



2013-2015 – Domaine 12-4-1 Contaminants et risques  
écotoxicologiques- Action 224

# Occurrence des résidus médicamenteux d'origine vétérinaire et traceurs de contamination fécale dans les eaux de surface dans deux bassins versants bretons

Rapport final

Annie SOULIER, Lucie CARRERA, Emilie JARDE, Barbara LE BOT, Alban  
de LAVENNE et Anne JAFFREZIC

Juillet 2015

*Avec le soutien de l'ONEMA*



- **AUTEURS**

**Annie SOULIER**, Chargé de mission (UMR SAS convention INRA-ONEMA), adresse actuelle : [annie.soulier@rennes.inra.fr](mailto:annie.soulier@rennes.inra.fr)

**Lucie CARRERA**, (stage de Master 2)

**Emilie JARDE**, chercheur (CNRS) UMR 6118 Géosciences Rennes , [emilie.jarde@univ-rennes1.fr](mailto:emilie.jarde@univ-rennes1.fr)

**Barbara LE BOT**, enseignant chercheur EHESP-Leres/Inserm U1085 (IRSET), [barbara.lebot@ehesp.fr](mailto:barbara.lebot@ehesp.fr)

**Alban de LAVENNE** :post-doc (Université François Rabelais, Tours, EA 6293, Géo-Hydrosystèmes Continentaux), adresse actuelle : [a.lavenne@gmail.com](mailto:a.lavenne@gmail.com)

**Anne JAFFREZIC**, enseignant-chercheur UMR 1069 Sol Agro et hydrosystèmes Spatialisation INRA Agrocampus Ouest [anne.jaffrezic@agrocampus-ouest.fr](mailto:anne.jaffrezic@agrocampus-ouest.fr)

- **CORRESPONDANTS**

**Onema : Pierre-François STAUB**, [pierre-francois.staub@onema.fr](mailto:pierre-francois.staub@onema.fr)

- **AUTRES CONTRIBUTEURS**

**Droits d'usage** : libre

**Niveau géographique** : France

**Couverture géographique** : Bretagne

**Niveau de lecture** : professionnels, experts.



## RESUME

La contamination des eaux par les résidus médicamenteux vétérinaires (RMV) a été peu étudiée en contexte d'élevage intensif. La plupart des molécules sont à usage mixte humain et animal. Des prélèvements d'eau de rivière ont été réalisés de mars 2013 à décembre 2014 i) sur l'Observatoire de Recherche en Environnement Agrhys Kervidy Naizin, bassin versant (BV) de 4,9 km<sup>2</sup> situé dans le Morbihan (activité d'élevage intensif), et ii) sur un BV d'Ille et Vilaine de 27 km<sup>2</sup> possédant une station d'épuration (STEP). Les prélèvements sont réalisés manuellement sur des sous BV de 2 à 80 km<sup>2</sup>, et par préleveur automatique sur Kervidy-Naizin (sept crues suivies). La liste des molécules à rechercher a été établie après enquêtes menées auprès de vétérinaires. L'origine des contaminations fécales est caractérisée par les stanols (humaine, bovine, ou porcine). Une liste de molécules à rechercher, adaptée au contexte d'élevage breton, à dominante porcins et bovins lait est proposée. Les molécules quantifiées ont été bien identifiées dans les enquêtes. Sur Kervidy-Naizin, trois antibiotiques le triméthoprime, l'oxytétracycline et l'enrofloxacin (molécule critique), sont les plus fréquemment quantifiés (de 57 à 42%), les concentrations moyennes (12 à 80 ng/l) et maxi (20 à 230 ng/l) sont comparables en crue ou non. Sur le BV d'Ille et Vilaine, des molécules à usage spécifiquement humain sont fréquemment quantifiées, diclofénac (77%), et carbamazépine (55%). Un anti-inflammatoire et 3 antibiotiques sont fréquemment quantifiés : la flunixin (69, %), la sulfaméthazine (67%), la lincomycine (56%), la fluméquine (55%). Toutes ces molécules sont à usage vétérinaire et humain à l'exception de la sulfaméthazine exclusivement à usage vétérinaire. La STEP n'est pas la seule source de RM sur le BV car les contaminations sont déjà quantifiées sur les têtes de bassins versants en amont de la station. Les teneurs cumulées de toutes les molécules quantifiées varient de 1 à 3178 ng/L (3,1 µg/L) sur Kervidy-Naizin et de 8 à 2500 ng/L (2,5 µg/l) sur le BV d'Ille et Vilaine. Les teneurs maximales de RMV sur les deux sites correspondent au transfert préférentiel d'une ou deux molécules, souvent des antiparasitaires, et sont associées à des contaminations fécales fortes. Mais toutes les fortes contaminations fécales ne s'accompagnent pas systématiquement d'une contamination par les RMV. Sur Kervidy-Naizin, les teneurs cumulées en antibiotiques les plus élevées sont associées à des contaminations fécales d'origine porcine, ce qui est cohérent avec la nature des épandages majoritaires. En Ille et Vilaine, les contaminations fécales sont d'origines animale et humaine. Les contributions bovines et humaines prédominent sur l'année mais au printemps, le milieu est impacté par les épandages de lisiers de porcs. Il est difficile d'associer l'origine de ces contaminations fécales définie par les stanols (humaine, bovine, ou porcine) et l'usage (humain ou animal) des molécules médicamenteuses quantifiées, avec l'hypothèse sous-jacente d'un co-transport entre les deux. Les prélèvements en crue révèlent en général au sein de la crue, une forte variabilité des concentrations et de la présence/absence de chaque molécule quantifiée. Cela laisse supposer que le ruissellement sur des surfaces récemment épandues n'est pas la principale voie de transfert. Les transferts de surface peuvent également entraîner des molécules déjà stockées dans les sols. Ainsi, un suivi d'un minimum de 10 prélèvements répartis sur l'année, en privilégiant les épisodes pluvieux et les périodes d'épandage, permettra d'intégrer la variabilité temporelle des niveaux de contamination des eaux par les RM et de refléter ainsi un niveau de contamination moyen du BV.

- **MOTS CLES (THEMATIQUE ET GEOGRAPHIQUE) : RESIDUS MEDICAMENTEUX VETERINAIRES, EAUX DE SURFACE, CRUE, TRANSFERT, BASSIN VERSANT, EFFLUENT D'ELEVAGE, BRETAGNE**



## Occurrence of veterinary drugs and fecal contamination on agricultural catchment

### ABSTRACT –

Diffuse contamination of surface water by veterinary pharmaceuticals has been poorly studied in intensive breeding context. Most of pharmaceuticals are consumed indifferently by human and animal, especially antibiotics. This study aims to quantify veterinary pharmaceuticals (VP) in two agricultural catchments and to monitor the occurrence of fecal contamination and their origin (human, porcine and bovine).

Grab and storm events water sampling were carried out from March 2013 to December 2014 on the 4,9 km<sup>2</sup> Kervidy-Naizin headwater catchment located in Brittany (western France) belonging to the AgrHyS environmental research observatories and part of Network in Drainage Basins. Water quality is impacted by intensive breeding (swine, cattle) with mean nitrate concentration of about 80 mg/l. A catchment located in Ille et Vilaine, impacted both by agricultural diffuse pollution and a sewage treatment plant, was also monitored. Grab sampling were performed on different subcatchments from 2 to 80 km<sup>2</sup>. Priorization of molecules was established on veterinary survey, and a list is proposed to study the occurrence of VP in porcine and cattle breeding area. Faecal indicator (*E.coli*) and markers of contamination (stanols) were carried out on samples.

On Kervidy-Naizin, Thrimethoprim, Oxytetracyclin and Enrofloxacin are frequently quantified (from 57 to 42%). Mean and max concentrations respectively (12 to 80 ng/l) and (20 to 230 ng/l) are identical in flood and non-flood events. The frequency of quantification of Eprinomectin, a cattle veterinary antimicrobial, is 31% and mean concentration is high (400 ng/l). On the Ille et Vilaine catchment, human pharmaceuticals are frequently quantified Diclofénac (77%), et Carbamazépin (55%). But human/veterinary Flunixin (69 %), Lincomycin (56%) and Fluméquin (55%) or specifically veterinary Sulfaméthazin (67%), are also quantified. Sewage treatment plant is not the only source of pharmaceuticals as VP are quantified in headwater catchments above the plant. Faecal contamination is mostly animal on Kervidy Naizin (porcine and bovine) and mixt human/animal on Ille et Vilaine site. Cumulated concentrations ranged from 1 to 3178 ng/L on Kervidy Naizin and 8 to 2500 ng/L on Ille et Vilaine site. Maximum VP concentrations are associated to the transfer of one or two molecules, mostly antimicrobial, and high fecal contamination. But all fecal contaminations are not associated with high VP concentrations. High temporal variability of the nature of the molecules and the concentration were observed during the seven storm events. This suggest that runoff on recently manure applied or pasture lands, is not the unique pathway of transfer. Molecules must be stocked in soil or sediments. A minimum of ten samplings covering the hydrological year, but with special interest on storm event episodes during manure spreading periods should enable to assess the temporal variability of VP concentrations in agricultural catchments.

- **KEY WORDS (THEMATIC AND GEOGRAPHICAL AREA) : VETERINARY DRUGS, CATCHMENT, WATER, STORM EVENT, FARMING WASTE.**



## SYNTHESE POUR L'ACTION OPERATIONNELLE

En contexte d'élevage breton, à dominante porcins et bovins lait, cette étude sur l'occurrence des résidus médicamenteux vétérinaire (RMV) dans les eaux de surface répond à quatre questions : i) quelles molécules rechercher dans les eaux ? ii) quels sont les niveaux de contamination des eaux de surface par les résidus médicamenteux vétérinaires (fréquence de détection, moyenne et max de concentrations) dans deux bassins versants agricoles, iii) les concentrations sont-elles plus élevées lors des épisodes pluvieux, au cours des crues ? iv) les contaminations par les RMV sont-elles mesurées en même temps que des contaminations fécales, si oui quelle est l'origine de cette contamination fécale humaine, porcine ou bovine ?

L'objectif opérationnel est de proposer une méthodologie pour diagnostiquer les pollutions diffuses des eaux superficielles par les résidus médicamenteux d'usage vétérinaire.

Des prélèvements d'eau de rivière ont été réalisés de mars 2013 à décembre 2014 sur l'Observatoire de Recherche en Environnement (ORE) Agrhys Kervidy-Naizin, bassin versant (BV) de 4,9 km<sup>2</sup> en contexte d'élevage intensif situé dans le Morbihan. Les prélèvements ont été effectués manuellement sur trois points, et par un préleveur automatique, pour échantillonner les crues, soit un total de de 25 et 26 échantillons respectivement. Sur cette même période, un bassin versant d'Ille et Vilaine de 27 km<sup>2</sup> possédant une station d'épuration a également été étudié. Un total de 7 points de prélèvement a été retenu afin d'appréhender les variabilités spatiale et temporelle au sein de BV emboîtés de taille différente (de 2 à 80 km<sup>2</sup>), dans un contexte mixant présence humaine et activité agricole.

### A - Comment identifier les molécules à rechercher ?

#### A.1 - Réalisation d'enquêtes auprès des vétérinaires pour identifier les molécules prescrites

Au niveau national, il existe une liste établie par l'AFSSA (AFSSA, 2008) ciblant 23 molécules à usage vétérinaire (11 antibiotiques, 5 anticoccidiens, 6 antiparasitaires) à rechercher prioritairement dans les eaux. Comme l'indique la bibliographie, l'utilisation des médicaments varie d'un type d'élevage à l'autre. Et la présente étude montre que la liste nationale n'est pas totalement adaptée au contexte d'élevage breton tel qu'il s'exprime sur les bassins versants étudiés (majoritairement porcins et bovins lait). Plusieurs molécules ne sont pas ou plus utilisées (telle que la danofloxacin) et d'autres manquent alors que le suivi de leur occurrence montre qu'elles sont bien quantifiées sur les BV étudiés (triméthoprime, enrofloxacin, flunixin, éprinomectine, ivermectine...) (tableaux ci-après).

