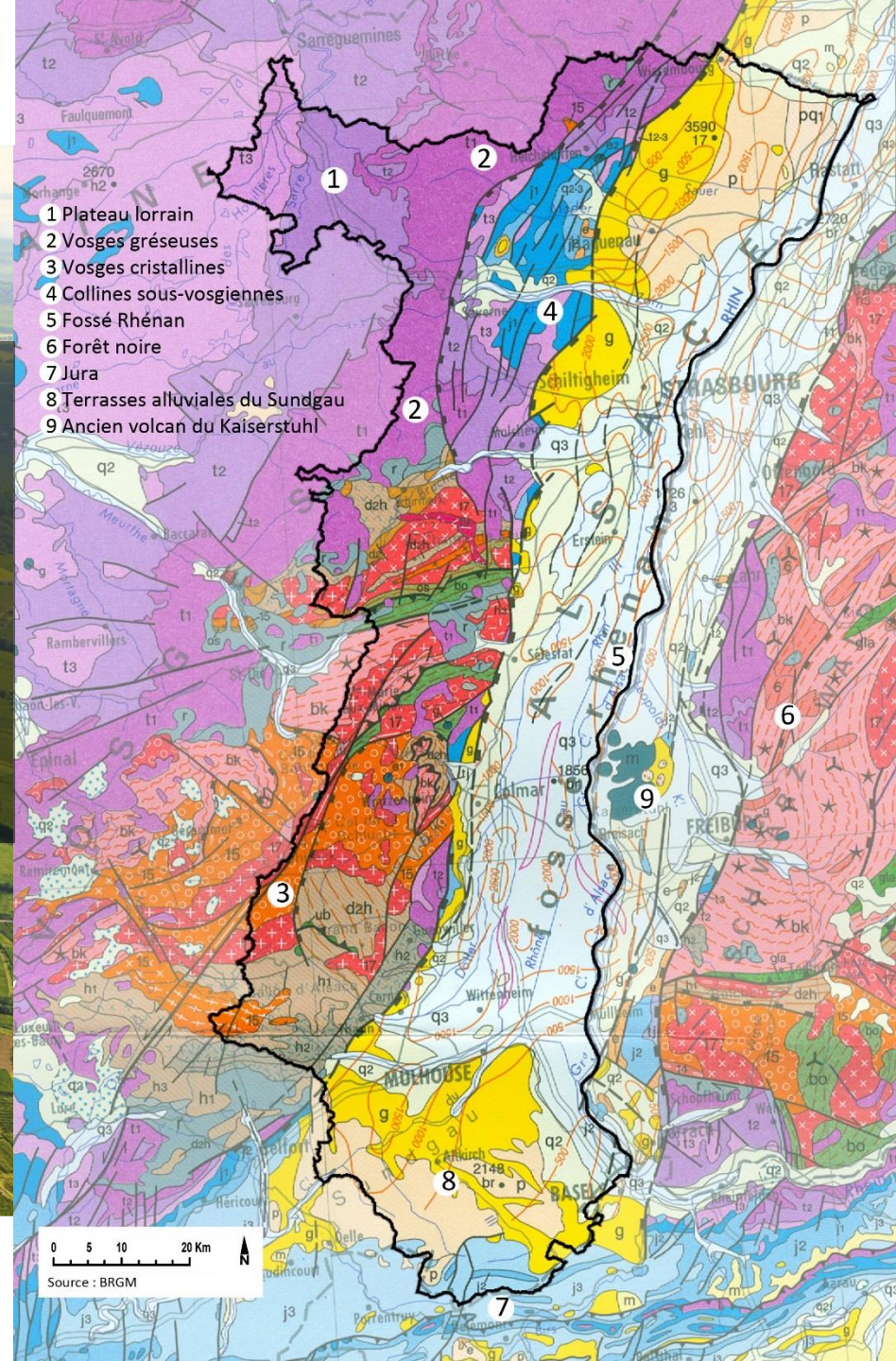




RÉSULTATS DE L'ÉTUDE PRESSIONS-IMPACTS SUR LES MICROPOLLUANTS ÉMERGENTS

B. Lopez, C. Auterives, A. Togola
28 janvier 2020



Les micropolluants émergents

Def. : POLLUANTS EMERGENTS

- ✓ Molécules dont l'intérêt qu'on leur porte est émergent (les molécules peuvent être anciennes)
- ✓ Molécules non réglementées dans les milieux aquatiques et les ESO en particulier (absence de valeurs seuils)
- ✓ Molécules actuellement peu, pas ou mal suivies dans l'environnement

Parmi les molécules recherchées dans ERMES

- Substances pharmaceutiques = absence de valeur seuil ESO et EDCH
- Molécules issues de produits de la vie courante
- Quelques substances à usage industriel (dont certaines à usage ancien, ex. perchlorates)

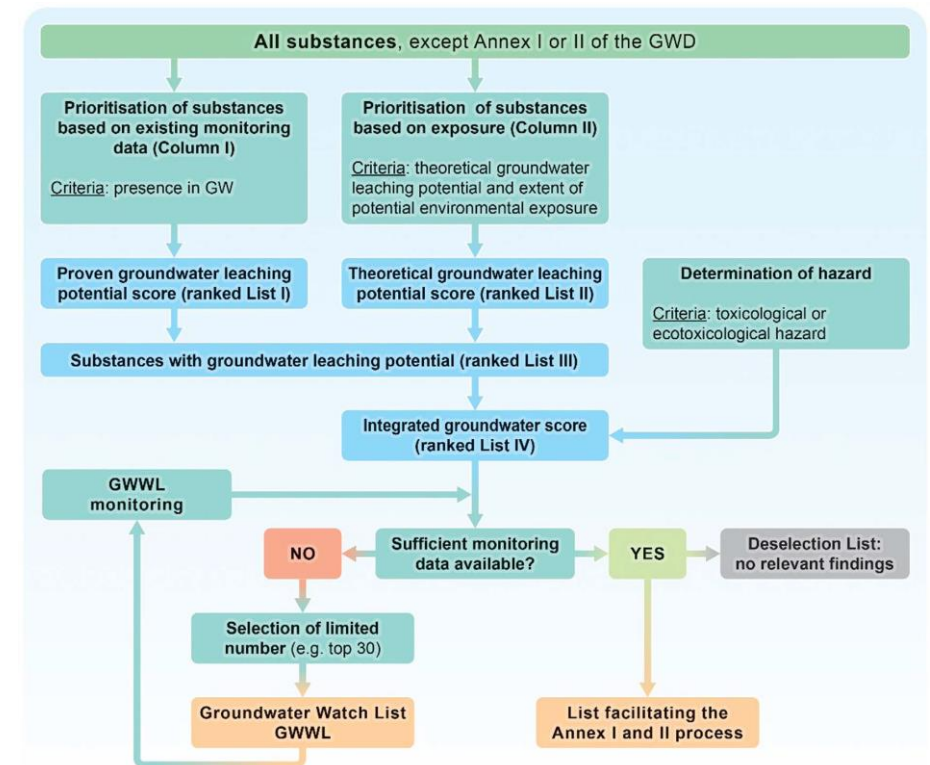
Focus sur les molécules dont le risque de lessivage vers les eaux souterraines est élevé

- Propriétés intrinsèques des molécules
 - Persistance (DT_{50})
 - Mobilité (K_{oc})
- Faible efficacité des STEU
- Propriétés du milieu et quantités utilisées/rejetées

Priorisation

Ex. d'exercice de priorisation pour la constitution de la watch list eaux souterraines.

Lapworth et al., ERL, 2019



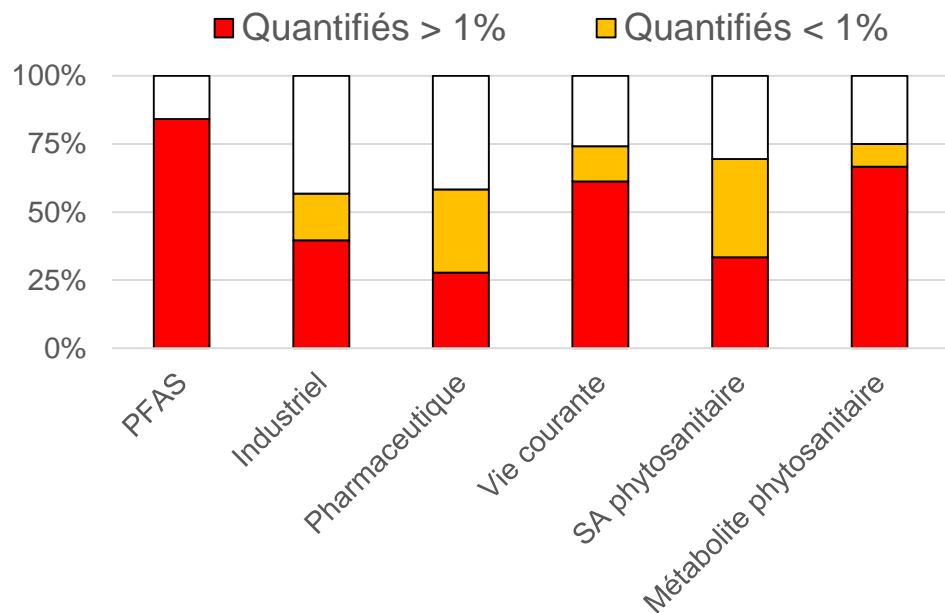
Résultats campagne ERMES sur la nappe d'Alsace Août-Octobre 2016

