantités et qualité des apports hydriques***

#### ***Épandage des effluents***

L'épandage des effluents a été effectué le 14 octobre 2013 sur la base des volumes moyens réellement épandus sur les périmètres des sites industriels (

Tableau 3). L'origine des effluents a été choisie en commun accord avec l'Agence de l'Eau Seine Normandie, par filière sur l'historique analytique des sites mettant en évidence les teneurs les plus élevées pour les éléments recherchés notamment les ETM et le caractère inhibiteur par rapport aux daphnies.

**Tableau 3. Lames d'eau épandues par traitement**

Traitement (Effluent)	Origine	lame d'eau
Sucrierie	Arcis sur Aube	75 mm
Distillerie	Bazancourt	70 mm
Déshydratation	Pauvres	30 mm
Féculerie	Haussimont	25 mm
Choucrouterie	Bignicourt	30 mm
Témoin		0 mm

#### *Analyses des effluents et des lixiviats*

Après collecte des échantillons sur le site de Fagnières dans un flaconnage spécifique, les échantillons sont transférés du site de Fagnières au laboratoire dans des glacières conformément aux prescriptions de la norme NF EN ISO 5667-3 et sont déposés le jour même au laboratoire d'analyse.

#### *Qualité des eaux AEP utilisées en irrigation après épandage*

Les eaux d'irrigation provenaient toutes du réseau public. La connaissance de la qualité de ces eaux était nécessaire dans le cadre de cette étude. Neufs analyses ont été réalisées pour caractériser les substances suivies dans cette étude.

Les teneurs moyennes sont : en sodium, 8 mg/l ; en chlorures, 20,5 mg/l ; en nitrates, 22,7 mg/l. Les analyses montrent, pour certains autres paramètres, des teneurs qui dépassent les limites de quantification : AOX teneurs de 0,01 à 0,03 mg/l Cl soit une à trois fois la limite de quantification (LQ) ; le cuivre et le zinc dépassent dans plusieurs analyses la LQ sans dépasser 2LQ ; 4 analyses sur les 9 montrent un effet toxique pour les daphnies.

#### *Qualité des effluents épandus*

Les effluents épandus ont fait l'objet d'un prélèvement pendant l'épandage pour analyse. Les résultats de ces analyses (Tableau 4) sont conformes pour leur charge en carbone et en azote aux valeurs habituellement mesurées sur les différents effluents à l'exception de l'effluent de déshydratation. En effet, le site LUZEAL de Pauvres à court d'effluent a livré sur le site expérimental un fond de bassin très chargé en matières en suspension, non représentatif des effluents habituellement conduits à l'épandage.

**Tableau 4 : Caractéristiques des effluents épandus**

			Sucrierie	Féculerie	Déshy	Choucrouterie	Distillerie
Potentiel Hydrogène	unité pH	NF EN ISO 10523	6,1	5,8	7,4	3,8	9,3
Température de mesure du pH	°C	NF EN ISO 10523	19,7	19,8	19,4	19,2	19,5
Demande chimique en oxygène (DCO)	mg/l O <sub>2</sub>	NF T 90-101	22480	10135	61238	13490	2242
Demande biochimique en oxygène (DBO <sub>5</sub> )	mg/l O <sub>2</sub>	NF EN 1899-1	5070	6820	10900	8020	1370
Matières en suspension	mg/l O <sub>2</sub>	NF EN 872	166500	3000	66800	440	160
Carbone organique dissous (<0,45µm)	mg/l	NF EN 1484	2300	28000	690	4100	600
Carbone organique total (COT)	mg/l	NF EN 1484	6700	36000	5700	4400	630
<b>Cations</b>							
Phosphore total	mg/l	NF EN ISO 11885	110,7	35,2	217,8	26,3	<8,5
Magnésium (mg)	mg/l	NF EN ISO 11885	443	67	172	20,7	<11,5
Sodium (Na)	mg/l	NF EN ISO 11885	40,1	48,7	140	1159	48,3
Potassium (K)	mg/l	NF EN ISO 11885	628	754	394	268	349
<b>Anions</b>							
Chlorures (Cl)	mg/l	NF ISO 9297	84	214	608	6542	85
Azote Kjeldahl (NTK)	mg/l N	NF EN 25 663	636	348	3921	266	25

Pour les HAP (Tableau 5), hormis l'effluent de déshydratation, les effluents de féculerie et de distillerie en contiennent à des concentrations très faibles, respectivement du niveau du seuil de quantification uniquement pour le fluoranthène pour l'effluent de féculerie et de deux fois le seuil de quantification pour le fluoranthène et l'acénaphène pour l'effluent de distillerie.