Ainsi, 5 vétérinaires spécialisés bovins lait exerçant en cliniques libérales et 5 vétérinaires spécialisés porcins exerçant en lien avec des groupements ou en cliniques libérales, ont été rencontrés lors d'un entretien d'environ 1h30. Une enquête auprès d'un vétérinaire spécialisé volaille a également été réalisée, cette production restant toutefois très minoritaire sur les BV étudiés dans le cadre de ce projet.

### Classe thérapeutique : les antibiotiques

Molécules	liste nationale (AFSSA, 2008)	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porc	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
Chlortetracycline		+	++	0
Doxycycline		+	+++	+
Tetracycline		++	+	0
Oxytetracycline		++	++	++
Sulfaméthazine		++	+	0
Sulfaméthoxypyridazine		++	0	0
Sulfadiazine		+	++	+++
Sulfadiméthoxine		++	++	+++
Sulfadoxine		+	0	0
Sulfaguamidine		++	0	0
Triméthoprime		+++	++	+++
Céfaléxine		+++	0	0
Céfapirine		+	0	0
Cefquinome		++	+	0
Ceftiofur		+++	+	0
Céfoperazone		+	0	0
Céfalonium		++	0	0
Amoxicilline		+++	++	+++
Ampicilline		++	+	++
Cloxacilline		+++	+	0
Benzylpénicilline		+++	+	0
Lincomycine		++	++	0
Spiramycine		++	++	0
Tylosine		+++	++	++
Tilmicosine		++	+	0
Tulathromycine		+	+	0
Tildiprosine		+	+	0
Gamithromycine		++	0	0
Tiamuline		+	+	+
Acide oxolinique		+	+	0
Fluméquine		+	+	+
Danofloxacin		+	0	0
Enrofloxacin		+	+++	++
Marbofloxacin		++	+++	0
Dihydrostreptomycine		+++	++	0
Streptomycine		++	+	0
Apramycine		+	+	0
Gentamicine		+	+	0
Kanamycine		++	0	0
Spectinomycine		++	+	0
Néomycine		+++	++	0
Florfenicol		++	++	0
Colistine		+++	+++	+++
Rifaximine		++	0	0

molécules sans AMM porc  
molécules à rechercher dans les eaux

### Classe thérapeutique : les antiparasitaires et anticoccidiens

Molécules	liste nationale (AFSSA, 2008)	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porc	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
Dicyclanil		0	0	0
Lévamisole		+	+++	+++
Doramectine		+	0	0
Ivermectine		++	++	0
Eprinomectine		+++	0	0
Moxidectine		++	0	0
Albendazole		++	0	0
Fenbendazole		++	++	0
Flubendazole		+	+++	+
Oxibendazole		++	++	0
Phoxim		+	+	0
Pipérazine		+	0	+
Amitraz		+	++	0
Deltaméthrine		+++	0	0
Monensin		+	0	+++
Decoquinat		++	+	0
Diclarzuril		+++	0	+
Toltrazuril		++	+++	++

### Classe thérapeutique : les anti-inflammatoires

Molécules	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porc	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
Flunixin	++	++	0
Acide acétylsalicylique	+	+++	+
Paracétamol	0	+++	0
Meloxicam	+++	++	0
Acide tolfénamique	+	0	0
Ketoprofène	+	++	0
Dexaméthazone	++	+++	0

### Classe thérapeutique : les hormones

Molécules	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porc	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
Altrénogest	+	+++	
Dinoprost	++	+++	
Cloprosténol	+++	++	
Alphaprostol	+	++	
PMSG	++	++	
HCG	+	+	
Sérotonine	+	++	
Oxytocine	++	++	
Buséréline	++	0	
Progestérone	+	+	
Norgestomet	+	0	

Cette méthodologie a été mise en œuvre dans un contexte d'élevage breton, sur des territoires à dominante porcins et bovins lait. La liste des molécules à rechercher a été établie sur ces critères et elle est donc validée pour ce contexte spécifique. Elle devra toutefois être ajustée pour d'autres

régions que la Bretagne ou pour d'autres BV présentant des productions animales différentes. Cependant, la démarche suivie ici pour définir les molécules à rechercher, reste simple à mettre en œuvre et peut être facilement transposable dans n'importe quelle situation.

## A-2 - Des molécules à usage humain et animal, comment savoir si elles proviennent de l'activité agricole ? Définir un menu analytique adapté

Les molécules sont en très grande majorité à usage mixte, utilisées à la fois en médecine humaine et en médecine animale. Les sources de pollutions par les résidus médicamenteux sont multiples, provenant à la fois du recyclage des effluents d'élevage sur les sols ou de fuites ponctuelles des dispositifs de collecte de ces effluents, mais également des systèmes d'assainissement qu'ils soient collectif (STEP) ou individuel. Ces derniers sont très fréquents sur les territoires ruraux en tête de BV. Aussi, il paraît pertinent de rajouter au menu analytique dédié aux molécules utilisées en médecine vétérinaire deux médicaments très utilisés en médecine humaine et fréquemment détectés dans les eaux impactées par des sources humaines, la carbamazépine et le diclofénac. L'absence de quantification de ces molécules suggère que les sources sont liées à l'élevage. Parmi les molécules à usage vétérinaire, certaines sont à usage animal strict : il convient de les inclure dans la liste : notamment la sulfaméthazine, l'éprinomectine, la flunixin.

Ces molécules ayant un usage ciblé humain ou animal peuvent jouer le rôle d'indicateur de l'origine de la contamination par les résidus de médicaments. L'éprinomectine est de plus une molécule exclusivement destinée aux bovins.

En combinant des listes de molécules ciblées à usage vétérinaire ou à usage mixte humain de deux laboratoires, un total de 27 molécules à usage vétérinaire et 3 molécules à usage exclusivement humain ont été analysées :

- **les antibiotiques** : oxytétracycline, doxycycline, tétracycline, sulfaméthazine, sulfadiazine, triméthoprimo ceftiofur, ampicilline, amoxicilline, pénicilline G (benzylpénicilline), lincomycine, spiramycine, tylosine, fluméquine, danofloxacine, enrofloxacine, marbofloxacine, et florfenicol ;
- **les antiparasitaires, anticoccidiens, anti-inflammatoires et hormones** : dicyclanil, lemavisole, ivermectine, eprinomectine, métrifonate, monensin, flunixin, kétoprofène et altrénogest ;
- **les trois molécules à usage exclusivement humain**: carbamazépine, époxy-carbamazépine (son métabolite), et diclofénac.

Certaines molécules fortement prescrites n'ont pas été recherchées car non disponibles auprès des deux laboratoires consultés (notamment pour la colistine).

Cette liste s'intègre dans une approche visant à étudier l'occurrence des résidus de médicaments dans les eaux, sans autre enjeu que l'amélioration de la connaissance du niveau de contamination des eaux superficielles par ces RM. Elle n'intègre aucun autre paramètre d'intérêt relatif par exemple à la santé humaine, la toxicité à l'égard des systèmes aquatiques, au développement de l'antibiorésistance, etc.

## B – Occurrence des résidus médicamenteux vétérinaires (RMV)

### B.1 – Fréquence de quantification et niveaux de concentration sur Kervidy-Naizin

Le lisier de porc est le principal effluent d'élevage recyclé sur les sols, quelques parcelles sont également pâturées. 14 molécules ont été quantifiées sur les 30 recherchées. Les quatre molécules les plus quantifiées (triméthoprime, oxytétracycline, enrofloxacin, lincomycine) sont fréquemment prescrites. L'antiparasitaire, éprinomectine, à usage exclusivement bovin est également quantifié (fréquence de quantification 31% et moyenne de 415 ng/l).

Les molécules critiques, reconnues comme telles en raison de leur importance vis-à-vis de l'antibiorésistance : le ceftiofur, la marbofloxacin et l'enrofloxacin sont quantifiées. L'enrofloxacin présente un pourcentage de quantification supérieur à 40%, les concentrations restent toutefois inférieures à 60 ng/L.

Aucune molécule à usage exclusivement humain n'est détectée. Ces résultats montrent que la contamination des eaux par les RM d'usage mixte (humain et animal) est a priori liée à un usage vétérinaire des médicaments.

Le tableau suivant permet de comparer les fréquences et pourcentages de quantification, et les concentrations moyennes obtenues pour chaque molécule analysée dans les deux types de prélèvement (ponctuel ou automatique ciblant la crue).

Molécule (usage : bovin, porcin, volaille, humain)	n (fréquence) prél. en crue	% de quantification prél. en crue	moyenne des concentrations (en ng/L) prél. en crue	n (fréquence) prél. ponctuel	% de quantification prél. ponctuel	moyenne des concentrations (en ng/L) prél. ponctuel
triméthoprime (B/P/V/H)	4/7	57%	35	4/9	44%	12
Oxytétracycline (B/P/V/H)	13/26	50%	69	9/22	41%	86
Enrofloxacin (B/P/V)	11/26	42%	21	9/22	41%	22
Lincomycine (B/P/V/H)	7/18	39%	24	3/21	14%	7
Eprinomectine (B)	8/26	31%	415	6/22	27%	358
Tylosine (B/P/V/H)	3/18	17%	45	1/21	5%	11
Sulfadiazine (B/P/V/H)	4/26	15%	24	0/22	0%	<LQ
Ivermectine (B/P/H)	4/26	15%	1010	1/22	5%	1800
Spiramycine (B/P/V/H)	3/26	12%	213	3/22	14%	245
Flunixin (B/P)	3/26	12%	10	1/22	5%	20
Ketoprofène (B/P/H)	3/26	12%	23	0/22	0%	<LQ
Ampicilline (B/P/V/H)	2/26	8%	922	0/22	0%	<LQ
Marbofloxacin (B/P)	2/26	8%	15	2/22	9%	18
Ceftiofur (B/P)	1/26	4%	20	0/22	0%	<LQ
Levamisole ((B/P/V/H)	non recherché			1/3	33%	10
Sulfaméthazine (B/P/V)	0/26	0%	<LQ	3/22	14%	1
Doxycycline (B/P/V/H)	0/7	0%	<LQ	1/9	11%	37
Flumequine (B/P/V/H)	0/7	0%	<LQ	1/9	11%	1

Le niveau de contamination moyen du bassin versant est comparable quel que soit le mode de prélèvement. Mais les résultats ont montré une très forte variabilité temporelle, aussi bien entre deux dates qu'au sein d'une crue, des niveaux de concentrations et de la présence/absence des molécules quantifiées.

## B.2 – Fréquence de quantification et niveaux de concentration sur le BV d’Ille et Vilaine

Sur le BV d’Ille et Vilaine, de plus grande taille et incluant une STEP, 16 molécules ont été quantifiées. Des molécules à usage spécifiquement humain sont fréquemment quantifiées, dans tous les sous-BV, de 2 à 27 km<sup>2</sup>. Le diclofénac est quantifié dans 77% des échantillons ce qui le place en tête des molécules quantifiées. La carbamazépine est quantifiée dans 55% des échantillons.

Parmi les molécules utilisées en médecine vétérinaire, un anti-inflammatoire et 3 antibiotiques sont fréquemment quantifiés : la flunixin (69, %), la sulfaméthazine (67%), la lincomycine (56%), la fluméquine (55%). Toutes ces molécules sont à usage vétérinaire et humain à l’exception de la sulfaméthazine qui est exclusivement à usage vétérinaire. La station d’épuration n’est pas la source principale de contamination sur ce BV, car les contaminations sont déjà significatives sur les têtes de bassins versants, en amont de la station, et sont liées à la fois à l’activité agricole et à l’assainissement non collectif. Les résultats ont mis en évidence des variabilités spatiale et temporelle importantes. Et les deux sous bassins versants principaux de 8 et 19 km<sup>2</sup> présentant a priori des activités agricoles comparables, ont montré des niveaux de contaminations très contrastés, tant en termes de fréquence de quantification des molécules qu’en concentration.