Jeu de données initial

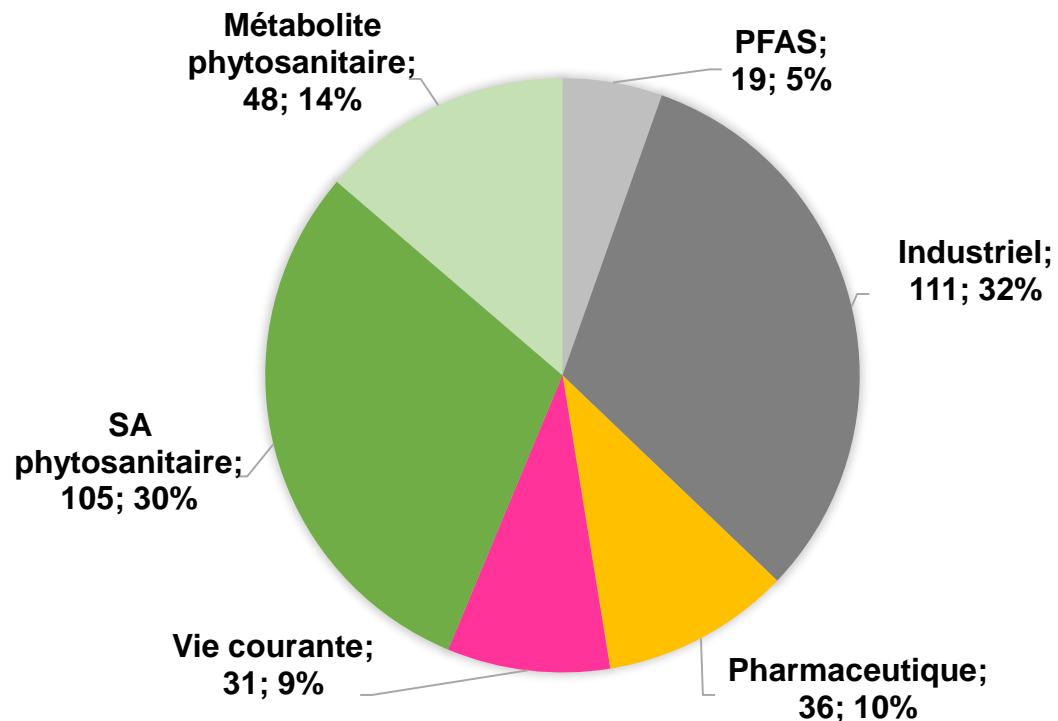
- 409 paramètres analysés
- 825 points de prélèvement
- 222 178 résultats d'analyses

⇒ dont **350 micropolluants** analysés (Pesticides, Pharmaceutiques, Industriels, Vie courante, PFAS)

⇒ environ 180 000 données



Pourcentages de micropolluants quantifiés en nappe d'Alsace



Micropolluants recherchés en nappe d'Alsace lors de la campagne 2016

⇒ Une densité de points échantillonnés en eau souterraine et un nombre de paramètres analysés rarement atteints à l'échelle d'un aquifère régional

Résultats campagne ERMES sur la nappe d'Alsace Août-Octobre 2016

- Indicateur de contamination à l'échelle de la nappe d'Alsace

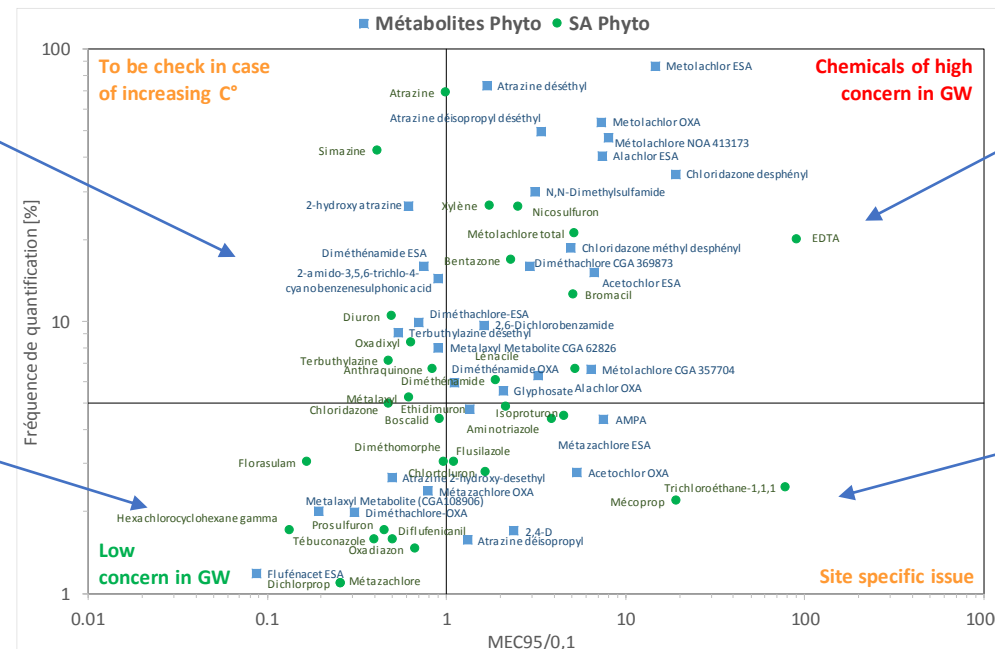
Indicateur croisé Occurrence = f(Niveau de contamination)

- Vision agrégée et synthétique de l'ensemble des résultats à l'échelle de la nappe d'Alsace
- Classification des molécules selon le niveau de préoccupation
- Utile pour le choix des molécules sur lesquelles réaliser l'analyse pression impact

$$\Rightarrow \text{Fréquence de quantification} = f \left\{ \frac{MEC95}{VS \text{ ou } TTC_{0,1\mu g/L}} \right\}$$