Ces cinq effluents sont caractérisés par l'absence d'isoproturon, de PCB, et d'organo-stanneux.

Les BTEX sont absents dans les effluents de féculerie et de choucrouterie. Pour les autres effluents, le toluène est retrouvé dans les effluents de sucrerie, de déshydratation et de distillerie. Le nonylphénol est retrouvé dans tous les effluents à des teneurs plus ou moins faibles.

Le fait d'avoir un effluent de déshydratation très chargé tant en ETM qu'en HAP permettra de mieux appréhender la filtration par le sol et le pouvoir épurateur de celui-ci à travers la qualité des eaux de drainage collectées.

**Tableau 5 : Teneurs en composés organiques, métalliques, BTEX, et matières inhibitrices**

Effluent	Unités	Méthodes	Limite de quantification	Sucrerie	Féculerie	Déshy	Choucrouterie	Distillerie
Matières en suspension totales	mg/l	Gravimétrie après filtration	2	218800	1080	41600	792	152
<b>Alkylphénols</b>								
Octylphénol	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,10	<0,10	<0,10	<0,10	<0,10	<0,10
Nonylphénols (profil)	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,10	376,49	0,3	36,28	1,7	0,24
<b>Autres</b>								
Bis (2-éthyl hexyl) phtalate (DEHP)	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	1,00	<1	2,38	4,93	2,16	1,66
A.O.X.	mg/l Cl	Coulométrie	0,010	0,100	0,03	0,04	0,47	0,34
<b>BTEX</b>								
Benzène	µg/l	HS/GC/MS	1	<1	<1	<1	<1	<1
Toluène	µg/l	HS/GC/MS	1	3,2	<1	18	<1	56
Ethylbenzène	µg/l	HS/GC/MS	1	<1	<1	2,4	<1	<1
Xylènes (m + p)	µg/l	HS/GC/MS	1	<1	<1	2,3	<1	<1
Xylène ortho	µg/l	HS/GC/MS	1	<1	<1	<1	<1	<1
Xylènes (o + m + p)	µg/l	HS/GC/MS	1	<2	<2	2,3	<2	<2
<b>HAP</b>								
Fluoranthène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	0,01	26,24	<0,010	0,022
Benzo (b) fluoranthène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	16,65	<0,010	<0,010
Benzo (k) fluoranthène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	9,15	<0,010	<0,010
Benzo (a) pyrène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	9,57	<0,010	<0,010
Benzo (ghi) pérylène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	<0,01	<0,010	<0,010
Indéno (1,2,3 cd) pyrène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	<0,01	<0,010	<0,010
Anthracène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	9,57	<0,010	<0,010
Acénaphthène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,010	<0,010	<0,010	<0,01	<0,010	0,021
Naphtalène	µg/l	Calcul (eau filtrée + MES)	0,050	<0,050	<0,050	19,55	<0,050	<0,050
<b>Métaux</b>								
Mercuré total	µg/l Hg	SAA sans flamme après minér	0,5	<0,5	<0,5	1,6	<0,5	<0,5
Arsenic total	µg/l As	ICP/MS après digestion	5	29	15	233	<5	<5
Cadmium total	µg/l Cd	ICP/MS après digestion	2	3	4	30	<2	<2
Chrome total	µg/l Cr	ICP/MS après digestion	5	114	47	1180	19	6
Cuivre total	µg/l Cu	ICP/MS après digestion	5	90	40	3440	12	12
Nickel total	µg/l Ni	ICP/MS après digestion	10	100	50	1060	12	<10
Plomb total	µg/l Pb	ICP/MS après digestion	5	78	28	1930	<5	<5
Sélénium total	µg/l Se	ICP/MS après digestion	4	<4	<4	78	<4	<4
Zinc total	µg/l Zn	ICP/MS après digestion	10	601	1087	28300	1670	256
<b>Analyses écotoxicologiques</b>								
Daphnie CE 50 24h	%	inhibition de la mobilité		11	15,4	15,2	3,8	19,2
Teneur en équitox	m3	inhibition de la mobilité		9,1	6,5	6,6	26	2