Sur ce bassin versant, comme sur celui de Naizin, les fortes teneurs cumulées, dépassant le µg/L, sont presque toujours associées à la présence des antiparasitaires, ivermectine et éprinomectine, ou anti-inflammatoire (flunixin) sur le BV d’Ille et Vilaine.

## C – Éléments opérationnels à retenir

### Les enquêtes

La réalisation d’enquêtes auprès de vétérinaires et la méthodologie développée dans cette étude (niveau de prescription, amplitude des réponses) s’avère être une méthode pertinente pour définir une liste de molécules à rechercher dans les eaux. Sa facilité de mise en œuvre en fait un outil d’aide à la décision adapté pour les gestionnaires de la ressource en eau en contexte agricole.

Le choix de l’échantillon de vétérinaires rencontrés devra être suffisant pour être représentatif des différentes productions animales en place sur le bassin versant mais aussi de la typologie des divers praticiens exerçant sur le territoire. Dans le cas d’élevage bovins, il faudra tenir compte de la variabilité plus marquée des prescriptions comparativement aux élevages porcins. A titre d’exemple, dans cette étude, pour caractériser un BV d’environ 380 km<sup>2</sup>, et 5 cliniques spécialisées bovins ont été rencontrées sur la dizaine de cliniques exerçant sur ce territoire.

### Les molécules à rechercher et les développements analytiques adaptés

Les menus proposés par les laboratoires consultés sont aujourd’hui insuffisants par rapport à certaines molécules fortement prescrites : pour des antibiotiques tels que la colistine, la néomycine, la dihydrostreptomycine, la sulfadiméthoxine, mais aussi des antiparasitaires et les résultats ont montré que cette classe thérapeutique peut contribuer fortement aux valeurs élevées des teneurs cumulées quantifiées dans les eaux superficielles.

### Diagnostiquer le niveau de contamination sur un bassin versant

La grande variabilité temporelle des niveaux de concentrations et des molécules quantifiées, entre les échantillons, y compris au sein d’une crue, laisse supposer que le ruissellement sur des surfaces récemment épandues n’est pas la principale voie de transfert des RMV. Les transferts de surface peuvent aussi entraîner des molécules stockées dans les sols et des molécules stockées dans les sédiments peuvent être remobilisées sans lien avec des périodes d’épandages.

Compte tenu de ces éléments, l'utilisation du préleveur automatique ne s'avère pas être une méthodologie plus adaptée pour traduire le niveau de contamination d'un cours d'eau. Donc pour appréhender le niveau de contamination d'un cours d'eau par les RM, et en l'état actuel des connaissances, il convient de mettre en œuvre un suivi sur plusieurs dates (10 au minimum), réparties sur l'année, en privilégiant toutefois les épisodes pluvieux et les périodes d'épandages. Cette période peut être étendue aux périodes de pâturage quand cette pratique est marquée sur un territoire.

• **SOMMAIRE**

<b>Résumé</b> .....	<b>3</b>
<b>Abstract</b> – .....	<b>4</b>
<b>Synthèse pour l’action opérationnelle</b> .....	<b>5</b>
<i>A - Comment identifier les molécules à rechercher ?</i> .....	5
A.1 - Réalisation d’enquêtes auprès des vétérinaires pour identifier les molécules prescrites .....	5
A-2 - Des molécules à usage humain et animal, comment savoir si elles proviennent de l’activité agricole ? Définir un menu analytique adapté .....	7
<i>B – Occurrence des résidus médicamenteux vétérinaires (RMV)</i> .....	8
B.1 – Fréquence de quantification et niveaux de concentration sur Kervidy-Naizin .....	8
B.2 – Fréquence de quantification et niveaux de concentration sur le BV d’Ille et Vilaine .....	9
<i>C – Eléments opérationnels à retenir</i> .....	9
<b>I - Introduction</b> .....	<b>16</b>
<b>II - De l’usage des médicaments vétérinaires à la présence de résidus dans les eaux superficielles – spécificité du contexte breton</b> .....	<b>18</b>
2.1 – <i>La Bretagne : terre d’élevage et spécificité territoriale</i> .....	18
2.2 – <i>L’usage des médicaments vétérinaires en productions animales</i> .....	19
2.2.1 Usage des antibiotiques selon les types d’élevages .....	19
Eléments méthodologiques sur la mesure de l’usage des antibiotiques : quels indicateurs ? .....	23
2.2.2 Cas des molécules non antibiotiques : antiparasitaires, analgésiques, anti-inflammatoires, hormones.....	24
2.2.2.1 - Les antiparasitaires .....	24
2.2.2.1 - Les analgésiques, anti-inflammatoires et les hormones .....	25
2.3. <i>Quelles molécules à usage vétérinaire rechercher dans les eaux ?</i> .....	26
2.3.1 - Les références nationales .....	26
2.3.2 - L’échelle régionale .....	26
2.3.3 - Les listes proposées par les laboratoires d’analyse : contraintes et enjeux .....	27
2.4. <i>Les résidus de médicaments vétérinaires : origine et voie de transferts</i> .....	28
2.4.1. Teneurs en résidus médicamenteux vétérinaires dans les effluents d’élevage et recyclage agricole .....	28
2.4.1.1 - Teneurs en résidus vétérinaires dans les effluents d’élevage, influence du stockage .....	28
2.4.1.2 - Persistance des résidus vétérinaires dans les sols après épandage – stockage dans les sols .....	29
2.4.3. Les mécanismes de transfert de surface .....	30
2.5. <i>Les objectifs du projet REMEDES</i> .....	30
<b>III - Présentation des sites d’études</b> .....	<b>32</b>
3.1 – <i>Description générale du bassin versant de Kervidy-Naizin</i> .....	32

3.1.1 - Un bassin versant intégré dans le réseau ORE AgrHys .....	32
3.1.2 – Situation, climat et fonctionnement hydrologique.....	33
3.1.3 – Un site instrumenté pour un suivi long terme .....	34
3.1.4 - Définition de deux sous bassins versants .....	35
3.1.5 - Connaissance des surfaces contributives aux transferts de surface .....	35
3.1.6 - Les exploitations agricoles et la gestion des effluents d'élevages.....	36
3.1.7 – Les pratiques agricoles relatives aux épandages et pâturages. ....	37
Les périodes d'épandages .....	37
Le pâturage.....	38
Un bassin versant impacté par les pollutions agricole diffuses.....	38
3.2 – <i>Description générale du bassin versant de « Medreac »</i> .....	39
3.2.1 – Situation et milieu physique.....	39
3.2.2 – Les activités présentes sur le bassin versant de Médréac.....	40
3.2.2.1 - L'activité agricole.....	40
3.2.2.2 - Une présence humaine marquée au nord du BV par la station d'épuration .....	41
<b>IV - Méthodologie .....</b>	<b>43</b>
4.1 - <i>Enquêtes sur l'utilisation des médicaments vétérinaires pour les filières bovine et porcine et avicole</i> .....	43
4.1.1 – Echantillonnage des vétérinaires et leur représentativité.....	43
4.1.2 – Enquêtes sur les pratiques des vétérinaires .....	44
4.1.2.1 –Questionnaire et déroulement de l'enquête .....	44
4.1.2.2 – Traitement des enquêtes.....	45
4.2 – <i>Stratégie d'échantillonnage</i> .....	46
4.2.1 – Les points de prélèvements et fréquence d'échantillonnage sur Kervidy Naizin .....	46
4.2.2 – Positionnement des prélèvements par rapport aux périodes d'épandages .....	46
4.3 – <i>L'échantillonnage sur le BV de Médréac</i> .....	47
4.3.1 – Les points de prélèvements et fréquence d'échantillonnage .....	48
4.3.2 – Positionnement des prélèvements par rapport aux conditions hydrologiques.....	49
4.3 – <i>Les listes de molécules médicamenteuses recherchées et les protocoles d'analyse</i> .....	50
4.4 – <i>Le suivi bactériologique et l'origine de la contamination fécale</i> .....	52
<b>V - Résultats - Discussion .....</b>	<b>53</b>
5.1 - <i>Enquêtes auprès des vétérinaires – indicateur du niveau de prescription des molécules médicamenteuses en contexte d'élevages bovins, porcins et avicoles</i> .....	53
5.1.1 – Les molécules prescrites en élevage bovins lait .....	53
5.1.1.1 – Usage des antibiotiques .....	53
5.1.1.2 - Les autres classes thérapeutiques : les antiparasitaires et anticoccidiens, les anti-inflammatoires et les hormones.....	56

5.1.2 – Les molécules prescrites en élevage porcin. ....	58
5.1.2.1 – Les antibiotiques.....	58
5.1.2.2 - Les autres classes thérapeutiques.....	60
5.1.3 – Les molécules prescrites en élevage avicole .....	61
5.1.3.1 – Les antibiotiques.....	61
5.1.3.2 – les autres classes thérapeutiques .....	63
5.1.4 – Intérêts et limites de la méthode, pertinence des indicateurs .....	64
5.1.4.1. Signification de l'indicateur du niveau de prescription et limites à prendre en compte.....	64
5.1.4.2. Pertinence de choisir les vétérinaires pour les enquêtes .....	64
5.1.4.3 - Variabilité des prescriptions des vétérinaires.....	65
5.1.4.4 - Apports de la méthode et représentativité des résultats.....	66
5.2 – <i>Un outil d'aide à la décision pour choisir les molécules à rechercher prioritairement dans les eaux superficielles</i> .....	67
5.2.1 - Quelles molécules rechercher prioritairement sur les bassins versants étudiés ? .....	67
5.2.2 – De nouvelles molécules à prendre en compte pour adapter les menus analytiques aux contextes d'élevage des territoires .....	72
5.3 - <i>Les transferts sur le bassin versant de Kervidy Naizin</i> .....	73
5.3.1 – Occurrence des résidus de médicaments sur le BV de Kervidy-Naizin lors des prélèvements ponctuels .....	73
5.3.1.1 – Quelles molécules sont quantifiées ? .....	73
5.3.1.2 – Les niveaux de concentrations observés .....	75
5.3.1.3 - Des sous-bassins versants avec des niveaux de contaminations contrastés .....	75
5.3.2 – Occurrence des molécules lors des épisodes de crues (préleveur automatiques), comparaison avec les prélèvements ponctuels .....	77
5.3.3 - Comparaison des teneurs cumulées à l'exutoire en crue et lors des prélèvements ponctuels ....	78
5.3.4 - La contamination fécale sur le bassin versant Kervidy Naizin .....	82
5.3.4.1- Niveau de contamination lors des crues et en prélèvement ponctuel .....	82
5.3.4.2 - Quand ont lieu les plus importantes contaminations fécales? .....	83
5.3.4.3 – Origine des contaminations fécales .....	84
En crue .....	84
Les apports d'effluents sur les deux sous-BV, Mercy et Gueriniec (point 2 et 3) .....	85
5.3.5 – Contamination fécale et occurrence des résidus de médicaments.....	85
5.3.6 – Origine de la contamination fécale et contamination par les résidus médicamenteux .....	86
5.3.7 - Y a –t-il une cohérence entre les molécules majoritairement prescrites (résultats des enquêtes) et celles quantifiées sur le bassin versant ? .....	88
5.4 – <i>Le bassin versant de Médréac</i> .....	90
5.4.1 - Occurrence des résidus de médicaments sur l'ensemble du bassin versant de Médréac (27km <sup>2</sup> ) .....	90
5.4.2 - Les niveaux de concentrations sur l'ensemble du bassin versant .....	92