Alerte si les concentrations augmentaient

Faible niveau de préoccupation

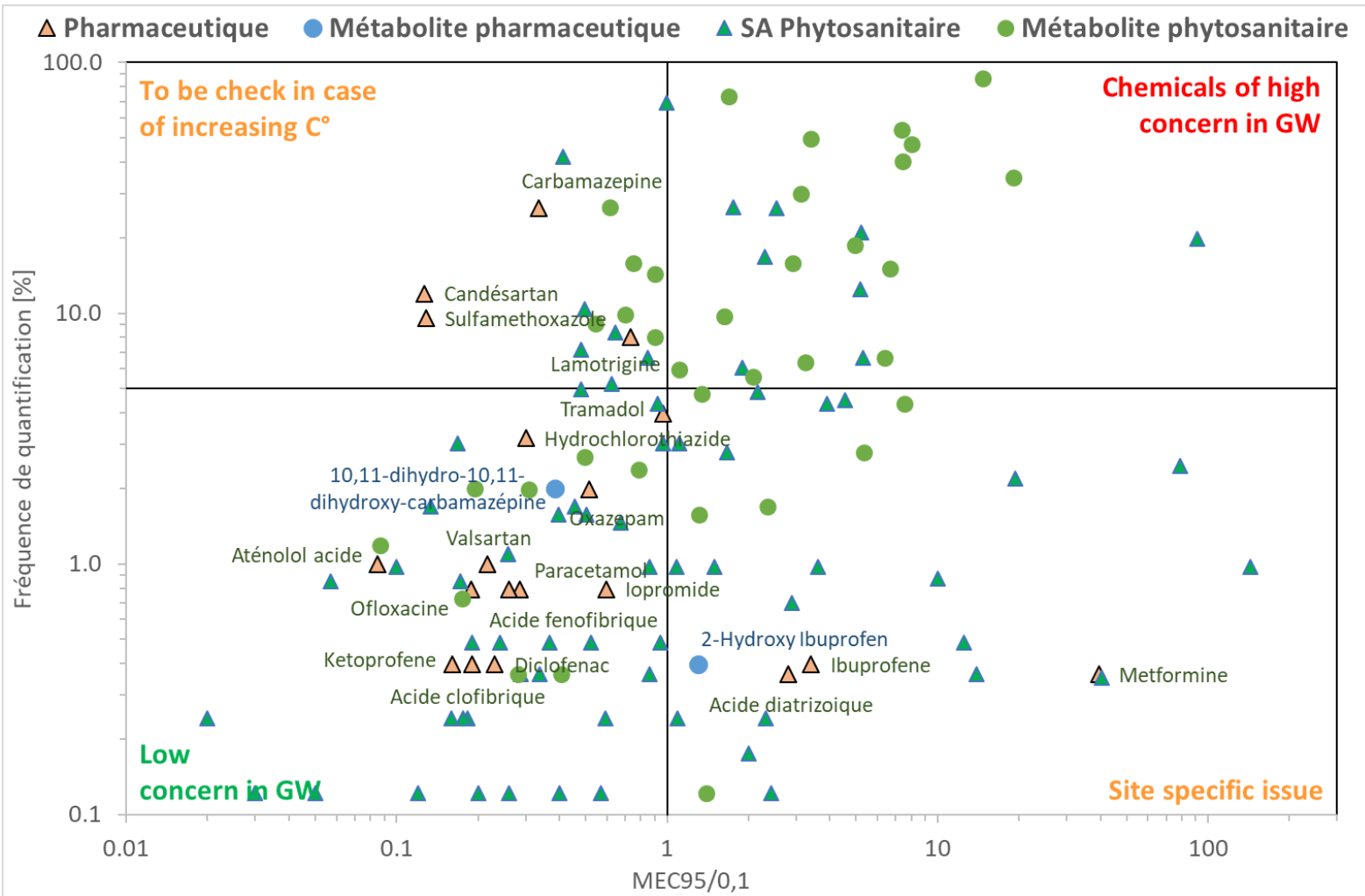


Fort niveau de préoccupation à l'échelle de la nappe d'Alsace

Problématique sites spécifiques

Focus sur quelques micropolluants émergents

Les substances pharmaceutiques



➤ Fréquences de quantification pouvant être élevées

- Carbamazépine
- Candésartan
- Sulfaméthoxazole
- Lamotrigine

➤ Voies de pénétration dans l'environnement principalement STEU

➤ Concentrations faibles comparées aux substances phytosanitaires

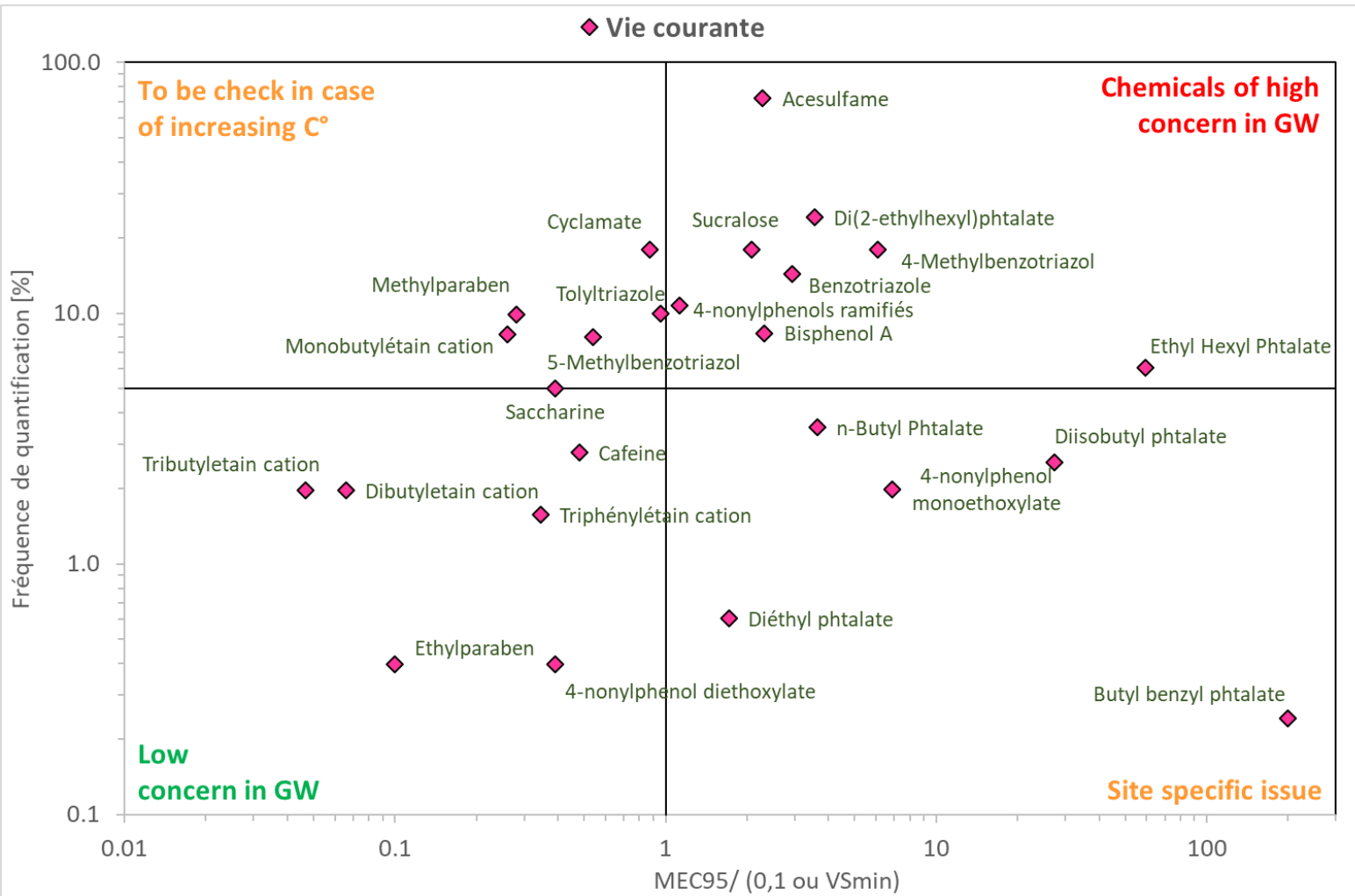
- Quantités utilisées moindres
- Voies de dissémination plus contrôlées

➤ Mais pas de valeurs seuils dans les ESO

⇒ Quid des effets écotoxiques ?

Focus sur quelques micropolluants émergents

Les substances issues de produits de la vie courante



➤ 3 familles à « fort niveau de préoccupation »

- Phtalates (plastifiants, PVC)
- Benzotriazole et tolyltriazole
- Edulcorants (acésulfame, sucralose...)

➤ Voies de pénétration dans l'environnement multiples (STEU + diffuses)

➤ Effets toxiques et écotoxiques souvent pas ou mal connus + effets cocktails ???

➤ Pas de valeurs seuils dans les ESO

⇒ Mise en œuvre de mesure impossible ? (édulcorants)

Résultats campagne ERMES sur la nappe d'Alsace Août-Octobre 2016

Attention : difficulté de classification de certaines substances

→ Selon les usages :

- Usages multiples (industriels et domestiques)
- Périodes d'autorisation selon les usages variables

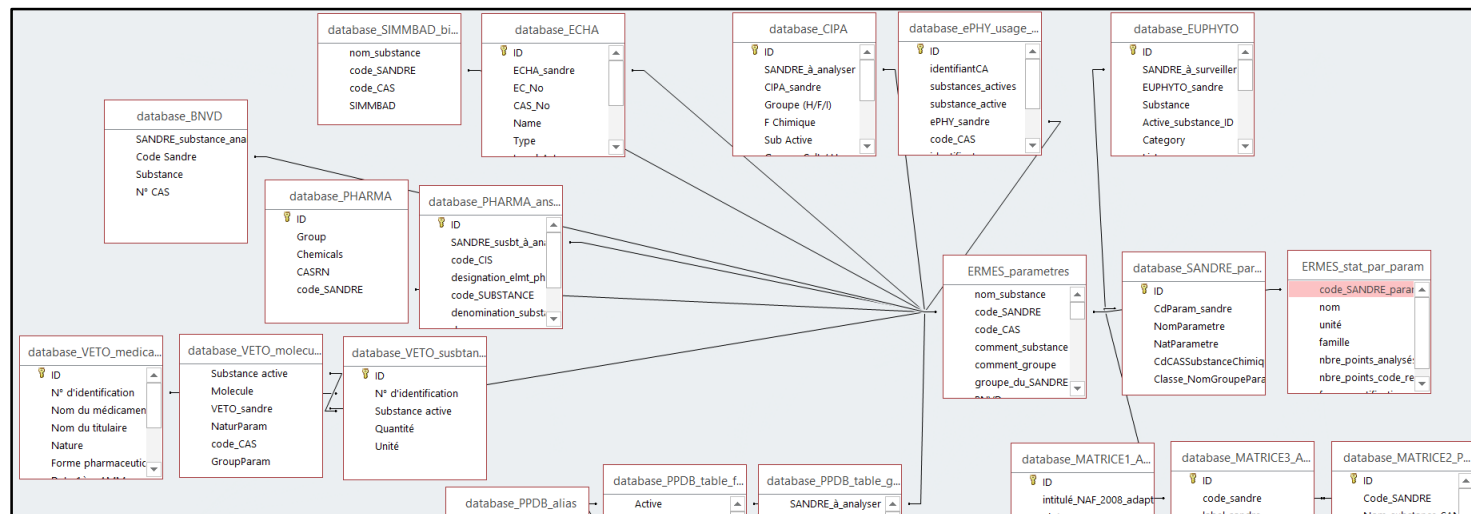
Clarification proposée par la mise à disposition d'une base recensant les usages actuels et passés des molécules recherchées dans ERMES

● 409 substances

- Format ACCESS
- Liens complets :

Molécules ⇔ Réglementations EU

Molécules ⇔ Usages EU, Fr



Info générale substance	
nom_substance	
code_SANDRE	
code_CAS	
regroupement	

Info usage / origine potentielle dans l'environnement	
usage_pesticide	détail
usage_industriel	détail
usage_autre	détail
usage_interdit	détail
commentaires	détail

Classification des substances	
subst_activ_phyto	oui/non
category_phyto	détail
industrie	oui/non
pharmaceutique	oui/non
veterinaire	oui/non
produit de la vie courante	oui/non
metabolite	Met ou isomère
biocide	oui/non

Résumé résultats ERMES	
freq_quanti_napalsace	
unite_conc	
nbre_pts_analyses	
conc_max	
percentil95	

Info valeurs guides	
valeur_seuil_eso_txt	
valeur_seuil_eso_num	
PNEC_eau_µgL_2013	
Etude_PressionImpact	

VOLET IMPACT-PRESSION

Objectif : faire le lien entre l'impact observé dans les eaux souterraines et la pression anthropique en surface

Méthode

1- Qualification de l'impact : [concentration] > LoQ = présence dans les eaux souterraines = impact

- Identification des points impactés
- Cartographie à l'échelle de la nappe d'Alsace

2- Recherche de la pression potentielle

- Identification des sources d'émission des polluants émergents
- Usages des molécules – lieux d'émission

3- Etablissement du lien entre la pression potentielle et l'impact observé

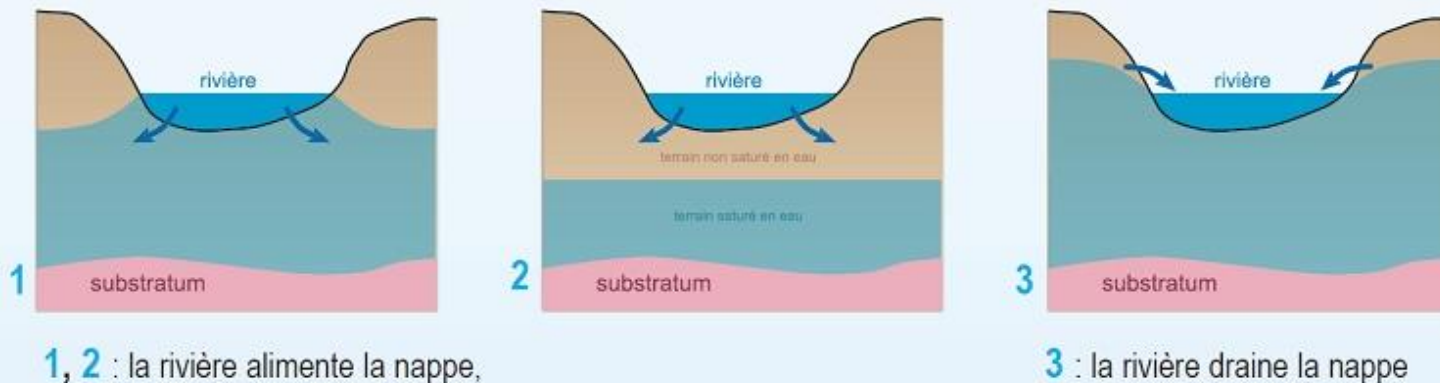
- Reconstituer le schéma de transfert des polluants de leur zone d'émission vers les milieux récepteurs

VOLET IMPACT-PRESSION

SCHEMA CONCEPTUEL DU TRANSFERT DES SUBSTANCES DEPUIS LES STEU VERS LES EAUX SOUTERRAINES

- STEU connectées aux réseaux des eaux usées urbaines et industrielles pour traitements des effluents
- Certaines substances dites récalcitrantes ne sont ni adsorbées, ni dégradées et ce en raison de propriétés intrinsèques spécifiques
- Milieux récepteurs = rivières à proximité immédiate, (plus rarement points d'eau, zones humides ou bassins d'infiltration artificiels)
- Relations possibles avec d'autres compartiments du milieu aquatique, dont les eaux souterraines (nappes libres)
 - dépendent du contexte hydrogéologique
 - peuvent évoluer dans le temps en fonction de l'évolution du niveau des nappes et celui des rivières

Représentation schématique des échanges nappe / rivière :



Cas 1 et 2 :

Risque majeur de transferts de polluants des eaux de surface vers les eaux souterraines

Enjeu :

Identifier les secteurs et les périodes où les eaux de surface alimentent les nappes

Échanges nappe/rivière. Document graphique APRONA, s.d. Coll. Association de Protection de la Nappe phréatique d'Alsace <http://www.aprona.net/>.