## Résultats

### Données de drainage

Le drainage moyen, de 224 mm an<sup>-1</sup> est très variable entre années, avec un écart type moyen interannuel de 104 mm an<sup>-1</sup> tous traitements confondus. Ainsi, pendant les périodes hivernales 2013/2014, 2014/2015 et 2015/2016, les valeurs cumulées de drainage ont varié de 96 à 183, 120 à 169, 267 à 384 mm an<sup>-1</sup> respectivement pour les parcelles avec apport d'effluents. Le volume drainé sous le témoin a atteint respectivement 279, 281 et 483 mm an<sup>-1</sup>.

Les données de drainage acquises sur les parcelles ayant fait l'objet d'un épandage ne sont pas statistiquement différentes, *a contrario* de celles du témoin. Les volumes drainés sous les deux parcelles témoin sont plus importants que sous les traitements avec épandage d'effluent ; cela est probablement dû à des positionnements des plaques des témoins sous des cheminées de craie. Les données des traitements sont cohérentes, en moyenne, avec le bilan P-ETP complété de l'irrigation.

## Suivi des traceurs et des paramètres agro-environnementaux

### Le chlorure

Le chlorure est un traceur quasi-conservatif du transfert des solutés. Il provient des effluents mais aussi de l'eau irrigation, avec une teneur moindre. Le suivi des teneurs en chlorures (Figure 1a) différencie deux groupes ; les lixiviats de choucrouterie d'une part et les lixiviats des autres traitements d'autre part. La teneur en chlorures des lixiviats de choucrouterie augmente rapidement dès le deuxième prélèvement pour diminuer ensuite. L'infléchissement de la courbe de teneurs en chlorures sur le traitement Choucrouterie dès le troisième prélèvement indique que le pic de transfert du soluté a atteint rapidement les plaques lysimétriques. La migration du reste du soluté se termine vers le prélèvement n°20, comme l'indique les niveaux des teneurs.