5.4.3. – Un état de contamination contrasté entre les deux bassins versants principaux .....	92
5.4.4 – Transferts dans les têtes de bassin versant.....	94
5.4.5 – Influence limitée de la station d'épuration sur la contamination par les résidus médicamenteux	97
5.4.6 – Effet de la taille du bassin versant.....	99
5.4.7. Existe-t-il une variabilité saisonnière dans l'occurrence des molécules ? .....	99
5.4.8 - La contamination fécale sur le bassin versant de Médréac .....	100
5.4.8.1 - Niveau de contamination dans les têtes de bassins et influence de la STEP .....	100
5.4.8.2 - Quand ont lieu les plus importantes contaminations fécales? .....	101
5.4.8.3 - Origine des contaminations fécales .....	101
5.4.9 - La contamination par les résidus médicamenteux est indépendante de la contamination fécale .....	102
5.4.10 – Résidus de médicaments et l'origine de la contamination fécale.....	103
5.4.11 - Y a-t-il une cohérence entre les molécules majoritairement prescrites (résultats des enquêtes) et celles quantifiées sur le bassin versant ? lien avec l'origine de la contamination.....	104
5.5 – Comparaison des deux bassins versants étudiés et lien avec les résultats des enquêtes .....	105
<b>VI - Conclusion .....</b>	<b>109</b>
<b>VII - Glossaire .....</b>	<b>113</b>
<b>VIII - Sigles et abréviations.....</b>	<b>114</b>
<b>IX - Bibliographie.....</b>	<b>115</b>
<b>X - Table des illustrations.....</b>	<b>118</b>
<i>Liste des figures.....</i>	<i>118</i>
<i>Liste des tableaux.....</i>	<i>120</i>
<b>XI - Annexes .....</b>	<b>122</b>
<i>Annexe 1 : Liste des médicaments vétérinaires prioritaires à rechercher dans les eaux (AFSSA, 2008).</i>	<i>123</i>
<i>Annexe 2 : Questionnaire type - enquête auprès des vétérinaires (années 2014 et 2015).....</i>	<i>124</i>
<i>Annexe 3 : Protocole de prélèvements des échantillons pour l'analyse des résidus de médicaments et protocoles d'analyse des différents laboratoires, pour l'analyse des indicateurs et marqueurs de contamination fécale.....</i>	<i>128</i>
<i>Annexe 4 : Résultats des campagnes d'analyses pour les prélèvements ponctuels sur le bassin versant de Kervidy-Naizin.....</i>	<i>130</i>
<i>Annexe 5 : Résultats des campagnes d'analyses pour les prélèvements en crue (préleveur automatique) sur le bassin versant de Kervidy-Naizin .....</i>	<i>132</i>
<i>Annexe 6 : Résultats des campagnes d'analyses sur le bassin versant de Médréac .....</i>	<i>134</i>

- **REMERCIEMENTS**

Les auteurs remercient les vétérinaires qui ont accepté de participer aux enquêtes. Ils remercient également

## I - INTRODUCTION

La France se place parmi les pays les plus forts consommateurs de médicaments aussi bien pour un usage humain que vétérinaire, et tant au niveau européen que mondial,

La présence de résidus médicamenteux (RM) dans les eaux est aujourd'hui largement avérée dans le monde comme au niveau national. Le risque lié à la présence de ces molécules qui correspondent à la partie non dégradée de la matière active du médicament, concerne l'homme et l'animal : présence de RM dans les eaux destinées à la consommation humaine, dégradation des écosystèmes aquatiques par la présence d'hormones ayant un effet perturbateur du système endocrinien, développement des phénomènes d'antibiorésistance de certaines bactéries dans l'environnement, affectant aussi bien la médecine humaine que vétérinaire.

Face à cette problématique de santé publique et aux larges interrogations qu'elle suscite, plusieurs actions ont été engagées sur le plan national, s'inscrivant également dans une dynamique plus générale initiée au niveau européen. Le Plan National Santé Environnement (PNSE 1) (2004-2008) et le PNSE 2 (2009-2013) ont conduit à la mise en œuvre d'actions portant sur les résidus de médicaments dans l'eau de consommation. Le plan national sur les résidus médicamenteux dans les eaux (PNRM 2010-2015) a ainsi été instauré et vise à préciser les enjeux environnementaux et de santé publique liés à la présence de ces résidus médicamenteux dans les différents compartiments aquatiques et à en réduire la présence. Cette problématique est également prise en compte dans le plan d'action national contre la pollution des milieux aquatiques par les micropolluants. Plus spécifiquement, le plan national de réduction des risques d'antibiorésistance en médecine vétérinaire (Ecoantibio, 2012-2017) a pour objectif de diminuer de 25% les antibiotiques à usage vétérinaire, en mettant l'accent sur ceux qui contribuent à la résistance bactérienne (les céphalosporines de dernières générations (3ème et 4ème) et les Fluoroquinolones définies comme « molécules critiques »).

Dans ce contexte, plusieurs campagnes d'analyse des RM dans les eaux ont été menées au niveau national en 2009 (ANSES, 2011) et à l'échelle du bassin versant Loire-Bretagne, en 2005 (Dagnac, 2005) et 2009/2010 (Amalric et Togola, 2011). Ces études s'appuient sur des stations de mesures du réseau national et mettent principalement l'accent sur les molécules à usage humain.

La prise en compte des molécules à usage vétérinaire s'exerce à une échelle plus régionale, sous l'influence des spécificités territoriales des productions animales. Ainsi, la Bretagne, où prédomine une activité agricole d'élevage menée majoritairement de manière intensive, est soumise à de fortes pressions en termes d'usage de médicaments vétérinaires. Cette problématique constitue d'ailleurs un axe clairement identifié dans le deuxième plan régional Santé-Environnement de la Bretagne (PRSE, 2011-2015) portant sur « l'occurrence des résidus médicamenteux notamment d'origine vétérinaire, dans les eaux destinées à la consommation humaine en Bretagne ».

La difficulté dans l'étude de l'occurrence des résidus de médicaments dans les eaux relève en partie du nombre très important de molécules utilisées, 3000 en médecine humaine et 300 en médecine vétérinaire (Py et al., 2009). De plus, les sources sont multiples. Elles mêlent les origines humaines et/ou animales des pollutions diffuses (épandage d'effluents d'élevage, pâturage, épandage des boues de station d'épuration) ou des pollutions ponctuelles (rejet de STEP, débordement de fosses de bâtiments d'élevage, rejet des dispositifs d'assainissement individuel lié à l'habitat éparé). Dans un tel contexte, discriminer l'origine de la pollution devient d'autant plus complexe que de nombreuses molécules médicamenteuses ont un usage mixte, humain/animal. Pourtant, cette étape reste fondamentale pour proposer des actions de gestion pertinentes et ciblées, dans un objectif de reconquête de la qualité de l'eau destinée à la consommation, et des écosystèmes aquatiques.

Le projet REMEDES, objet du présent rapport, étudie l'occurrence des résidus médicamenteux au sein de bassins versants agricoles bretons, dominés par une activité d'élevage porcins et bovins lait. Dans une approche originale, ce projet cherche à vérifier s'il existe un co-transport entre les résidus médicamenteux (RM) présents dans les eaux superficielles et les contaminations fécales. En effet, les produits d'origine médicamenteuse sont très majoritairement rejetés dans l'environnement via les déjections humaines et animales. Elle propose donc de coupler l'analyse des résidus médicamenteux avec des indicateurs de contamination fécale (*E. coli* et entérocoques) et des marqueurs de cette contamination que sont les stanols fécaux.

Dans une première partie, le rapport présente une synthèse de l'usage des médicaments vétérinaires en fonction des différentes productions animales, mise en regard de la spécificité bretonne. Les médicaments utilisés en élevage sont majoritairement des antibiotiques et des antiparasitaires/anticoccidiens mais dans une moindre mesure des anti-inflammatoires et des hormones. Quelques éléments de connaissance sur l'origine de RM vétérinaires et les voies de transferts sont présentés.

Dans une deuxième partie, les bassins versants étudiés sont décrits. Les investigations portent sur des têtes de bassins versants (BV), un positionnement adapté pour étudier au plus près les transferts qui ont lieu entre ce qui est apporté sur les sols et les cours d'eau qui drainent ces BV. Les points de prélèvement sont choisis de manière à appréhender les variabilités spatiales et temporelles de la contamination, soit par des campagnes de prélèvements ponctuels, soit par un suivi des crues prélevées automatiquement (dispositif en place). Les deux BV, de 5 à 27 km<sup>2</sup>, sont situés en contexte d'élevage intensif, l'un deux étant soumis à une présence humaine plus forte marquée par la présence d'une station d'épuration. La position de ce dernier à l'amont immédiat d'une station de mesure du réseau national de surveillance permettra, à terme, de faire le lien avec des données de suivi nationales. L'ensemble des analyses effectuées à chaque prélèvement est présenté,

La troisième partie traite des résultats obtenus concernant :

- la réalisation des enquêtes menées auprès de vétérinaires afin d'élaborer une liste de molécules à rechercher dans les eaux, adaptée à la nature des élevages présents, toutes les classes thérapeutiques étant prises en compte ;
- l'occurrence des RM d'origine vétérinaire observée sur chaque bassin versant, en lien avec la contamination fécale.

Enfin, l'approche suivie permet de définir des éléments opérationnels pour diagnostiquer les pollutions diffuses des eaux superficielles par les résidus médicamenteux vétérinaires.

## II - DE L'USAGE DES MEDICAMENTS VETERINAIRES A LA PRESENCE DE RESIDUS DANS LES EAUX SUPERFICIELLES – SPECIFICITE DU CONTEXTE BRETON

### 2.1 – La Bretagne : terre d'élevage et spécificité territoriale

(Source : Agreste - Draaf Bretagne – Recensements agricoles 2000 et 2010)

L'agriculture occupe une place importante sur le territoire breton, tant sur le plan économique (production agricole ou agroalimentaire) qu'en terme d'occupation du sol. Les terres arables (54%) et les surfaces toujours en herbe (8%) occupent en effet 62% du territoire contre 50% au niveau national.

L'activité agricole est largement dominée par l'élevage. En 2010, 7 exploitations sur 10 ont une activité tournée vers l'élevage. La répartition des exploitations est présentée dans le tableau suivant.

Tableau 1 : Répartition des exploitations selon leur orientation économique

Orientation économique des exploitations	Nombre d'exploitations
légumes frais et maraîchage	1 485
autres cultures	5 561
bovins lait	10 197
autres élevages herbivores	5 580
porcs	3 351
volailles	3 172
Autres élevages granivores	327
Autres orientations	4 774
Total	34 447

Si la Bretagne ne représente que 7% des exploitations du territoire national, elle reste cependant la **première région française pour les productions animales**. Les modes de production y sont majoritairement intensifs en comparaison d'autres régions françaises. Les trois filières principales sont les bovins lait, le porc et la volaille de chair, mais les filières bovin viande et poules pondeuses sont également bien présentes, avec dans une moindre mesure les filières ovine, caprine, équine et cunicole.

Les données pour l'année 2012 sont les suivantes :

- Le cheptel bovins dépasse les 2 millions de têtes (11% du cheptel français), avec près de **750 000 vaches laitières (20% des effectifs nationaux)**. L'Ille-et-Vilaine se situe au 1<sup>er</sup> rang des quatre départements bretons producteurs de lait. Les vaches allaitantes produites en Bretagne ne représentent que 3% de la production française.