VOLET IMPACT-PRESSION

La carbamazépine

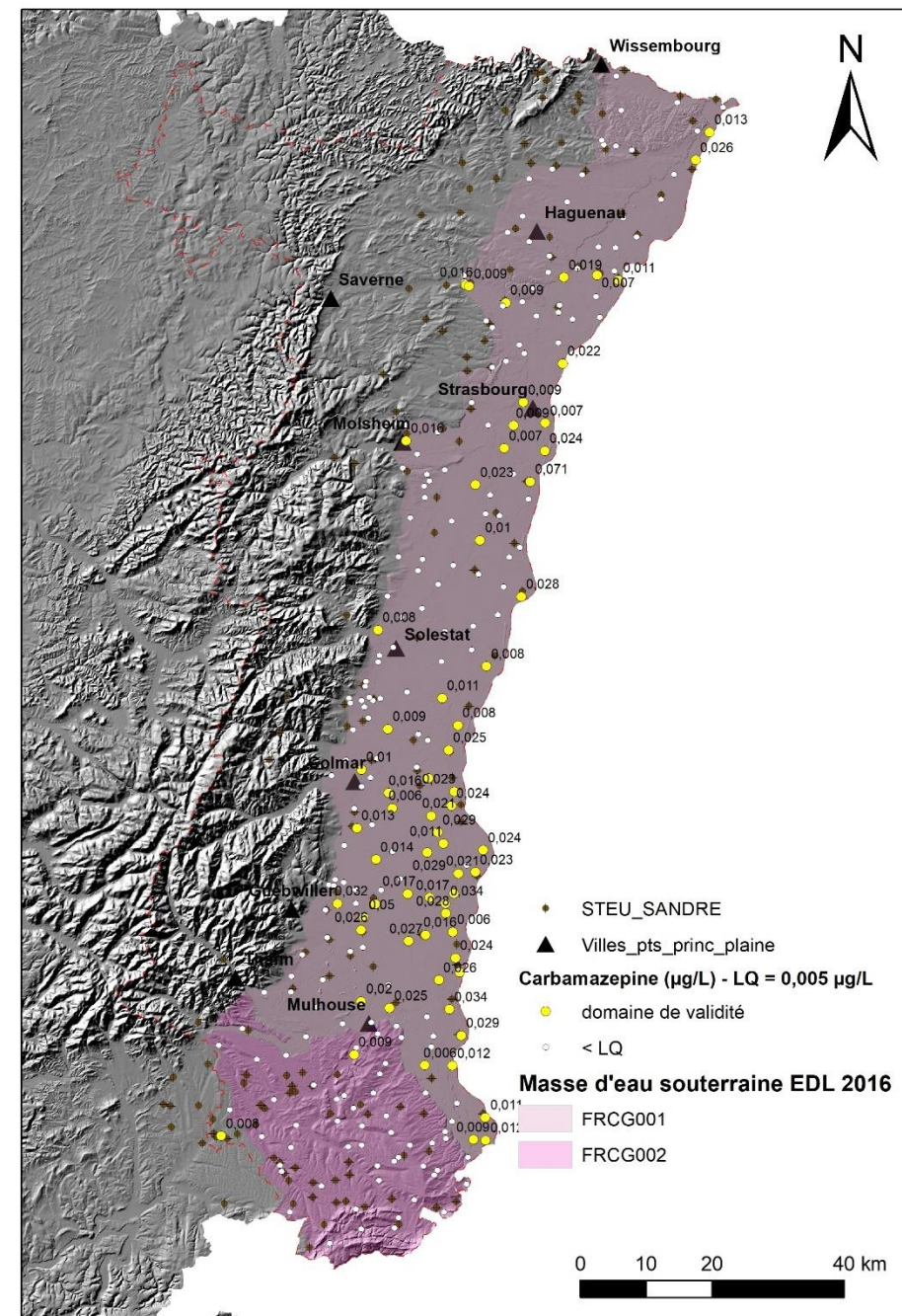
1- Qualification de l'impact

Code param.	Nom	N analyses	N quanti	LQ [$\mu\text{g/L}$]	moyenne quanti [$\mu\text{g/L}$]	médiane [$\mu\text{g/L}$]	max [$\mu\text{g/L}$]	FQ [%]
5296	Carbamazépine	252	66	0.005	0.018	0.016	0.071	26.2
7597	10,11-dihydro-10,11-dihydroxy-carbamazépine	100	2	0.005	0.024	0.0244	0.04	2
6725	Carbamazépine epoxide	252	0	0.02				0

2- Pression potentielle

- Médicament anticonvulsivant, thymorégulateur et antimaniaque
- Usages = milieux hospitaliers + domestiques
- Très persistant ($DT50_{\text{sol}} = 495$ jours)
- Modérément mobile ($\log K_{\text{OC}} =$ de 3,6 à 2,1)

⇒ **STEU + assainissement non collectif (inclus fuite des réseaux)**



VOLET IMPACT-PRESSION POLLUTION PONCTUELLE STEU

- Exemple de la carbamazépine

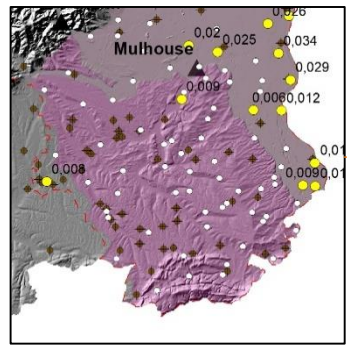
Lieu d'émission = STEU

Importance du lieu de rejet

→ Hypothèse = rivières à proximité immédiate de l'installation

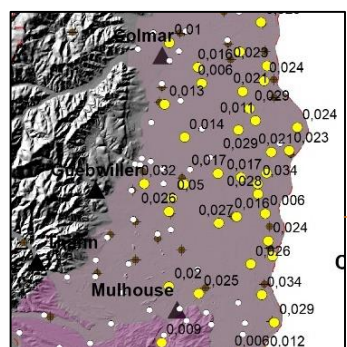
➤ Forte densité de STEU dans le secteur Sundgau

Mais pas d'impact observé dans les ESO...

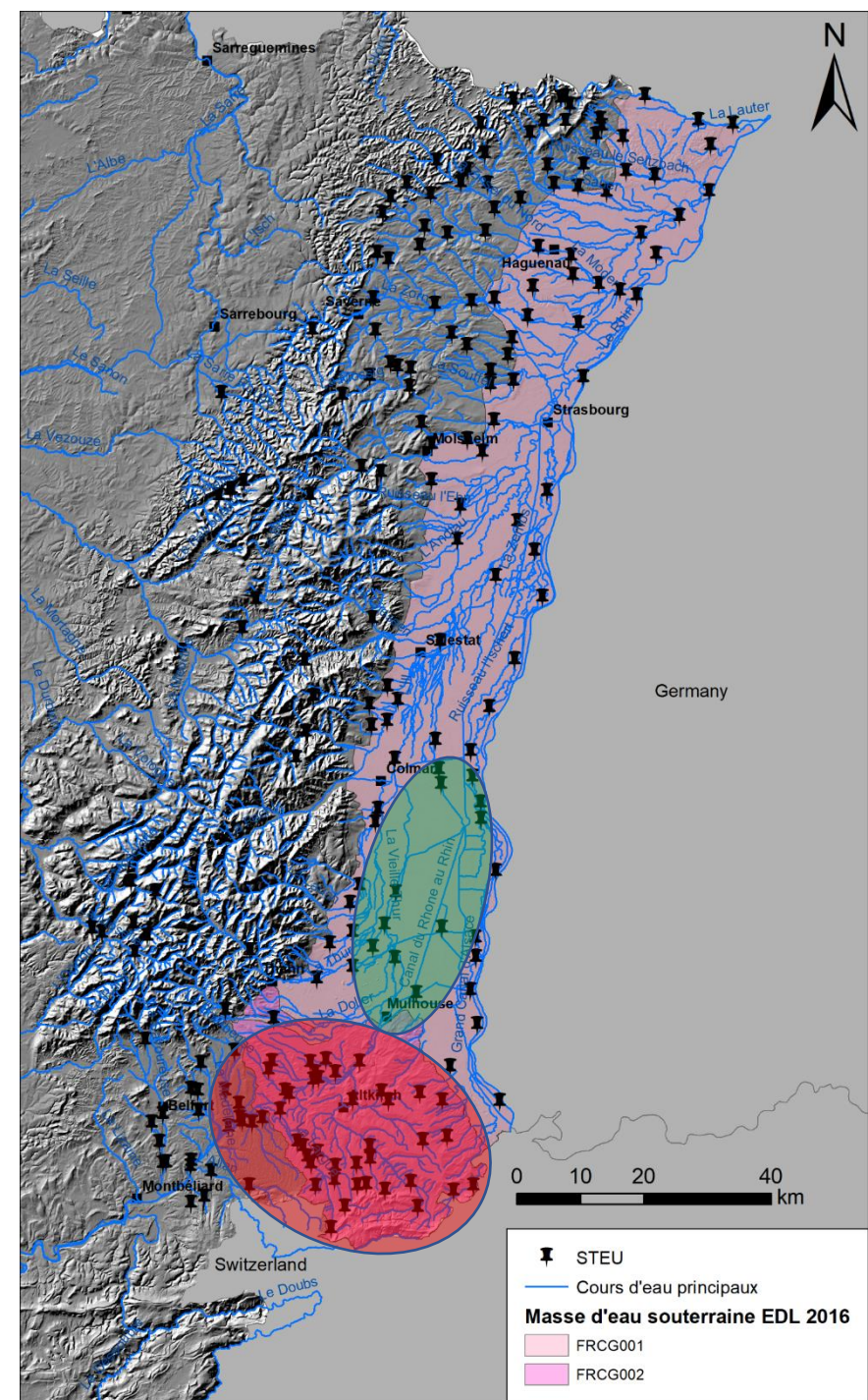


➤ Faible densité de STEU dans le secteur Mulhouse - Colmar

Mais impact important dans les ESO...