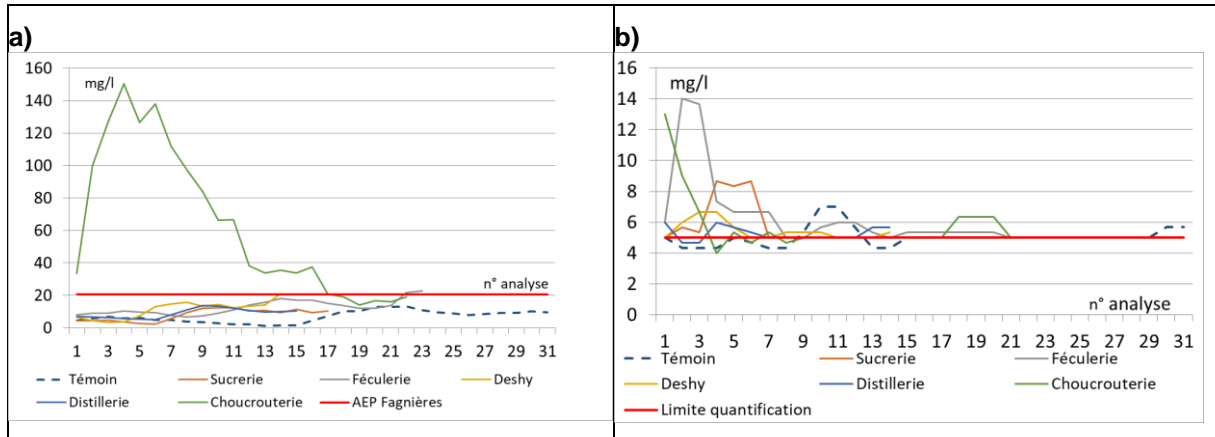


Figure 1 : Teneurs des lixiviats (a) en chlorures et (b) en DCO

### La Demande Chimique en oxygène (DCO)

La DCO des lixiviats (Figure 1b) est mesurée avec la ST-DCO qui a, pour le laboratoire du LDAR 02, une limite de quantification à 2 puis 5 mg L<sup>-1</sup> d'O<sub>2</sub>. A la suite des premières analyses, la teneur en DCO qui avait, au plus, atteint 25 mg L<sup>-1</sup> pour les effluents de féculerie, tend vers 5 mg L<sup>-1</sup> d'O<sub>2</sub>. On observe à deux reprises un pic dans la cinétique de suivi de ce paramètre ; une fois pour les lixiviats du traitement « effluent de féculerie » et l'autre pour le traitement « effluent de sucrierie ».

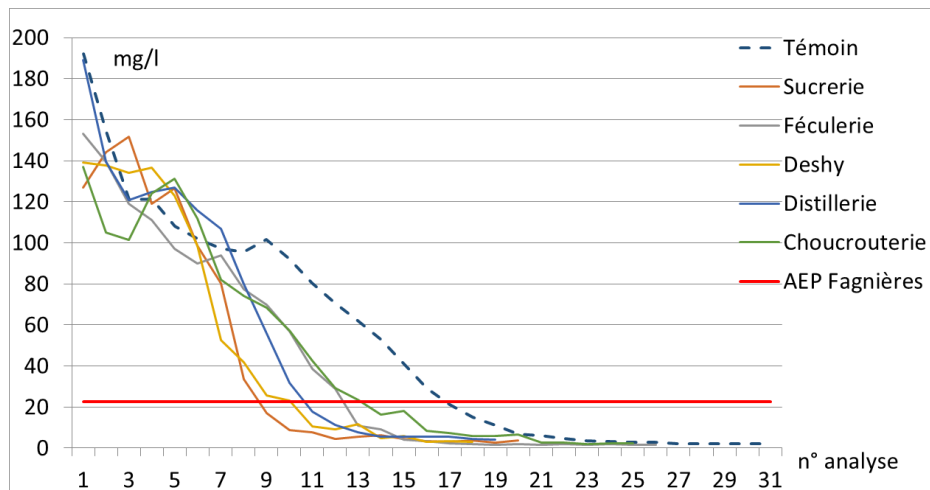
Ces pics peuvent être liés à des cheminements préférentiels qui permettent aux formes solubles du carbone de migrer *a contrario* des formes insolubles comme celles présentes dans l'effluent de déshydratation. Pour connaître le pouvoir épurateur du sol, il est nécessaire de réaliser un bilan de masse entre le flux de l'apport et le flux percolé. Cependant, ce calcul n'est pas possible compte tenu de l'incertitude sur les flux d'eau, ce qui conduit à comparer les valeurs de concentration des différents traitements sans les intégrer par les volumes drainés.

Les valeurs mesurées sous les différents traitements (choucrouterie, déshydratation, distillerie) sont proches de celles mesurées sous le traitement témoin. Ces dernières fluctuant autour de 5 mg L<sup>-1</sup>.

Concernant les concentrations des lixiviats, on peut noter que l'ordre de grandeur du ratio des concentrations entre lixiviats et effluents est d'un facteur 1000 ce qui démontre un fort pouvoir épurateur du sol. Ces résultats sont cohérents avec les données bibliographiques (Robert et al ; 2013) qui mettent en avant le pouvoir épurateur du sol avec des taux d'abattement de la DCO supérieurs à 99 %.

### L'azote

Les effluents ne contiennent pas d'azote nitrique ; cependant, certains contiennent de l'azote ammoniacal et tous contiennent de l'azote organique. Ces deux formes peuvent produire du nitrate mais à une échéance très variable, suivant la forme et l'origine. La mesure du taux de nitrate en sortie des lysimètres permet d'évaluer la capacité du milieu à recycler cet azote.