- Les effectifs porcins s'élèvent à environ 7,6 millions de têtes dont 3,1 millions de porcs charcutiers (57% du total français). La viande porcine produite en Bretagne en 2013 représente 59% du tonnage national. En 2010, la Bretagne comptait environ 5700 exploitations porcines (de plus de 20 truies ou 100 porcs à l'engraissement), dont 2955 exploitations en naisseurs-engraisseurs. La production porcine bretonne se situe principalement dans le Finistère (1<sup>er</sup> département) et les Côtes d'Armor (2<sup>ème</sup> département).
- Les gallus (poulets de chair, poules pondeuses, canards, dindes, etc.) produits en Bretagne représentent 38% de la production nationale avec 89,7 millions de têtes en 2013. La région se positionne au 1er rang pour les capacités d'élevage de volaille de ponte (1er département français : Côtes-d'Armor) et le 2e rang pour la surface de bâtiments de volailles de chair (1er département français : Morbihan).

## 2.2 – L'usage des médicaments vétérinaires en productions animales

Les médicaments vétérinaires sont utilisés en grande quantité dans les élevages agricoles et les molécules médicamenteuses qui les constituent se répartissent en plusieurs classes thérapeutiques :

- les antibiotiques ;
- les antiparasitaires et anticoccidiens ;
- les antipyrétiques, antalgiques et anti-inflammatoires ;
- les hormones.

Certaines de ces molécules peuvent avoir un usage mixte, à la fois humain et animal.

Les antiparasitaires et les antibiotiques sont les deux classes les plus consommées sur le territoire national et représentent respectivement 22% et 18% du chiffre d'affaire des médicaments vétérinaires (Virlovet, 2006).

Au niveau international, l'OIE a établi une liste des agents antimicrobiens à usage vétérinaire pour le traitement des animaux dont la chair ou les produits sont destinés à la consommation humaine<sup>1</sup>. En France, L'ANSES présente l'index des médicaments vétérinaires autorisés en France<sup>2</sup>. Celui-ci donne accès notamment aux résumés des caractéristiques du produit (RCP).

### 2.2.1 Usage des antibiotiques selon les types d'élevages

Sur le plan national, et au regard des enjeux de santé publique qui leurs sont liés, seuls les antibiotiques font aujourd'hui l'objet d'un suivi ou d'études plus spécifiques menées à l'échelle des filières animales.

Ainsi, depuis 1999, l'ANSES (anciennement AFSSA) réalise un suivi annuel des ventes de médicaments vétérinaires contenant des antibiotiques, et depuis 2009 les données permettent d'évaluer la part destinée à chaque espèce de production. Les données des ventes sont traduites en quantité de matière active vendue et en poids vif traité.

Le tableau suivant (Tableau 2) détaille les quantités vendues en France en 2013 par catégorie animale. Les données intègrent également les médicaments destinés aux animaux domestiques

---

<sup>1</sup> [http://www.oie.int/fileadmin/Home/fr/Our\\_scientific\\_expertise/docs/pdf/OIE\\_list\\_antimicrobials.pdf](http://www.oie.int/fileadmin/Home/fr/Our_scientific_expertise/docs/pdf/OIE_list_antimicrobials.pdf)

<sup>2</sup> <http://www.ircp.anmv.anses.fr/>

(chiens et chats) mais ceux-là ne représentent que 2,2% de la consommation totale de médicaments vétérinaires.

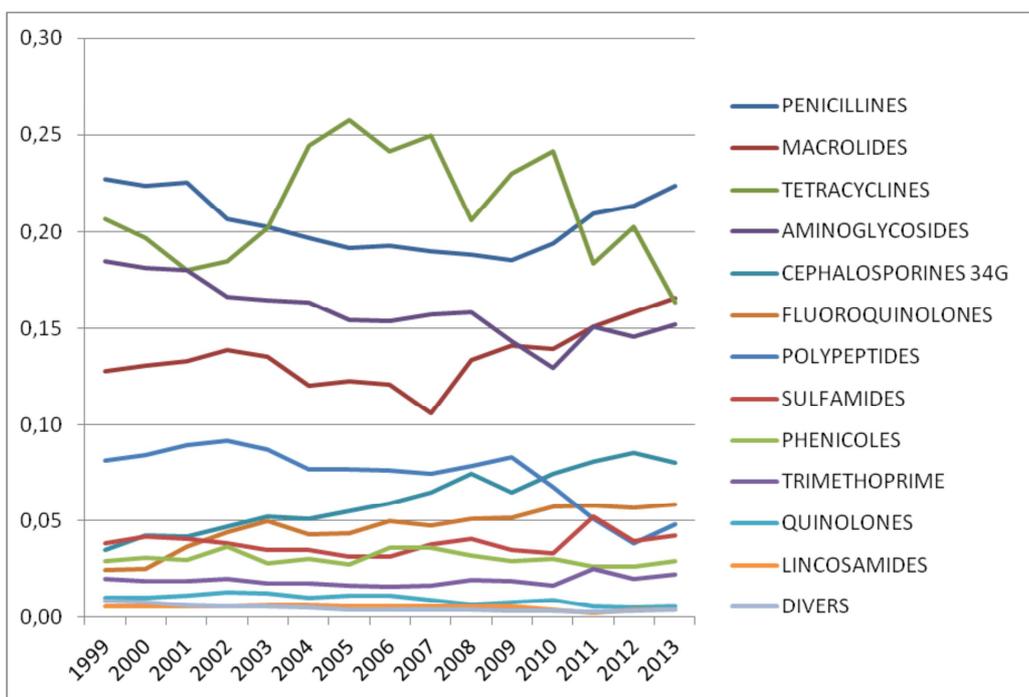
**Tableau 2 : Répartition des ventes 2013 entre les différentes espèces en tonnage de matière active et en quantité de matière active par kilogramme animal (Chevance et Moulin, 2014)**

	Bovins	Chats & Chiens	Chevaux	Poissons	Lapins	Ovins & Caprins	Porcs	Volailles	Autres	Total
Tonnage vendu	147,17	15,17	15,31	2,86	52,46	45,16	262,12	156,57	2,27	699,09
Pourcentage	21,1%	2,2%	2,2%	0,4%	7,5%	6,5%	37,5%	22,4%	0,3%	100,0%
Ventes en mg/kg	15,81	96,68	51,44	63,57	517,57	78,93	91,30	85,60	65,25	45,95

Les résultats indiquent, qu'en 2013, le volume total des ventes d'antibiotiques vétérinaires s'élève à près de 700 tonnes. Ce volume se répartit différemment entre les espèces, ainsi 37 % du tonnage d'antibiotiques vendus est à destination des porcs, plus de 22 % est à destination de la volaille et 21 % est à destination des bovins. En tenant compte du poids vif de l'ensemble des effectifs (poids vif des animaux produits), il a été vendu 45,95 mg d'antibiotiques par kilogramme de poids vif des animaux. Mais, ces chiffres sont aussi très variables d'une production à l'autre.

Si les quantités d'antibiotiques utilisées varient d'une espèce à l'autre, il en est de même pour le classement des différentes familles de molécules administrées.

D'après les ventes nationales 2013, les bovins sont traités en majorité avec des pénicillines, puis avec des macrolides, tétracyclines et aminosides (Figure 1). Puis viennent ensuite les céphalosporines de dernières générations et les fluoroquinolones, pour lesquelles le poids vif traité par ces antibiotiques a fortement augmenté depuis 1999, respectivement de 122,6% et de 128,8% (Chevance et Moulin, 2014). En revanche le poids vif traité aux tétracyclines tend à diminuer depuis quelques années.



**Figure 1 : Evolution de la part des familles d'antibiotiques dans le poids vif traité des bovins (%) (Chevance et Moulin, 2014)**

Dans leur étude réalisée en 2010 à partir d'enquêtes postales menées auprès d'éleveurs bovins, Cazeau et al (2010) ont une autre approche et décrivent l'usage des antibiotiques en indiquant la proportion de traitements utilisant au moins une fois la famille de molécules. Les résultats révèlent

alors que les aminosides sont les plus utilisées (44,8%), puis les pénicillines (41,5%), les tétracyclines (29,9%), les polypeptides (26,8%) et les céphalosporines (17,5%).

Pour la filière porcine, l'usage des antibiotiques est différent. Les résultats présentés sur la figure suivante (Figure 2) indiquent qu'en 2013, les porcs sont traités majoritairement par des tétracyclines et des polypeptides (principalement la colistine), puis viennent ensuite les pénicillines, les sulfamides, le triméthoprime et les macrolides.

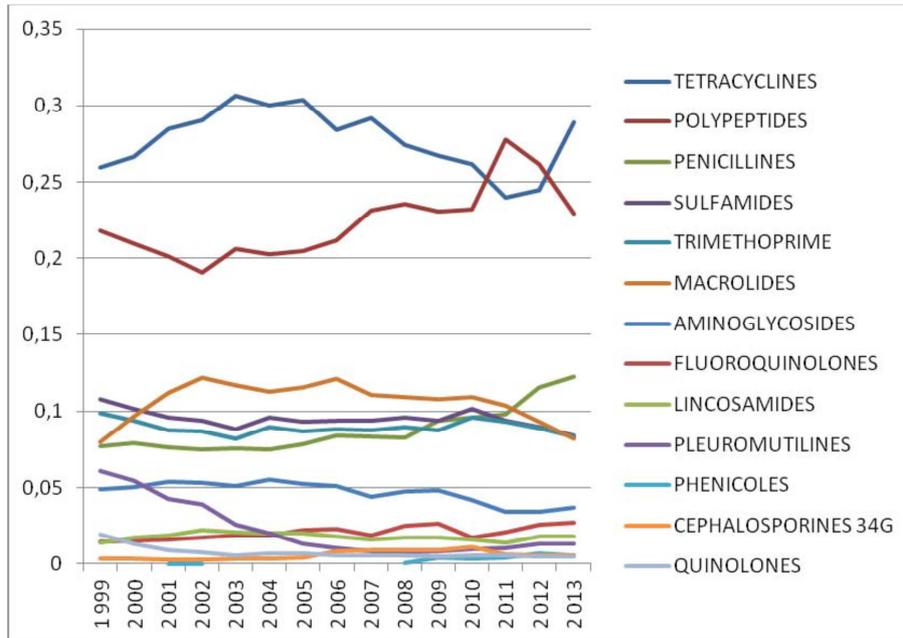


Figure 2 : Evolution de la part des familles d'antibiotiques dans le poids vif traité des porcs

Pour l'année 2013, la Figure 3 indique que plus de 40% du poids vif traité des volailles l'est par des antibiotiques de la famille des polypeptides (essentiellement la colistine) et par des tétracyclines, puis par des pénicillines et des sulfamides et le triméthoprime.

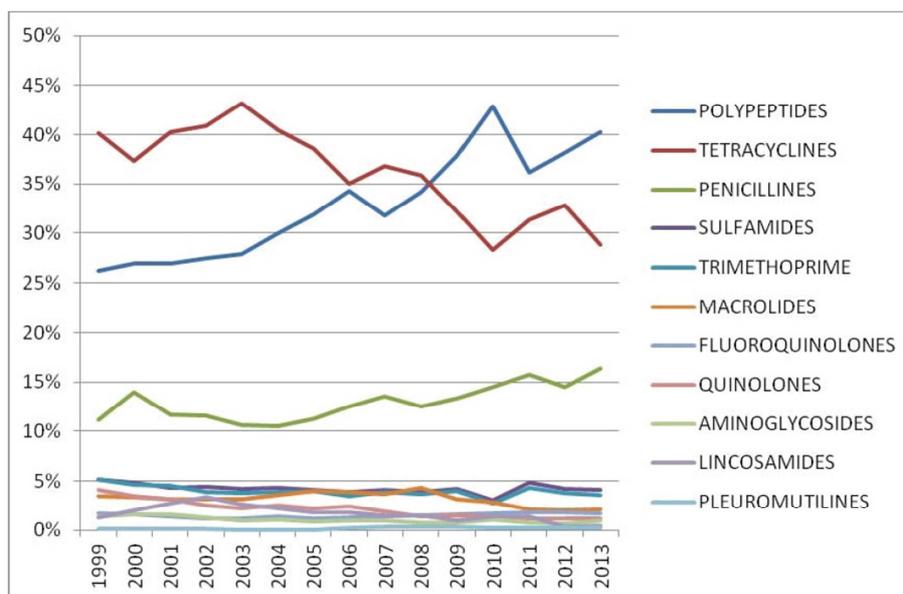


Figure 3 : Evolution de la part des familles d'antibiotiques dans le poids vif traité des volailles

Pour les porcs et les volailles, deux familles ressortent majoritairement, les polypeptides et les tétracyclines. Pour la filière bovine les usages semblent plus diversifiés.