La seule présence d'une STEU n'explique pas l'impact en ESO



VOLET IMPACT-PRESSION POLLUTION PONCTUELLE STEU

● Exemple de la carbamazépine

Recherche d'un indicateur d'impact des STEU sur les eaux de surface

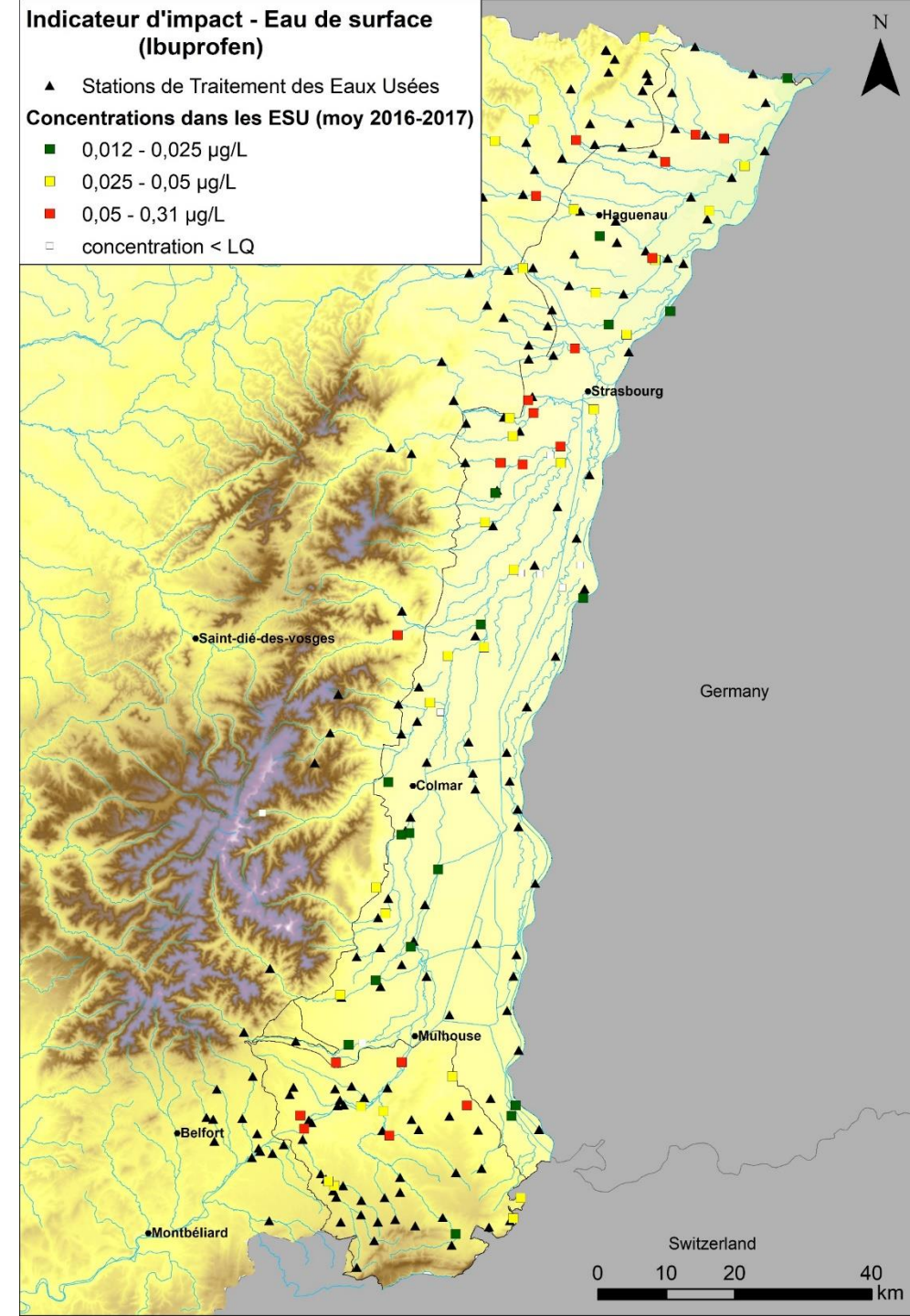
⇒ Base de données eaux de surface = NAIADES
<http://www.naiades.eaufrance.fr/>

⇒ Critères

- 1) même famille d'usage
- 2) mêmes propriétés de transfert
- 3) densément recherchée dans les eaux de surface

⇒ **Ibuprofène**

- $\log K_{OC} = 3,5 \text{ à } 2,6$
- faible hydrolyse



VOLET IMPACT-PRESSION POLLUTION PONCTUELLE STEU

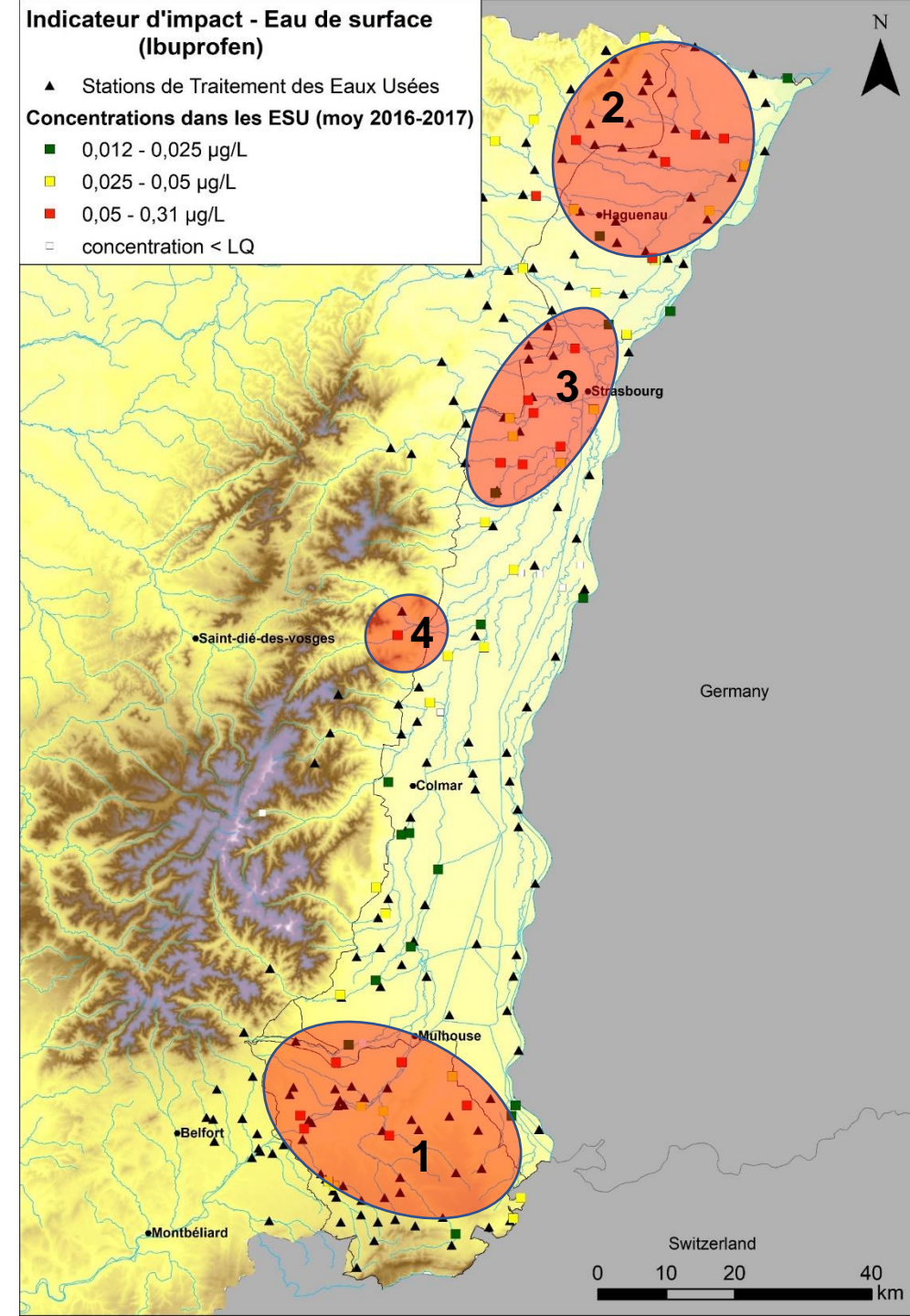
● Exemple de la carbamazépine

⇒ Ibuprofène = indicateur d'impact des produits pharmaceutiques sur les eaux de surface

⇒ Eaux de surface impactées par les rejets de substances issues de produits pharmaceutiques par les STEU

- 1- Sundgau
- 2- Pliocène d'Haguenau
- 3- Amont hydraulique de Strasbourg
- 4- Bordure Centre-Ouest de la nappe d'Alsace

⇒ Ces eaux de surface impactent-elles les eaux souterraines ?