**Figure 2 : Teneurs en nitrates des lixiviats**

La teneur en nitrate élevée au début de l'expérimentation est due à l'absence de couvert absorbant les nitrates depuis deux décennies (sol travaillé régulièrement et maintenu nu) sur cette parcelle. Cette teneur diminue au fil du temps de façon homogène sur le témoin grâce à l'effet de l'engazonnement, avec fauche restituée mais sans apport d'engrais. Les traitements avec apport d'effluent suivent la même dynamique avec parfois des valeurs plus faibles que le témoin ; ces différences peuvent s'expliquer par un effet d'organisation du nitrate présent initialement dans le profil par la décomposition des matières organiques contenues dans les effluents. Sur le long terme, le nitrate mobilisé par les micro-organismes du sol pour dégrader la charge carbonée n'est pas amené à être lixivié. Toutes les courbes montrent l'efficacité du couvert végétal pour piéger le nitrate natif du sol, apporté par l'irrigation ou minéralisé à partir de l'effluent.

### **Les autres paramètres étudiés**

#### *Les alkylphénols*

Les alkylphénols (AP) sont des substances chimiques très lipophiles et persistantes s'accumulant préférentiellement au niveau des sédiments et du sol. Le 4-nonylphénol et le 4-tert-octylphénol sont les principaux AP produits et commercialisés sous forme de dérivés. Le nonylphénol et ses dérivés éthoxylés (NP-NPE) ont été reconnus comme étant des perturbateurs endocriniens ayant des effets néfastes sur les écosystèmes aquatiques.

L'absence des composés alkylphénols dans les lixiviats montre qu'ils n'ont pas été amenés à être lixiviés et qu'ils ont probablement été dégradés par les micro-organismes du sol comme cela est relaté dans les diverses publications traitant du devenir de ces substances dans les sols.

La minéralisation du NP a été observée dans différents sols agricoles (Careghini et al, 2014). La teneur en nonylphénols peut décroître dans les sols suite à l'action des microorganismes (Mao, 2012). Gibson et al (2010) ont mesuré différentes teneurs en nonylphénols dans les sols montrant qu'ils pouvaient faiblement s'accumuler dans les sols. Les teneurs en nonylphénols diminuent par biodégradation dans les sols sous l'action de micro-organismes.

#### *Le di-éthyl hexyl phtalate (DEHP).*

Les phtalates, particulièrement le DEHP, figurent dans la liste des substances « dangereuses prioritaires » de la DCE établie par l'Union Européenne. Les phtalates sont composés d'un groupement benzénique et de deux groupements carboxylates en ortho et méta dont la chaîne alkyle peut varier (méthyle, éthyle, butyle, hexyle, ...). Plusieurs études ont mis en évidence de forts taux de biodégradation du DEHP dans les sols (Digennarro et al., 2005). La biodégradation n'est pas la seule voie de dégradation du DEHP ; l'hydrolyse et la photolyse peuvent permettre de diminuer les concentrations en DEHP mais avec une efficacité moindre que la biodégradation.

Les résultats montrent qu'il n'y a pas eu de migration du DEHP dans les lixiviats. Si on se réfère à la littérature, cette substance apportée avec les effluents aurait pu être adsorbée voire dégradée dans le sol.

### *Les halogènes organiques adsorbables (AOX)*

Les composés organo-halogénés sont des substances chimiques organiques qui contiennent une ou plusieurs liaisons entre le carbone et un halogène (chlore, brome, fluor, iode). Ils peuvent être issus d'une synthèse industrielle mais il existe aussi des organo-halogénés d'origine naturelle. Le traitement de l'eau par chloration afin de la rendre potable permet d'éliminer de façon simple et à faible coût la plupart des microbes, bactéries, virus et germes. Les acides haloacétiques sont, après les trihalométhanés, la principale famille de sous-produits de chloration dans les eaux de distribution avec une contribution de l'ordre de 15 % à la formation d'AOX (Brunet et al, 2010). Les autres substances générées pour la chloration appartiennent à des familles chimiques nombreuses dont la contribution au paramètre AOX représente environ 60 %.

Les teneurs en AOX mesurées dans les différents effluents varient de  $0,03 \mu\text{g L}^{-1}$  pour l'effluent de féculerie à  $0,47 \mu\text{g L}^{-1}$  pour l'effluent de choucrouterie fortement chargé en chlorures. Les teneurs en AOX dans les lixiviats varient de  $0,01 \mu\text{g L}^{-1}$  à  $0,05 \mu\text{g L}^{-1}$ . Ponctuellement, les valeurs mesurées dans les lixiviats peuvent être supérieures aux teneurs de l'effluent épandu. Ceci démontre bien que la dynamique du chlore dans le sol peut avoir des origines biotiques et abiotiques davantage issues des quantités de chlorures épandues que des quantités d'AOX épandues.