L'ensemble de ces données nationales reflètent un usage global des antibiotiques par espèce. Mais elles ne tiennent pas compte, pour une même filière de production, de la typologie des élevages et de l'ensemble des facteurs qui ont une incidence sur la nature des maladies majoritairement rencontrées, sur les modes d'administration préférentiels et donc sur les médicaments utilisés.

Par exemple, en production laitière bovine, plus des deux tiers des traitements sont appliqués pour des affections de la mamelle tandis qu'ils ne représentent que 11% pour les élevages bovins allaitants. Pour ces derniers, les motifs de traitement sont plus liés à des problèmes de gynécologie-obstétrique (31%) et des problèmes locomoteurs (26%). Autre exemple particulier, celui des élevages de veaux de boucherie qui sont les principaux consommateurs des traitements administrés par voie orale et de façon collective (Chevance et Moulin, 2014)<sup>3</sup>. Les traitements les plus utilisés sont alors principalement à base de tétracyclines, puis de sulfamides et de macrolides. En élevage bovins, 80% du tonnage administré à cette espèce correspondent à des traitements par voie orale (Togola et Desforges, 2009). En revanche, Cazeau *et al.* (2010) précisent qu'au sein de cette filière, 80% des traitements antibiotiques administrés le sont de façon individuelle.

Autre exemple, Cazeau *et al.* (2010) et Gay *et al.* (2012) soulignent que les céphalosporines de 3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> utilisées au sein de la filière bovine le sont préférentiellement en production laitière en raison d'un temps d'attente pour le lait très faible à nul. Il en est de même pour la colistine qui, administrée par voie orale, reste dans le tube digestif sans passer dans le lait. Donc, dans le cadre d'une étude régionale, et suivant la diversité des élevages en présence, la nature des médicaments et des employés ne présenteront pas toujours le même classement hiérarchique, pour une même filière.

Ces particularités se vérifient aussi au sein de la filière porcine.

S'appuyant sur échantillon d'environ 170 élevages porcins représentatifs de la production française (mise en place du Panel INAPORC), Hémonic *et al.* (2014) montrent que la majorité des traitements en élevages porcins est liée à des pathologies digestives en post-sevrage et que la **colistine** est principalement employée dans 82% des élevages. Elle est également largement utilisée pour traiter les diarrhées du veau. Les pénicillines sont majoritairement utilisées pour les problèmes locomoteurs chez les porcelets sous la mère et les tétracyclines sont employées largement en post sevrage, en raison de leur large spectre, pour traiter les problèmes respiratoires mais également chez la truie, par voie orale et de façon collective, lors de suspicion de Leptospirose (maladie entraînant des troubles de la reproduction). L'association triméthoprime-sulfamides est utilisée dans le traitement des pathologies urinaires chez la truie. Ces résultats s'appuyant sur un panel national, ne montrent pas un usage important des fluoroquinolones.

A contrario, Chauvin *et al.* (2012) ont montré, à partir d'enquêtes réalisées en 2008 au sein d'élevages porcins localisés dans le Grand Ouest, que les fluoroquinolones étaient largement utilisés et représentaient 30% du poids vif traité, les phénicolés (essentiellement florfénicol) et les tétracyclines représentant respectivement 23 et 20% du poids vif traité. Cela tendrait à montrer l'influence territoriale dans l'usage des antibiotiques liée aux caractéristiques intrinsèques de l'élevage (types de production et de bâtiments, répartition géographique, pratiques des vétérinaires

---

<sup>3</sup> L'administration par voie orale est peut pratiquée sur l'animal adulte, car une fois que l'appareil digestif est mature, la voie orale n'est plus efficace (Togola et Desforges, 2009)

et des éleveurs, etc.). Chauvin *et al.* (2012) ont évoqué ces différents facteurs pouvant influencer l'usage des antibiotiques.

### *Éléments méthodologiques sur la mesure de l'usage des antibiotiques : quels indicateurs ?*

Les connaissances sur l'usage des antibiotiques s'appuient donc aujourd'hui sur deux approches complémentaires encadrées par l'ANSES (Chevance *et al.*, 2012) i) le suivi annuel qui recense et quantifie de manière exhaustive les médicaments vétérinaires vendus au niveau national pour chaque espèce animale et ii) les études spécifiques menées ponctuellement depuis une dizaine d'années à l'échelle des filières bovine (Cazeau *et al.*, 2010) ou autres ruminants (Gay *et al.*, 2012), porcine (Hémonic *et al.*, 2014), avicole (Chauvin *et al.*, 2010) et cunicole (Chauvin *et al.*, 2012).

Toutes ces études ont pour objectif i) d'identifier les principaux antibiotiques et les conditions de leur usage en recueillant des données descriptives détaillées, ii) de comprendre les facteurs pouvant influencer leur consommation, et iii) d'établir ainsi un état des lieux des pratiques d'utilisation de ces antibiotiques au sein de chaque filière. Leur méthodologie s'appuie sur des enquêtes postales menées auprès d'un échantillon de vétérinaires et/ou d'éleveurs. Par exemple, au sein de la filière porcine, l'interprofession a ainsi constitué un panel de 169 éleveurs qui sera suivi au fil du temps (panel INAPORC) pour appréhender l'évolution des usages et des pratiques en élevage (Hémonic *et al.*, 2014). Ces enquêtes ne recherchent pas l'exhaustivité mais la représentativité de l'échantillon. Les éleveurs sont par exemple questionnés sur les deux derniers traitements administrés (Cazeau *et al.*, 2010) et différents éleveurs sont sollicités progressivement au cours de l'année afin de prendre en compte la variabilité saisonnière des maladies et donc des médicaments administrés.

Etudier l'utilisation des antibiotiques nécessite de collecter des données descriptives mais également de déterminer des modalités d'expression des usages en fonction des objectifs fixés et des problématiques considérées qui peuvent relever de composantes infectieuses, sanitaires, économiques et environnementales (Chauvin *et al.*, 2010). Comme le résume Chauvin *et al.* (2012) les nombreux indicateurs calculés peuvent signifier : le coût représenté, le nombre de traitements effectués, le nombre de jours d'administration d'une molécule, la quantité de poids vif traité, le poids correspondant de matière active correspondants. Tous ces indicateurs, exprimés en différentes unités, varient en fonction de la finalité de l'étude. Même, s'ils sont souvent corrélés entre eux, ils ne sont jamais équivalents.

Dans un contexte visant à réduire l'utilisation des antibiotiques face au développement de l'antibiorésistance, différents indicateurs sont donc pris en compte i) des indicateurs de ventes de matières actives, et ii) des indicateurs évaluant l'exposition des animaux aux antibiotiques. En effet, l'analyse des volumes vendus ne reflète pas nécessairement la pression thérapeutique exercée sur les animaux. Les molécules antibiotiques récentes sont généralement plus actives et nécessitent des quantités administrées moindres. Dans ce cas, une baisse des ventes ne signifie pas une baisse de l'exposition aux antibiotiques des animaux traités.

D'autres indicateurs pourront être pris en compte pour étudier l'évolution générale de la prescription de médicaments vétérinaires au cours du temps et pour mesurer les effets des actions mises en place au plan national.

L'indicateur qui semble le plus représentatif du niveau d'exposition animale aux antibiotiques et proposé par l'ANSES, est l'ALEA (Animal Level of Exposure to Antimicrobials). Cet indicateur est

obtenu en divisant le poids vif traité dans une espèce par la masse d'animaux potentiellement traitables. Il intègre notamment des données sur le traitement (dose et durée) et sur les populations potentiellement utilisatrices d'antibiotiques (masse de la population traitable).

Ainsi, d'après les données de ventes 2013 (Tableau 3), 30,5 % du cheptel bovin a été traité aux antibiotiques (Chevance et Moulin, 2014). L'ALEA indique que les lapins, les volailles et les porcs sont les plus exposés aux antibiotiques.

**Tableau 3 : Répartition des ventes 2013 entre les différentes espèces en tonnage de poids vif traité et en indicateur du niveau de l'exposition ALEA)**

	Bovins	Chats & Chiens	Chevaux	Poissons	Lapins	Ovins & Caprins	Porcs	Volailles	Autres	Total
Poids vif traité (tonnage)	2 839 593	104 770	108 806	8 027	273 824	231 361	2 730 607	2 043 147	18 300	8 363 438
Pourcentage	34,0%	1,3%	1,3%	0,1%	3,3%	2,8%	32,6%	24,4%	0,2%	100 %
ALEA	0,305	0,668	0,366	0,178	2,701	0,404	0,951	1,117	0,525	0,550

Tous ces éléments montrent que les données nationales des ventes traduisent une vision macroscopique de l'usage des antibiotiques (Chevance et al., 2012) et qu'elles ne permettent pas de révéler des spécificités territoriales en lien avec la répartition géographique des différents types d'élevages. Quel que soit l'objectif recherché, ces études restent complexes à mettre en œuvre en raison de plusieurs critères notamment, l'accès aux données et leur disponibilité, le temps d'acquisition et de traitement des données et le coût induit. Il est important de disposer d'une méthode qui permette d'accéder facilement à des données pertinentes selon le niveau d'information recherché.

## 2.2.2 Cas des molécules non antibiotiques : antiparasitaires, analgésiques, anti-inflammatoires, hormones

### 2.2.2.1 - Les antiparasitaires

Bien que les antiparasitaires constituent la deuxième classe thérapeutique en terme d'usage de médicaments vétérinaires, il n'existe pas de données publiées comme pour les antibiotiques. L'ANSES-ANMV dispose toutefois de données sur les tonnages vendus en 2006 pour 40 antiparasitaires destinés aux animaux de rente en France (AFSSA, 2008).

De part la nature même de leur usage, les antiparasitaires sont assimilés aux « pesticides » tels que définis par l'observatoire des résidus de pesticides (ORP). Certaines molécules sont même communes aux antiparasitaires vétérinaires et aux produits phytosanitaires (ou phytopharmaceutiques) utilisés pour le traitement des cultures (Figure 4).