VOLET IMPACT-PRESSION POLLUTION PONCTUELLE STEU

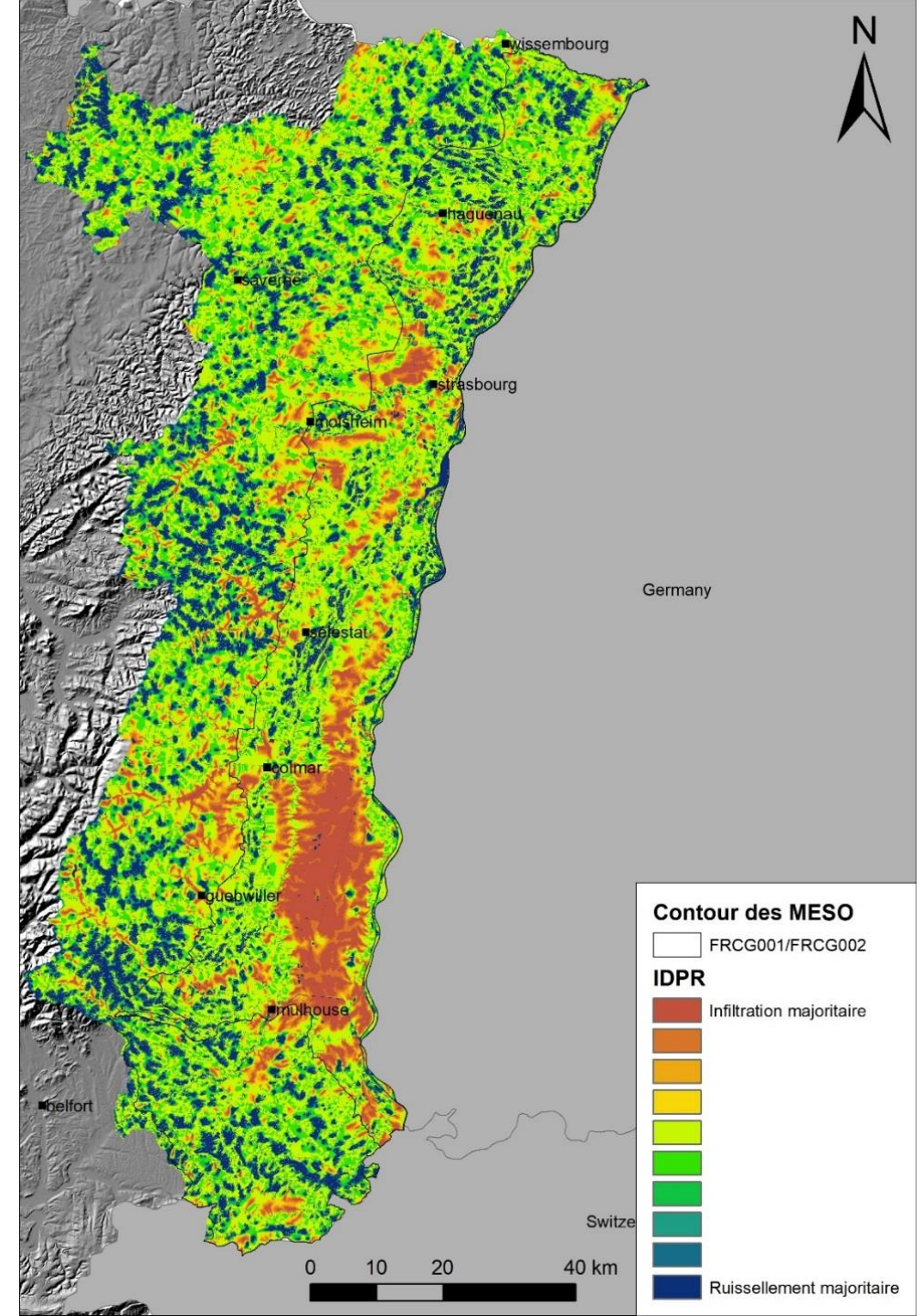
- Exemple de la carbamazépine

Nécessité de faire appel aux relations eaux de surface / eaux souterraines

⇒ Projet dédié proposé pour 2020

⇒ Dans l'attente, et à l'échelle de la nappe d'Alsace, estimation de « l'infiltrabilité » des eaux de surface grâce à l'**Indice de Développement et de Persistance des Réseaux (IDPR)**, rapport BRGM/RP-54148-FR, 2005)

- Estimation de l'influence des structures géologiques et de la composition lithologique du sous-sol sur l'établissement des réseaux hydrographiques
 - Qualification de l'écart entre un réseau hydrographique hypothétique en milieu homogène (pente et morphologie du relief) et le réseau observé
 - Conclusion sur le caractère infiltrant ou ruisselant du milieu souterrain



VOLET IMPACT-PRESSION POLLUTION PONCTUELLE STEU

● Exemple de la carbamazépine

Couplage information lieu d'émission / capacité d'infiltration des eaux de surface vers les eaux souterraines

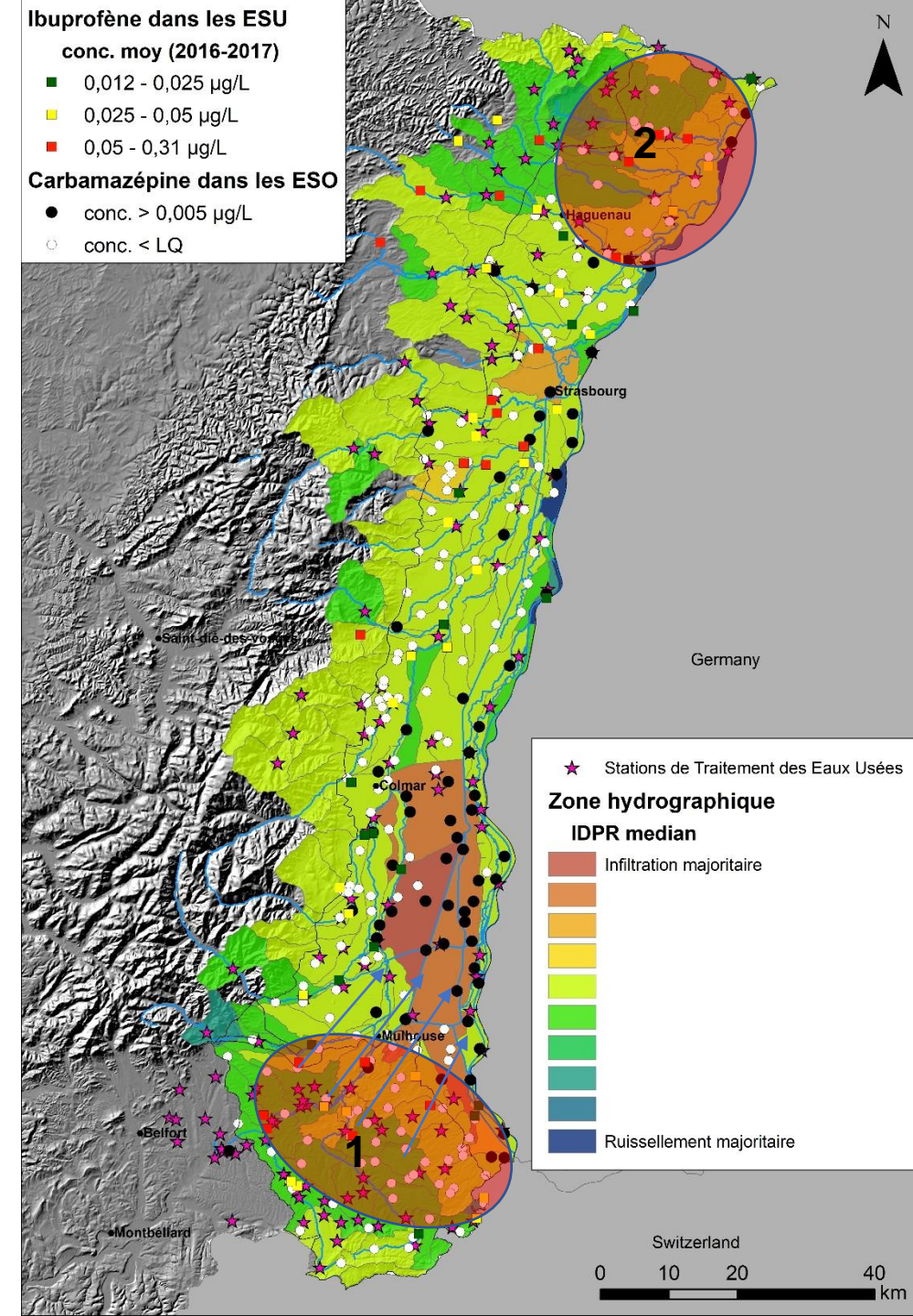
⇒ Reconstitution du transfert de la carbamazépine des sources vers les eaux souterraines

1- Secteur Sud

- Nombreuses STEU dans le Sundgau collectent et transfèrent les substances pharma récalcitrantes vers les ESU.
- Les ESU s'écoulent vers le nord sur des formations géologiques favorables au ruissellement. Les ESO sont protégées (pas d'impact)
- A la transition Sundgau – Nappe d'Alsace, les formations géologiques changent et deviennent favorables à l'infiltration. Les ESU chargées en substances pharma s'infiltrent. Les ESO sont impactées

2- Secteur Nord

- Nombreuses STEU dans l'Haguenau collectent et transfèrent les substances pharma récalcitrantes vers les ESU.
- Les ESU s'écoulent vers l'Est jusqu'au Rhin sur des formations géologiques favorables au ruissellement (sables et argiles). Les ESO sont protégées (pas d'impact)



VOLET IMPACT-PRESSION POLLUTION PONCTUELLE STEU

● Exemple de la carbamazépine

Couplage information lieu d'émission / capacité d'infiltration des eaux de surface vers les eaux souterraines