### *Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)*

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont des composés organiques neutres, apolaires et constitués d'au moins deux cycles aromatiques ne contenant que des atomes de carbone et d'hydrogène. Leur origine est soit naturelle soit anthropique. Ils sont rencontrés essentiellement dans des produits complexes formés lors de la combustion incomplète ou de la pyrolyse de matériaux organiques. La persistance des HAP dans les sols est donc en partie la conséquence d'un faible transfert vers la phase aqueuse du sol ou vers le compartiment atmosphérique (Barnier, 2009). Ces caractéristiques font que les HAP ont tendance à s'adsorber sur les matrices solides et notamment les matières organiques. Ces substances sont stables dans le temps mais leur biodégradabilité varie fortement selon les conditions de milieu (Bourcereau, 2007). De nombreux micro-organismes sont capables de dégrader les HAP (microbes, moisissures, champignons, algues) en mettant en œuvre des réactions enzymatiques qui vont permettre l'ouverture des cycles benzéniques (Crone, 2000). Les différents types de dégradations sont largement documentés (Bidaud, 1998; Barnier, 2009).

Les résultats de cette expérimentation montrent une absence de transfert des HAP dans les lixiviats suite probablement, comme le suggère la bibliographie, à des phénomènes d'adsorption sur le sol et plus spécifiquement sur la matière organique.

### *Le benzène, le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes (BTEX).*

Le benzène, le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes (BTEX) sont des composés mono-aromatiques volatiles, inflammables et ayant des propriétés toxiques. Ils sont notamment présents dans les sols. Les études portant sur la biodégradation des hydrocarbures BTEX montrent que le toluène est l'hydrocarbure le plus facilement dégradé, suivi dans l'ordre par le p-xylène, le m-xylène, le benzène, l'éthylbenzène et le o-xylène (Cao et al., 2009).

Concernant les BTEX, seul le toluène a été détecté et quantifié dans les effluents de sucrerie, de distillerie et de déshydratation. Quelle que soit la teneur des effluents épandus, aucune teneur des lixiviats en BTEX ne dépasse la limite de quantification. Ces substances n'ont donc pas migré dans les eaux de drainage.

### *Les éléments traces métalliques (ETM)*

Les teneurs les plus élevées en ETM sont le fait des effluents chargés en terres issues du lavage des productions agricoles (betterave, pomme de terre), teneurs issues du fond géochimique.

Différentes études ont montré l'absence d'impact de ces apports sur les teneurs des sols en ETM et sur la qualité des eaux souterraines. Ces résultats sont validés une fois de plus en montrant qu'il n'y a pas d'entraînement de ces éléments par les eaux de drainage. Que ce soit après apport d'effluents ou sous le témoin, les teneurs en ETM des eaux de drainage montrent des teneurs inférieures aux limites de quantification à l'exception du zinc pour lequel les teneurs mesurées sont très faibles et en cohérence avec les teneurs mesurées dans l'eau potable de l'AEP de Fagnières.



### *Les Matières Inhibitrices (MI)*

Le test daphnies est une mesure de la toxicité aiguë d'échantillons d'eaux résiduaires. Il mesure l'inhibition de la mobilité d'une population de daphnies. Cette mesure écotoxicologique s'effectue selon la norme NF EN ISO 6341, en déterminant la concentration de la solution testée, exprimée en pourcentage, pour laquelle la moitié d'une population de daphnies est immobilisée en 24 h. Cette concentration est la CEi(50) - 24H.

Les résultats montrent que pour l'ensemble des lixiviats collectés, aucun n'a eu un effet inhibiteur sur les populations de daphnies alors que tous les effluents bruts épandus ont eu un effet inhibiteur sur les populations de daphnies. Ces résultats mettent en exergue l'effet de filtration réalisé par le sol sur les matières en suspension et l'effet de matrice biologique qui retient puis dégrade les éléments potentiellement toxiques pour les daphnies.