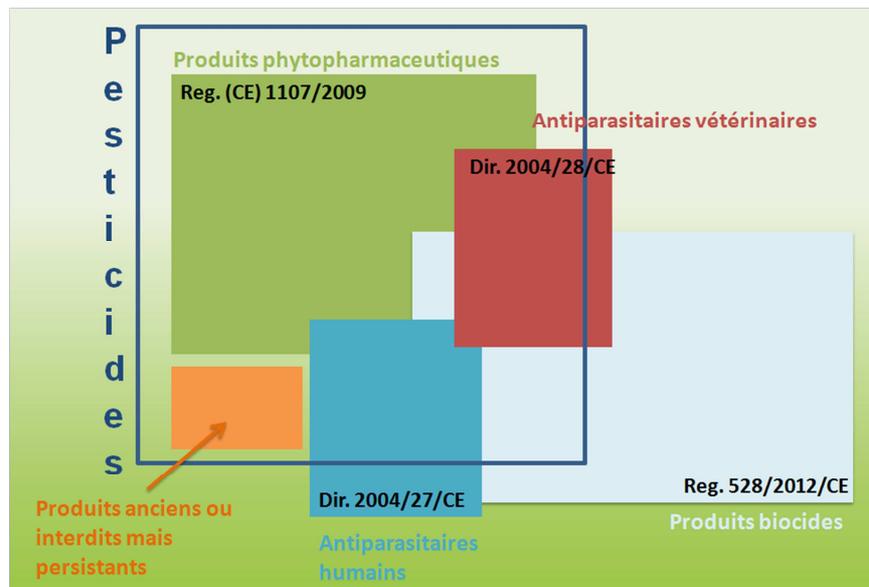


Figure 4 : Détail des différentes substances "pesticides" selon l'ORP (<http://observatoire-pesticides.gouv.fr/index.php?pageid=103>)

En 2008, le groupe d'étude « exposition imprégnations et déterminants de l'exposition aux pesticides en population générale » (« GE Expo ») de l'ORP, a exploité les bases de données de l'ANMV et Eudrapharm (base de données européenne) et ainsi pu dénombrer 90 antiparasitaires destinés au traitement des animaux d'élevage, dont 32 produits à usage externe et 58 à usage interne. Dans ces produits 9 familles chimiques et 23 substances actives sont représentées (ANSES, 2010). Toutefois cette liste a pu évoluer depuis

Togola et Desforges (2009) ont synthétisé quelques éléments relatifs à cette classe thérapeutique. Les trois classes d'antiparasites les plus utilisées sont les avermectines, les benzimidazoles et les imidazothiazoles. Un grand nombre d'AMM a été accordé pour les bovins et ovins, alors que les porcins et volailles disposent de moins de médicaments autorisés et que les lapins et poissons n'en ont aucun.

La seule molécule autorisée en France dont l'usage est commun entre les antiparasitaires vétérinaires et les produits phytosanitaires est la deltaméthrine (famille des pyréthriinoïdes) utilisée uniquement chez les bovins et ovins en traitement externe.

### 2.2.2.1 - Les analgésiques, anti-inflammatoires et les hormones

Le nombre de molécules est beaucoup plus réduit pour ces classes thérapeutiques. Ils sont surtout utilisés chez les bovins et les porcins (Togola et Desforges, 2009). L'acide acétylsalicylique est le seul utilisé chez les ovins et les volailles.

Il existe un grand nombre de traitements hormonaux ayant une AMM pour réguler la reproduction des bovins et porcins, alors qu'un petit nombre a une autorisation pour les ovins et lapins (Togola et Desforges, 2009). L'usage des hormones est interdit en élevage de volailles depuis de nombreuses années.

## 2.3. Quelles molécules à usage vétérinaire rechercher dans les eaux ?

### 2.3.1 - Les références nationales

Il n'existe actuellement aucune liste « officielle » de molécules à rechercher dans les eaux, qu'elles soient humaines ou vétérinaires, dans le cadre d'un suivi de la contamination des milieux aquatiques par ces résidus médicamenteux.

La seule liste disponible est celle établie par l'AFFSA (AFFSA, 2008) dans le cadre du Plan National Santé Environnement (PNSE 1 - 2004-2008), et vise les molécules susceptibles de contaminer les ressources en eau destinée à la consommation humaine<sup>4</sup>.

La classification permettant de sélectionner les molécules d'intérêt à rechercher, résulte du calcul d'un indice de criticité. Cet indicateur prend en compte, pour chaque molécule, i) la quantité consommée par an en France, ii) sa solubilité et iii) son activité qui, pour les molécules vétérinaires, est associée à la dose journalière admissible<sup>5</sup>.

$$\text{criticité} = \frac{\text{quantité consommée}}{\text{DJA}} \times \text{solubilité}$$

Sur les 118 molécules vétérinaires retenues au départ pour le calcul de la criticité, **23 molécules médicamenteuses à usage vétérinaire**<sup>6</sup> ont finalement été sélectionnées (Annexe 1), certaines pouvant avoir un usage mixte. La liste compte ainsi 11 antibiotiques, 5 anticoccidiens, 6 antiparasitaires et 1 hormone.

Pour les antibiotiques, le représentant de chaque famille de molécules ayant la plus forte criticité a été retenu. Il a aussi été rajouté une hormone pour illustrer cette classe thérapeutique.

Comme le souligne les auteurs, cette liste doit être actualisée régulièrement pour suivre l'évolution de la consommation des médicaments et de la réglementation. Par exemple aujourd'hui, 3 des 4 anticoccidiens de cette liste (semduramicine, narasin, maduramicine) n'entrent plus dans la composition d'aucun médicament (d'après l'index des médicaments vétérinaires autorisées en France). De même, l'utilisation du monensin a été interdite en 2006 chez les bovins (souvent destiné aux veaux en traitement collectif), pour finalement revenir sur le marché en 2013, uniquement à destination des vaches laitières et en traitement exclusivement individuel.

Dans le cadre du Plan National des micropolluants, un groupe d'experts (CEP : comité experts priorisation) piloté par l'ONEMA et l'INERIS, travaille également sur la remise à jour des listes de substances pour les futurs programmes de surveillance et l'identification des molécules prioritaires à inscrire dans les études prospectives. Les médicaments vétérinaires en font partie.

### 2.3.2 - L'échelle régionale

Les travaux de hiérarchisation réalisés par l'AFFSSA s'appuient sur les données nationales des ventes de médicaments vétérinaires, qui ne reflètent pas nécessairement une réalité régionale des

---

<sup>4</sup> Cette liste a servi de base pour les campagnes d'analyses menées par l'ANSES dans le cadre du PNSE 2 (ANSES, 2011). Pour des contraintes analytiques, seules 45 molécules ont pu être analysées.

<sup>5</sup> Pour les molécules humaines, l'activité est synonyme de la posologie.

<sup>6</sup> La liste « AFSSA » compte au total 76 molécules médicamenteuses.

usages liée à la distribution des productions animales sur le territoire national, comme cela a été évoqué dans les paragraphes précédents.

Les études spécifiques menées sur l'usage des antibiotiques (Cazeau *et al*, 2010, Chauvin *et al.*, 2012...) mettent en avant ces variations régionales mais les classements ne sont toujours communiqués que pour les familles de médicaments les plus utilisés, et ne renseignent donc pas spécifiquement sur les molécules qui constituent ces mêmes familles. Or certaines d'entre elles comptent plus de 6 molécules différentes (Togola et Desforges, 2009). La connaissance du niveau de consommation de chaque molécule est indispensable pour établir une liste de molécules vétérinaires à rechercher prioritairement dans les eaux en contexte d'élevage.

La Bretagne se caractérise par une forte activité d'élevage menée de façon intensive sur l'ensemble de son territoire (§ 2.1). La densité du réseau hydrographique en fait une région particulièrement vulnérable vis-à-vis de la problématique liée aux résidus de médicaments dans les milieux aquatiques. Dans le cadre du second plan régional santé-environnement breton (PRSE, 2011-2015), un travail de hiérarchisation des molécules d'intérêt est actuellement engagé par l'ARS Bretagne. Ce travail porte sur « l'occurrence des résidus médicamenteux, notamment d'origine vétérinaire, dans les eaux destinées à la consommation humaine en Bretagne. Pour les molécules à usage vétérinaire, les données ont été obtenues en croisant les résultats des ventes nationales avec les données du recensement général agricole qui renseigne sur la répartition des productions animales aux niveaux régional, départemental voire cantonal. La méthodologie prend en compte les molécules mères mais également les métabolites.

Cette liste n'est pour l'instant par disponible.

### **2.3.3 - Les listes proposées par les laboratoires d'analyse : contraintes et enjeux**

La difficulté dans l'étude des substances vétérinaires résulte du très grand nombre de molécules utilisées, et de la diversité des usages en fonction des espèces cibles. Cela se traduit par une forte variabilité régionale qui va se répercuter sur une variabilité des molécules à rechercher comme potentiellement présentes dans les milieux aquatiques. Comme le précise Togola et Desforges (2009), deux approches peuvent être considérées pour construire la priorisation des molécules à rechercher : i) soit on définit une liste commune à l'ensemble des élevages du territoire national au risque d'ignorer certaines spécificités, ii) soit on intègre la pression d'élevage sur des territoires plus restreints en ciblant des molécules plus spécifiques et plus représentatives des pratiques locales. Cette approche nécessite du temps en enquêtes, choix des listes, mais représente aussi un coût financier important pour les laboratoires avec la multiplication de développements analytiques adaptés intégrant une multitude de molécules dont les niveaux d'utilisation peuvent fluctuer dans le temps.

Aujourd'hui les laboratoires d'analyse proposent des listes de molécules à rechercher majoritairement à usage à humain, incluant quelques molécules vétérinaires, essentiellement des antibiotiques. Certains menus analytiques sont plus destinés aux molécules vétérinaires mais ne reflètent pas nécessairement les usages plus locaux lorsqu'ils s'appuient sur des données nationales.

Les choix faits par les laboratoires sont également guidés par les objectifs des projets auxquels ils sont liés, mais aussi par des contraintes analytiques. La grande variabilité de familles chimiques nécessite de faire des compromis dans les choix des molécules en méthode multi-résidus. D'autres contraintes sont à prendre en compte (faible niveau de concentration, effet de matrice important, molécules très polaires qui compliquent les phases d'extraction).

Il existe depuis 2013 la norme expérimentale<sup>7</sup> XP T 90-223<sup>8</sup>. Elle définit une méthode générale de dosage de certains médicaments et métabolites contenus dans des échantillons d'eaux destinées à la consommation humaine, aux eaux souterraines et aux eaux de surface en utilisant une technique de chromatographie. en phase liquide couplée à de la spectrométrie de masse en tandem (LC-MSMS). Elle est dite « expérimentale » car elle est mise à l'épreuve par les acteurs socio-économiques qui en évaluent la pertinence et l'applicabilité.

L'étude de la présence de résidus médicamenteux dans les eaux de surface se heurte encore aujourd'hui d'une part au choix des molécules à rechercher en adéquation avec les spécificités des productions animales présentes sur le territoire étudié et d'autre part à l'opportunité de disposer de menus analytiques adaptés, eux-mêmes tributaires de certaines contraintes analytiques.

## 2.4. Les résidus de médicaments vétérinaires : origine et voie de transferts

### 2.4.1. Teneurs en résidus médicamenteux vétérinaires dans les effluents d'élevage et recyclage agricole

#### 2.4.1.1 - Teneurs en résidus vétérinaires dans les effluents d'élevage, influence du stockage

Une grande partie (de 30 à 90%) des molécules pharmaceutiques ingérées par les animaux est excrétée dans les fèces et urines (Sarmah et al., 2006). Les antibiotiques administrés dans les élevages sont généralement excrétés sans métabolisation. Par exemple, 70 à 90% de la tétracycline peut être excrétée sous sa forme initiale dans les urines ou les fèces (Halling-Sorensen, 2000). De plus, les métabolites des antibiotiques peuvent être bioactifs et peuvent redonner la molécule mère même après excrétion. Sarmah et al. (2006) reportent que le métabolite de la sulfaméthazine, (glucuronide du N-4-acetylated sulfaméthazine) retourne sous sa forme initiale dans les lisiers. La sulfaméthazine subit une conjugaison par les sucres présents dans le foie. Après excrétion, les sucres sont rapidement biodégradés et le composé retrouve sa composition initiale.

Le tableau 1 montre les concentrations détectées dans les effluents d'élevage bovin, porcin et volaille sur une soixantaine d'échantillons d'effluents en Chine. L'oxytétracycline et la tétracycline sont les molécules montrant les plus concentrations les plus élevées et sont retrouvées dans 50% des lisiers de porcs, 30% des fumiers de bovins et 40% des fumiers de volaille. Les teneurs en oxytétracycline peuvent atteindre 50 mg.kg<sup>-1</sup> dans les lisiers de porcs, la moyenne étant de 11.8 mg.Kg<sup>-1</sup>.