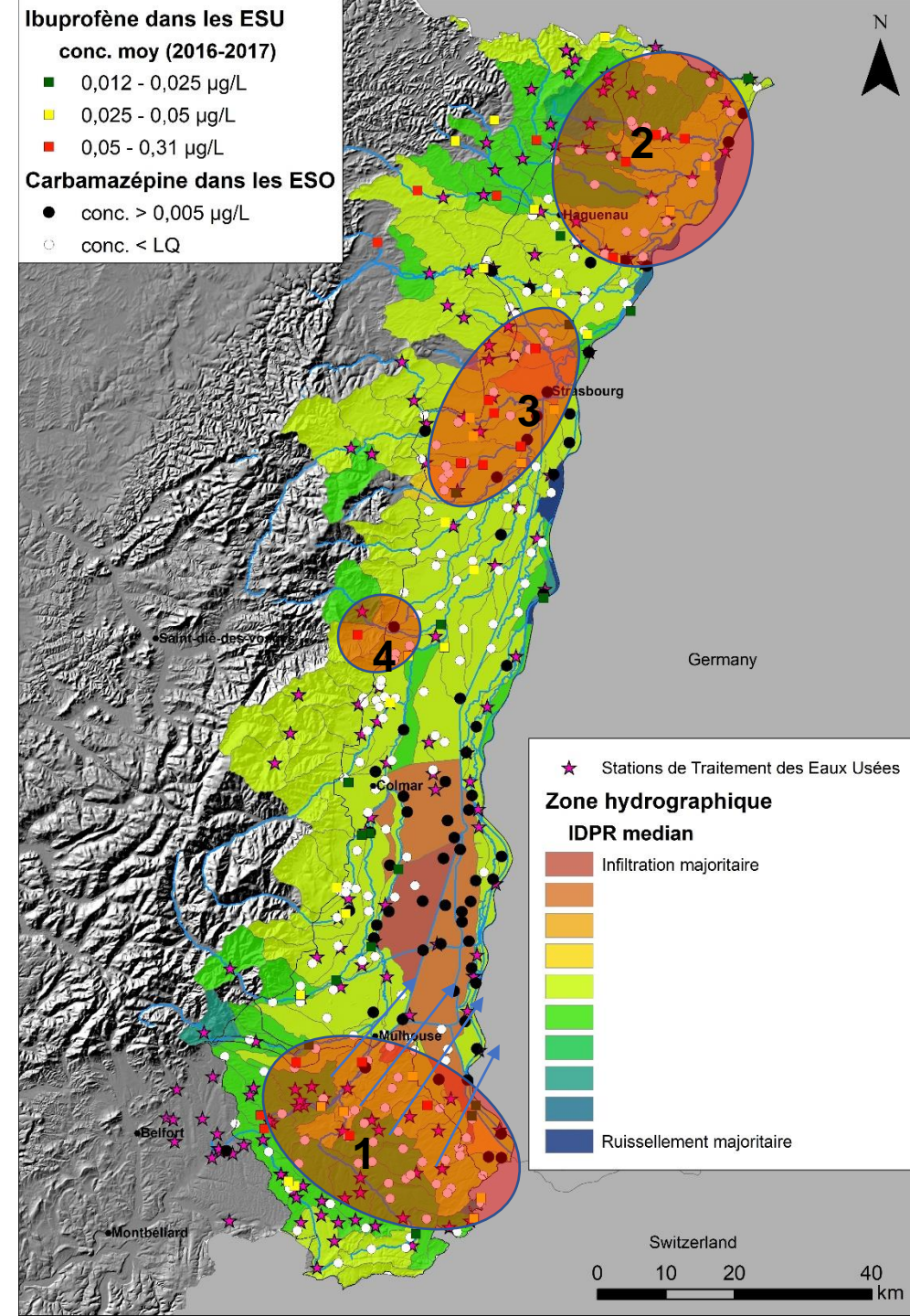
⇒ Reconstitution du transfert de la carbamazépine des sources vers les eaux souterraines

3- Amont de Strasbourg

- Les STEU en amont de Molsheim (bordure de la nappe d'Alsace) collectent et transfèrent les substances pharmaceutiques récalcitrantes vers les ESU
- Les ESU s'écoulent entre Molsheim et Strasbourg sur des formations pouvant être infiltrantes
- Les ESO montrent des marquages en carbamazépine qui pourraient être expliqués par les STEU en amont

4- Bordure Centre-Ouest

- 1 point de suivi en ESU marqué par la présence de substances pharmaceutiques non expliqué par la présence d'une STEU en amont immédiat
- A l'aval, les ESO sont impactées par la présence de carbamazépine = infiltration des ESU en amont ?



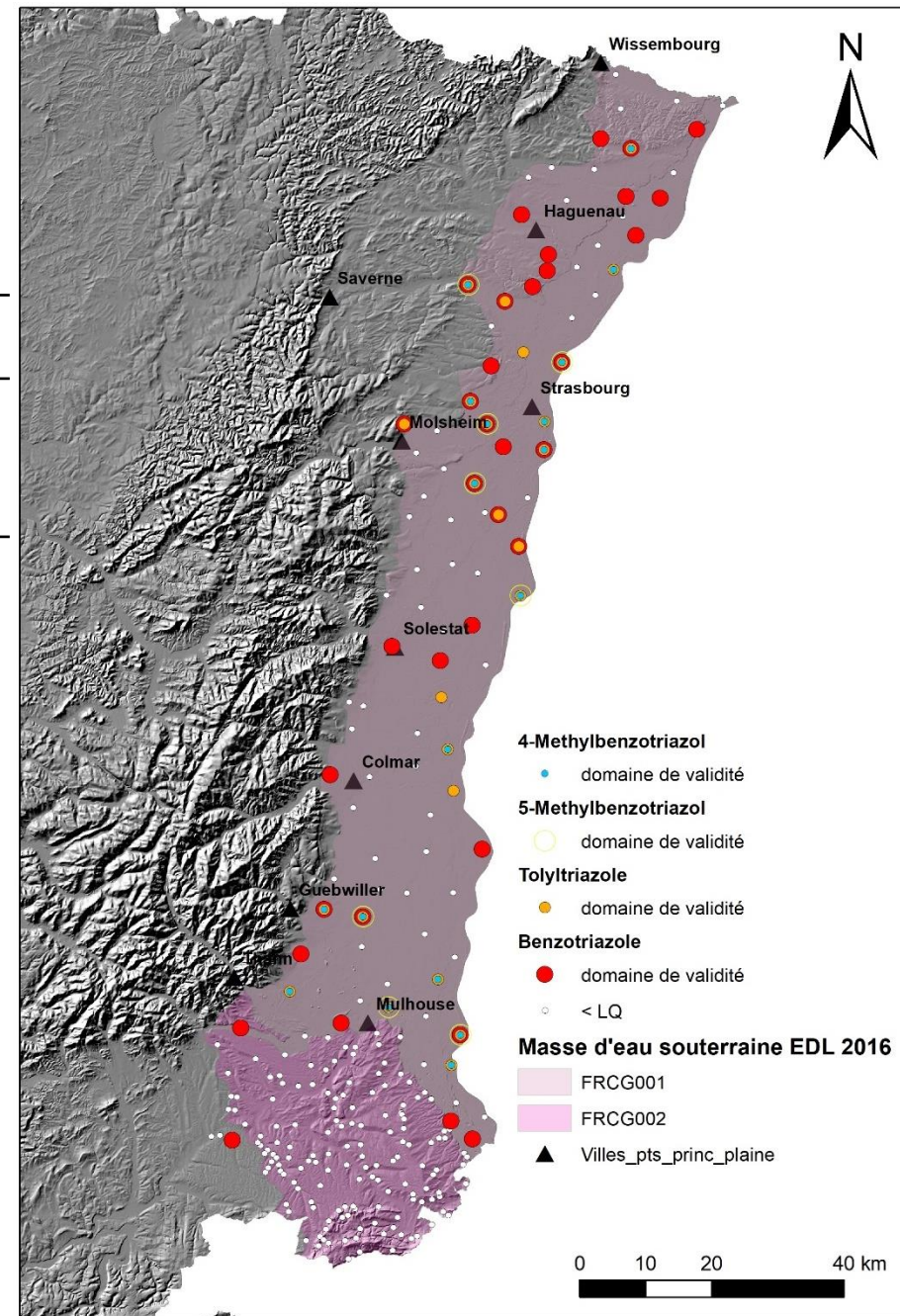
Le benzotriazole et de ses métabolites

1- Qualification de l'impact

Code param.	Nom	N analyses	N quanti	LQ [$\mu\text{g/L}$]	moyenne quanti [$\mu\text{g/L}$]	médiane [$\mu\text{g/L}$]	max [$\mu\text{g/L}$]	FQ [%]
7543	Benzotriazole	251	36	0.005 - 0.1	0.068	0.014	0.78	14.3
6660	Tolyltriazole	251	25	0.005 - 0.5	0.166	0.013	3.58	10
7890	4-Méthylbenzotriazol	100	18	0.005	0.219	0.012	3.58	18
7891	5-Méthylbenzotriazol	100	8	0.005	0.021	0.007	0.056	8

2- Pression potentielle

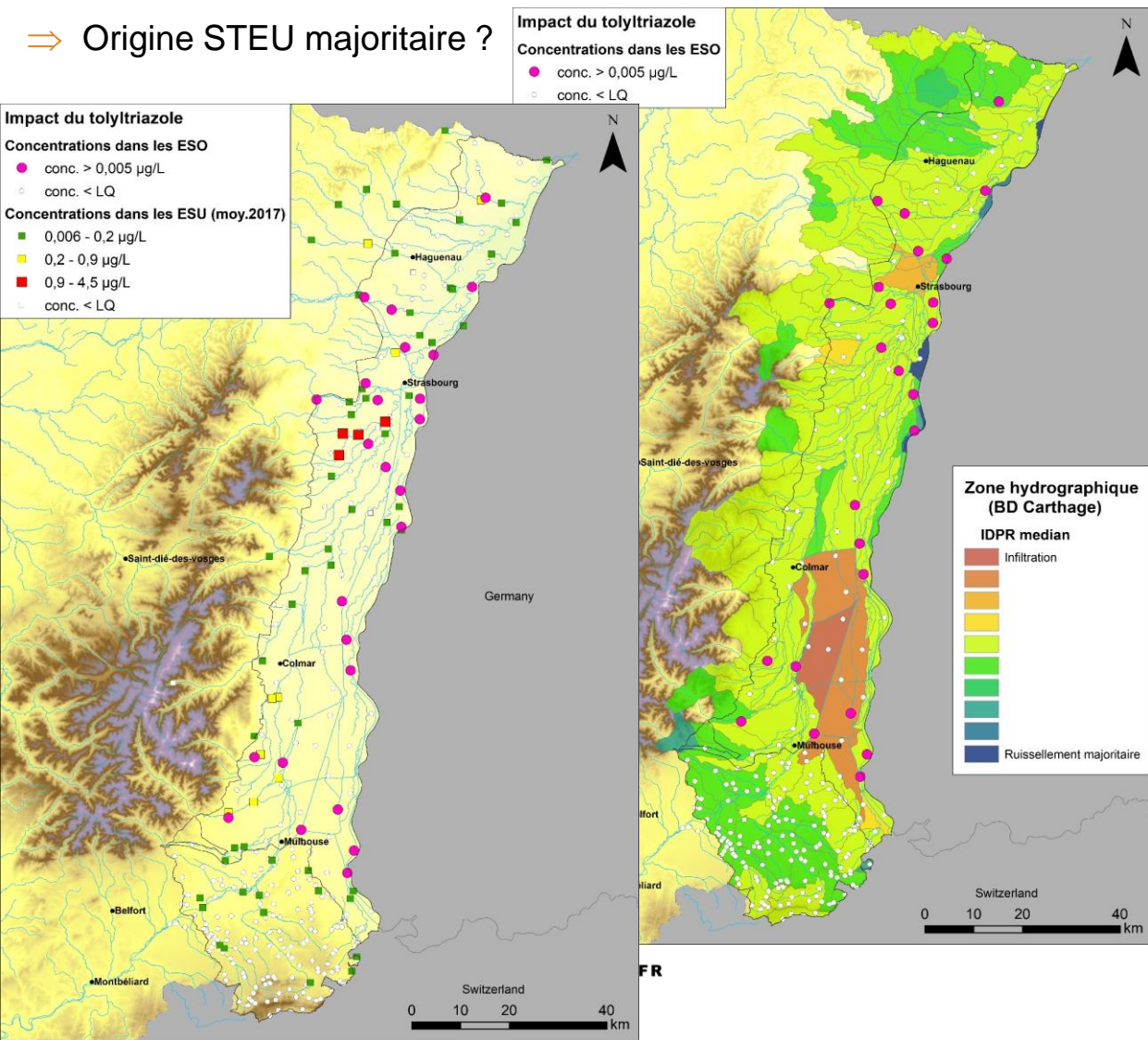
- Benzotriazole et tolyltriazole = agents anticorrosifs
 - Tolyltriazole = mélange commercial de 2 substances : le 4-méthyl-1H-benzotriazole et le 5-méthyl-1H-benzotriazole
 - Très polaires ($\log K_{OW}$ 1,23 et 1,89 respectivement) et persistants
 - Faible capacité de sorption ($\log K_{OC} = 1,9$)
 - Augmentations des usages : usages industriels initialement puis chez les particuliers (détergents)
- ⇒ Sites industriels + STEU + assainissements non collectif
- } Difficultés de traitements