D'autre part, l'eau de l'AEP de Fagnières apportée en irrigation montrait pour quatre des neuf analyses réalisées au moment de l'apport un effet inhibiteur sur les populations de daphnies. Après transfert de cette eau dans le sol, l'effet inhibiteur n'a pas été retrouvé dans les lixiviats.

### **Conclusions et perspectives**

Les caractéristiques pédo-climatiques du site expérimental sont représentatives des zones d'épandage des effluents agro-industriels étudiés. Elles intègrent l'éventualité de cheminements préférentiels, dont l'impact sur le transfert de solutés est très marginal. Compte tenu de ces caractéristiques, le dispositif mis en place a tendance à maximiser les risques de transfert. Ainsi, les niveaux d'épuration à attendre dans des sols limoneux doivent être supérieurs à ceux qui sont mesurés dans ce dispositif.

La mise en place de 4 plaques lysimétriques par traitement conduit à obtenir des volumes drainés moyens cohérents avec ceux mesurés sous le lysimètre historique de référence. Les volumes drainés sous les deux parcelles témoin sont plus importants que sous les traitements avec épandage d'effluent ; cela est probablement dû à des positionnements des plaques des témoins sous des cheminées de craie. Dans l'objectif d'atteindre un transfert de solutés représentatif de la normale, le constat d'un déficit pluviométrique en deuxième et troisième année d'expérimentation a conduit à procéder à une irrigation de 100 mm en mars 2015 et 200 mm en mars-avril 2016, à partir du réseau d'eau potable. Les lames d'eau drainées en 3 ans atteignent ou dépassent 500 mm d'eau, ce qui permet d'estimer que la majeure partie des solutés épandus, non adsorbables ou non biotransformés, a migré au-delà de la profondeur de prélèvement des solutés. Cette analyse est faite à la fois d'après les références de vitesse de migration du front des solutés et par l'observation de la dynamique d'épuisement du stock de chlorure, apporté par l'effluent ou l'irrigation.

Les suivis de la qualité des lixiviats pour les paramètres agro-environnementaux classiques (DCO, COT, nitrate) montrent que les transferts des solutés non adsorbables ou non biotransformés depuis la surface a eu lieu. La comparaison des concentrations des lixiviats sous les micro-parcelles avec apport d'effluent et du témoin confirme que le pouvoir épurateur du sol est très élevé. Un calcul rigoureux du pouvoir épurateur n'est pas possible, parce que les lysimètres ne sont pas fermés et parce que l'intégration temporelle des concentrations en fonction des volumes drainés est impossible, du fait de l'existence de nombreuses valeurs inférieures aux seuils de quantification.

Les mesures des micro-polluants ont été effectuées sur l'ensemble des volumes collectés. Les évolutions temporelles de concentration des substances montrent pendant ces trois campagnes de mesures :

- 1/ de très faibles variations des AOX, avec des valeurs très proches des limites de quantification, qui sont non corrélées aux quantités apportées par les effluents ;
- 2/ l'absence des substances dangereuses recherchées dans les lixiviats ;
- 3/ l'absence d'impact de l'épandage des effluents sur le paramètre Matières Inhibitrices mesuré sur les lixiviats.

L'étude a permis de montrer, dans les eaux de drainage, l'absence des substances dangereuses et des autres paramètres listés dans le cadre des redevances des Agences de l'Eau et plus largement.

Cette étude ne permet pas de statuer ni sur le niveau d'atténuation naturelle ni sur les risques de transferts de pollution vers la chaîne alimentaire, ou vers le sol, par accumulation, ou vers l'air, par

volatilisation. Cela nécessiterait des études à long terme et à large échelle, s'appuyant d'abord sur la bibliographie et les travaux du PIREN-Seine.

## Remerciements

Nous remercions tous les financeurs : l'Agence de l'Eau Seine Normandie et les industriels partenaires ainsi que les techniciens qui ont participé à la mise en place et au suivi de l'expérimentation et plus particulièrement Eric Venet.

## Bibliographie

Ballif J.L. ; 1980. Caractères et réserves hydriques des sols de craie et sur graveluches en Champagne. Ann. Agron. 31, 473-485.

Ballif J.L. ;1981. Comportement hydrique d'une rendzine brune sur craie sous l'influence de la sécheresse. CR Acad. Agric. T. 67, 395-403

Ballif J.L., Herre C., 1991. 17 années de mesures lysimétriques en sol de craie non remanié : Bilan hydrique 1973-1974 à 1989-1990. Travaux de la station d'agronomie de Châlons sur Marne- N° 202.

Ballif J.L., Guérin H., Muller J.C. ; 1995. Eléments d'agronomie Champenoise. Connaissance des sols et de leur fonctionnement. Rendzine sur craie et sols associés. Esquisse géomorphologique. Edit. INRA. 104 p.

Barnier C. Disponibilités des HAP dans les sols de friches industrielles et influence des conditions rhizosphériques. Thèse INPL ; 2009.

Beaudoin N., Saad J.K., Van Laethem C., Machet J.M., Maucourps J., Mary B.; 2005. Nitrate leaching in intensive agriculture in Northern France : Effect of farming practices, soils and crop rotations. Agriculture, Ecosystems and Environment 111. 292-310

Beaudoin N., Duval J., Venet E., Herre C., Armas-Herrera C., Alavoine G., Aubrion G., Bornet F., Mary B. (2016) Projet ESBIC : rapport de fin de contrat 2013/2015. 54 p + ann.

Bidaud C. Biodégradation des hydrocarbures aromatiques polycycliques. Approche microbiologique et application au traitement d'un sol pollué. Génie des procédés. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, Thèse. 1998. 279p.

Bourcereau L. 2007 Accumulation des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) dans les sédiments de la rivière Doubs. Rapport Final 2007.

Brunet R. (IANESCO), Berne F. et De Laat J. (Laboratoire de Chimie et Microbiologie de l'Eau, Ecole Nationale Supérieure d'Ingénieurs de Poitiers), L'EAU, L'INDUSTRIE, LES NUISANCES; n° 333 - 2010.

Cao B, Nagarajan K, Loh K.C. Biodegradation of aromatic compounds: current status and opportunities for biomolecular approaches. Appl Microbiol Biotechnol. 2009. 85:207–2282

Careghini, A., Mastorgio, A.F., Saponaro, S., Sezenna, E., 2014. Bisphenol A, nonylphénols, benzophenones, and benzotriazoles in soils, groundwater, surface water, sediments, and food : a review. Environ Sci Pollut Res 22:5711-5741

Crône M. Diagnostic de sols pollués par des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) a l'aide de la spectrophotométrie UV. Thèse INSA Lyon.2000.

DiGennaro P, Collina E, Franzetti A, Lasagni M, Luridiana A, Pitea D, Bestetti G (2005) Bioremediation of diethylhexyl phthalate contaminated soil: a feasibility study in slurry- and soil-phase reactors. Environmental Science & Technology 39 (1):325-330

Dutil P., Muller J.C. (1979). L'épandage des eaux résiduaires des industries agricoles en Champagne Crayeuse. C.R. Acad. Fr., 989-1005.

Gibson R, Durán-Álvarez J, León Estrada K, Chávez A, Jiménez Cisneros B (2010) Accumulation and leaching potential of some pharmaceuticals and potential endocrine disruptors in soils irrigated with wastewater in the Tula Valley, Mexico. Chemosphere 81:1437–1445

Joly D., Brossard T., Cardot H., Cavailles J., Hilal M., Wavresky P., 2010. Types of climates on continental France, a spatial construction. Cybergeog. Eur. J. Geogr 501. <http://www.cybergeog.revues.org/index23155.html>

Mao, Z., Zheng, X-F., Zhang, Y-Q., Tao, X-X., Yan Li, Y., Wang, W, (2012). Occurrence and Biodegradation of Nonylphenol in the Environment. *Int. J; Mol. Sci*, 13, 491-505.

Robert P., Venet E., Duval J., Aubrion G., Beaudoin N.; 2013. Réalisation d'une étude d'impact d'apport d'effluent en cases lysimétriques. Rapport d'étude pour Cristal Union- AESN, 22p + annexes.