VOLET IMPACT-PRESSION

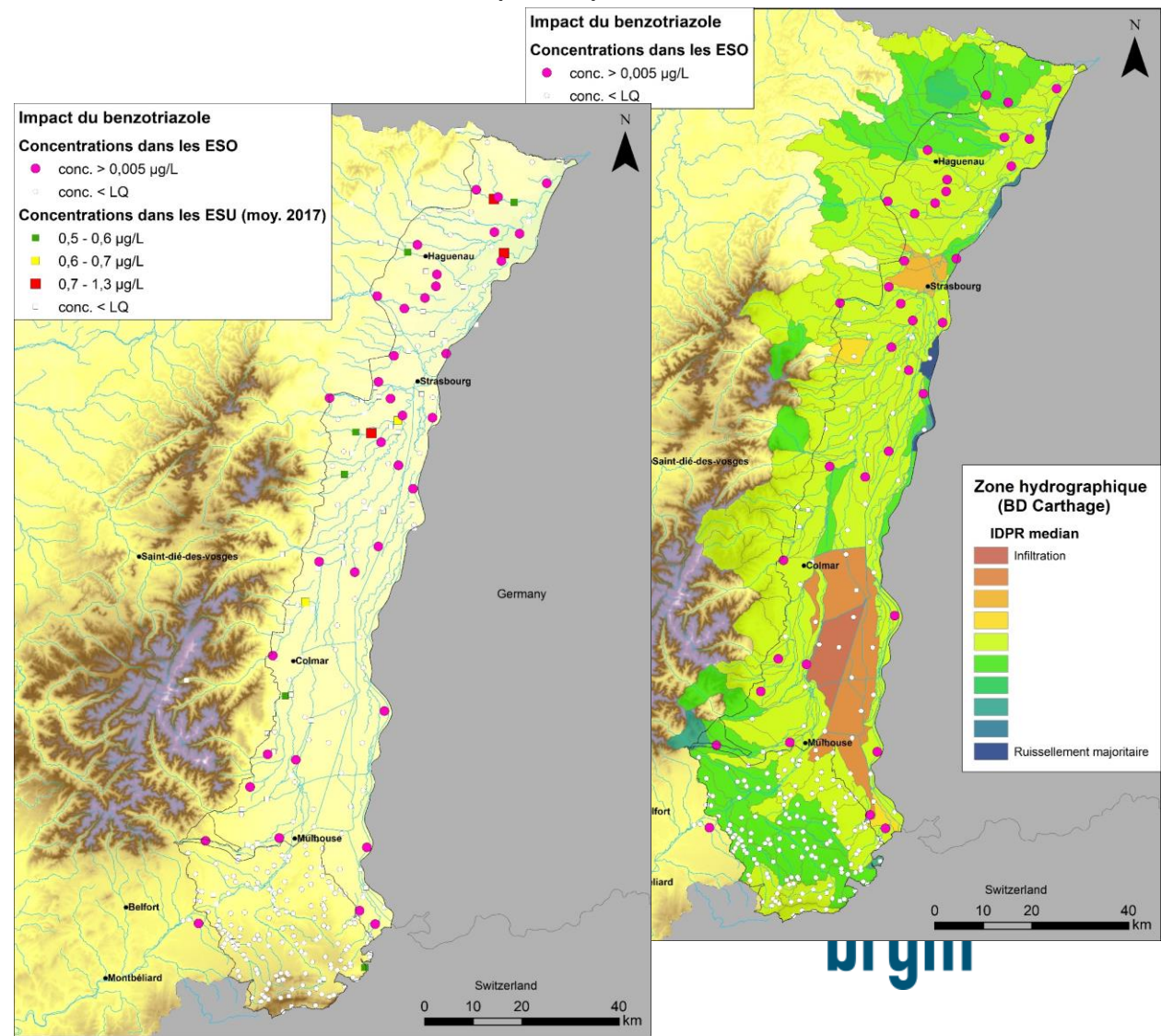
● Tolytriazole

- ⇒ Sites impactés équivalents CBZ
- ⇒ Molécules présentes dans les ESU en amont de zones potentielles d'infiltration
- ⇒ Origine STEU majoritaire ?



● Benzotriazole

- ⇒ Sites impactés différents (secteur à l'est de la ligne Mulhouse-Colmar non impacté ; ESO à l'aval de l'Haguenau impactées)
- ⇒ Pollutions issues de sites spécifiques ?



Conclusions

Concernant l'émission de **substances pharmaceutiques** pouvant impacter les eaux souterraines :

- ✓ Le schéma conceptuel de transfert des polluants émergents des STEU vers les eaux souterraines permet d'élaborer des hypothèses cohérentes pour faire le lien entre l'impact des substances pharmaceutiques sur les ESO et les pressions anthropiques en surface
- ✓ Toutes les STEU n'ont pas le même impact sur les eaux de surface
 - Connexions avec des sites industriels, hôpitaux
 - Performance des traitements
 - Volume d'effluents
- ✓ Une meilleure cohérence des suivis dans les eaux de surface et les eaux souterraines aiderait à suivre le cheminement des polluants des lieux d'émission vers les milieux récepteurs
 - Ex. carbamazépine très peu recherchée dans les ESU du secteur d'étude nécessitant d'utiliser un indicateur indirect
 - Homogénéité des LQ
- ✓ Nécessité de mieux connaître les relations ESU/ESO qui sont l'élément prépondérant dans la survenue de pollutions du milieu souterrain par les substances pharmaceutiques et utilisées dans la vie courante
 - Jaugeages différentiels
 - Bilans / modèles
 - Traçages

Conclusions

- Le secteur sud-est de la nappe d'Alsace, à l'est d'une ligne Mulhouse-Colmar, s'avère particulièrement vulnérable aux arrivées d'eaux de surface provenant du Sundgau, elles-mêmes impactées par les nombreuses STEU présentes dans et en amont de ce secteur

- A l'inverse, dans le pliocène d'Haguenau, si les eaux de surface semblent vulnérables aux apports des STEU du secteur, les eaux souterraines semblent protégées par une lithologie des formations souterraines peu favorable à l'infiltration

- Un autre secteur entre Molsheim et Strasbourg est identifié comme vulnérable aux apports de substances pharmaceutiques par les ESU qui s'écoulent d'ouest vers l'est.

- ⇒ Moyens d'action pour réduire l'impact des produits pharmaceutiques sur les eaux souterraines
 - Amélioration des traitements par les STEU
 - Réduction à la source (l'écoprescription ?)

Conclusions

- ✓ Ce schéma atteint ses limites lorsque **les usages et les sources sont multiples** (lessivage installations industrielles, décharges, résidus de combustion...)
 - Lien pression – impact difficile à établir dans le cas du benzotriazole aux origines pouvant être multiples
 - PFAS = ubiquistes. Sources multiples, impact généralisé → lien pression / impact impossible à l'échelle de la nappe d'Alsace
 - Phtalates = usages industriels et domestiques cumulés. Voies d'émissions multiples
 - Perchlorates : Sources multiples. Evolution des usages dans le temps. Problématique liée à la confidentialité des données issues de l'inventaire des sites potentiels réalisé en 2017

- ✓ Nécessité de travailler sur les **facteurs d'émissions** = concentrations émises couplées à la voie d'introduction
 - Contact direct usage – milieux ≠ Usages en conditions contrôlées ≠ usure et lessivage des produits (décharges)
 - Besoin des données plus précises sur les quantités utilisées par type d'activité (données REACH trop peu précises)

- ✓ Besoin d'être en mesure de localiser plus finement les usages et de mieux connaître les filières d'élimination des produits contenant ces molécules

Perspectives

Compte-tenu de l'échelle de travail (nappe d'Alsace et du Sundgau) et des données utilisées, il n'a pas été possible de procéder à un examen plus fin pour préciser toutes les sources potentielles de polluants.

Les pistes à explorer :

- Prise en compte plus fine des STEU
 - Typologie des intrants dans les réseaux
 - Procédés de traitements des effluents
 - Volumes traités
- Travail sur les facteurs d'émission

Pour aller plus loin sur le volet pression-impact, nécessité :

- De mieux connaître les relations ESO / ESO et les processus physico-chimiques qui s'établissent dans les zones de transition (zones hyporéiques, zones non saturées)
- De considérer l'évolution temporelle des concentrations des substances émises (présence ponctuelle ou permanente ?)
- De mieux caractériser les écoulements souterrains (vitesse, direction, etc.), afin d'estimer la distance possible des transferts en nappes depuis les secteurs d'infiltration des ESU

MERCI DE VOTRE ATTENTION