---

<sup>7</sup> A l'issue d'une période de 3 ans maximum, la commission de normalisation choisira de réviser la norme, de prolonger une fois la période d'expérimentation, de l'homologuer (norme NF) ou de la supprimer.

<sup>8</sup> norme XP T90-223 - Qualité de l'eau - Dosage de certains résidus médicamenteux dans la fraction dissoute des eaux - Méthode par extraction en phase solide et analyse par chromatographie en phase liquide couplée à la spectrométrie de masse en tandem (LC-MS/MS)

**Tableau 4 : gamme des concentrations en antibiotiques dans les effluents d'élevage (Li et al., 2013)**

VA	Occurrence (%)			Range (mg kg <sup>-1</sup> )			Mean (mg kg <sup>-1</sup> )		
	Dairy cow (n=18)	Chicken (n=18)	Pig (n=18)	Dairy cow (n=18)	Chicken (n=18)	Pig (n=18)	Dairy cow (n=18)	Chicken (n=18)	Pig (n=18)
TC	33.3	44.4	50.0	0.43–2.69	0.54–4.57	0.32–	1.08	1.83	5.29
OTC	27.8	38.9	50.0	0.21–10.37	0.96–13.39	0.73–	5.10	6.45	11.81
CTC	55.6	50.0	61.1	0.61–1.94	0.57–3.11	0.68–	1.04	1.29	3.19
SG	22.2	22.2	22.2	0.16–0.30	0.14–0.40	0.15–1.90	0.21	0.23	0.63
SA	5.6	11.1	11.1	0.08–0.08	0.09–1.53	0.10–0.12	0.08	0.81	0.11
SMR	11.1	11.1	11.1	0.10–0.11	0.14–0.89	0.13–0.15	0.11	0.52	0.14
SMZ	27.8	27.8	27.8	0.22–1.02	0.25–7.11	0.21–2.16	0.46	2.23	1.07
SMM	22.2	22.2	27.8	0.14–0.30	0.14–0.96	0.12–4.84	0.22	0.40	1.14
SCP	11.1	11.1	16.7	0.15–0.26	0.27–0.33	0.13–2.13	0.21	0.30	0.85
NOR	22.2	27.8	27.8	0.43–1.76	0.50–9.52	0.41–3.18	0.85	2.72	1.10
CIP	27.8	27.8	27.8	0.28–0.84	0.33–2.94	0.31–0.96	0.53	1.03	0.49
ENR	38.9	38.9	44.4	0.46–4.17	0.33–15.43	0.36–2.22	1.18	3.33	0.87
DIF	5.6	11.1	5.6	0.16–0.16	0.13–1.25	0.14–0.14	0.16	0.69	0.14
TYL	16.7	16.7	22.2	0.22–0.28	0.23–0.34	0.23–1.88	0.25	0.28	0.69

TC tetracycline, OTC oxytetracycline, CTC chlortetracycline, SG sulfaguandinine, SA sulfanilamide, SMZ sulfamethoxazole, SMM sulfamonomethoxine, SMR sulfamerazine, SCP sulfachlorpyridazine, NOR norfloxacin, CIP ciprofloxacin, ENR enrofloxacin, DIF difloxacin, and TYL tylosin

Mais la répartition des molécules entre les différentes phases du lisier de porc peut être différente. Ainsi, Capdeville (2011) a montré que l'oxytétracycline, la tétracycline, la tylosine et la marbofloxacin sont majoritairement présentes dans la phase solide des lisiers de porcs alors que la sulfadiazine, la lincomycine et le monensin sont principalement présents dans la phase liquide.

#### **2.4.1.2 - Persistance des résidus vétérinaires dans les sols après épandage – stockage dans les sols**

Les résidus vétérinaires contiennent de nombreux groupements fonctionnels polaires et ioniques qui permettent de créer des liaisons fortes ou faibles avec les groupements fonctionnels de surface des composés organo-minéraux des sols (matière organique, argiles minéralogiques, oxydes de fer, de manganèse, etc.). La forte affinité de certains composés pour la phase solide du sol peut ainsi limiter leur biodisponibilité pour des processus biotiques ou abiotiques de dégradation. Ainsi, la valorisation agricole des effluents d'élevage sur les sols peut conduire à une accumulation des produits sous la forme de molécule mère ou de métabolite dans les sols. Hamscher et al. (2002) reportent des concentrations en tétracycline de 200µg.kg<sup>-1</sup> dans des sols ayant reçu de 30 à 50 m<sup>3</sup>/ha de lisier de porc à des teneurs de 4 mg.kg<sup>-1</sup> en tétracycline. Après deux années d'épandage, le taux d'accumulation de la tétracycline dans le sol dépasse le taux de biodégradation. Cela suggère donc que l'antibiotique peut persister dans le sol. Rosendahl et al. (2011) étudient la persistance de l'antibiotique, la fluoroquinolone Difloxacin, dans les sols et montrent que le temps de demi vie (temps nécessaire pour dégrader 50% du produit) est supérieur à 217 jours. Par contre ce produit est plus biodégradé dans la rhizosphère du fait de l'activité microbienne plus forte. Gil-Diaz et al. (2011) constatent également l'accumulation de la doramectine (antiparasitaire) dans des sols fertilisés par du lisier de porc et mesurent des concentrations non négligeables sept mois après l'épandage.

La mobilité et la biodisponibilité des antibiotiques est régit par leur fixation dans le sol. La sulfaméthazine, antibiotique à usage vétérinaire, est apportée sur les sols par les épandages

d'effluents d'élevage. Dans une expérience en conditions contrôlée au laboratoire, le temps de demi-vie de la sulfaméthazine estimée par une extraction au  $\text{CaCl}_2$  (0,01M) est de 6 à 32 jours (Forster et al. 2009). La concentration de cet antibiotique dans une fraction résiduelle augmente de manière concomitante et représente un pool de résidus d'antibiotique (molécule mère et métabolite) séquestré dans le sol et présentant des temps de demi vie excédant plusieurs mois. Le devenir à long terme et les effets de la sulfaméthazine sont contrôlés par des processus de séquestration. Cependant, ce processus de séquestration semble partiellement réversible et la sulfaméthazine pourrait ainsi redevenir biodisponible après de longues périodes (Zarfl et al. 2009).

### 2.4.3. Les mécanismes de transfert de surface

De nombreuses études en colonne, en lysimètres ou à l'échelle du paysage montrent le transfert des résidus vétérinaires vers les eaux de surface par lixiviation ou ruissellement de surface (Aga et al. 2003, Kay et al. 2004, Burkhardt et al. 2005, Blackwell et al., 2007). Dans des bassins versants agricoles de 30 à 50 km<sup>2</sup>, les concentrations en résidus vétérinaires sont de l'ordre de la dizaine à la centaine de nanogrammes par litre. Certaines études montrent des concentrations plus importantes (en  $\mu\text{g.L}^{-1}$ ) dans des bassins versants de tailles supérieures et possédant des stations d'épuration (Gonzales et al., 2012).

Les concentrations les plus élevées sont mesurées lors des épisodes de crues sur les bassins versants et sont plus importantes lors de l'augmentation du débit (Pailler et al., 2009). Meyer et al (2011) recensent les concentrations maximales sur 14 épisodes de crues sur un bassin versant agricole de 30 km<sup>2</sup> et montrent que les transferts se font principalement par du ruissellement de surface et de l'érosion.

## 2.5. Les objectifs du projet REMEDES

La forte présence des productions animales (cf. § 2.1) conduites de manière intensive positionne la Bretagne comme un territoire prépondérant pour l'étude de l'occurrence des résidus médicaments d'origine vétérinaire dans les cours d'eau. Les enjeux y sont d'autant plus importants que le réseau hydrographique est dense et que 80% de l'eau utilisée pour l'alimentation en eau potable de la population provient de prises d'eaux superficielles.

Les données disponibles sur l'usage des antibiotiques en médecine vétérinaire au niveau national, ont montré la grande variabilité des molécules utilisées en fonction des différents types d'élevage et de leurs caractéristiques intrinsèques.

L'objectif de notre travail est d'étudier l'occurrence des résidus de médicaments vétérinaire dans les eaux de surface. Cette étude est originale pour trois points, i) elle s'intéresse spécifiquement aux molécules vétérinaires dans des contextes agricoles en zone d'élevage, ii) la quantification systématique de la co présence d'indicateur de contamination fécale (e coli et entérocoque) ainsi que de la source de la contamination fécale par des marqueurs spécifiques (humain, porc, bovin), iii) l'analyse de la variabilité saisonnière en période de crue (préleveurs automatiques) ou en échantillonnage ponctuel en relation avec la spatialisation des épandages d'effluents agricole sur le bassin versant.

Elle vise, in fine, à proposer une démarche aux gestionnaires de la qualité de l'eau pour

i) identifier les molécules à rechercher dans des études de diagnostic de pollution par les résidus vétérinaires dans des bassins versants agricole

ii) réaliser le protocole d'échantillonnage sur un BV pour appréhender la variabilité spatiale et temporelle de l'occurrence des RM dans les eaux.

Aussi, en complément de ce rapport, un guide méthodologique (Soulie et al, 2015) est également disponible.

### III - PRESENTATION DES SITES D'ETUDES

Les têtes de bassin versant constituent des zones privilégiées pour la compréhension des processus de transferts de la parcelle au cours d'eau et leur rôle hydrologique est prépondérant dans la détermination quantitative et qualitative de la ressource en eau. La qualité du cours d'eau est alors fortement dépendante de son environnement et notamment de ce qui est apporté sur les sols. Les petits cours d'eau et zone humides associées y sont alimentés par les précipitations, les nappes et les écoulements de surface ou de sub-surface.

Répondant à ces conditions, deux bassins versants bretons ont été retenus (Figure 5) :

- i) **le bassin versant de Kervidy-Naizin** (Morbihan) bassin versant de 4,9 km<sup>2</sup> labellisé Observatoire de Recherche en Environnement (ORE Agrhys) équipé à son exutoire de préleveurs et de station de jaugeage automatisés,
- ii) **le bassin versant de Médréac** (Ille et Vilaine) , 27 km<sup>2</sup>, situé en amont d'une prise d'eau utilisée pour l'alimentation en eau potable de la Ville de Rennes (retenue de Rophémel sur la Rance).

Ils sont marqués par une agriculture largement dominée par les élevages bovins et porcins, le bassin versant de Médréac est plus grand et possède une station d'épuration.

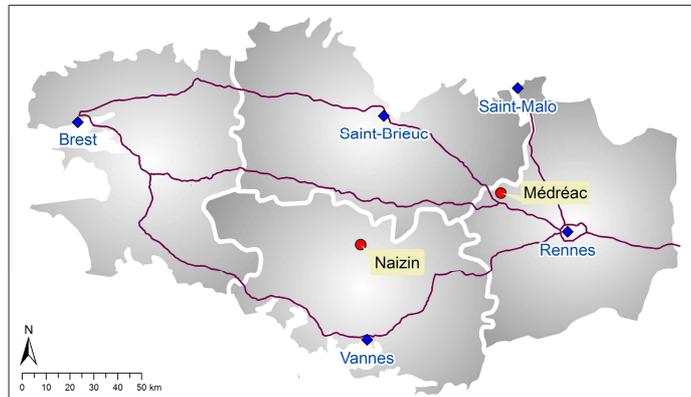


Figure 5 : Localisation des bassins versants étudiés au sein de la région Bretagne

Des prélèvements ont été réalisés sur le Bassin du Néal, station hydrographique et de suivi de la qualité du Réseau National de Bassin (04164950) d'une surface de 95 km<sup>2</sup>, pour pouvoir mettre en perspective les résultats obtenus avec ceux des réseaux de surveillance nationaux de la qualité de l'eau.

#### 3.1 – Description générale du bassin versant de Kervidy-Naizin

##### 3.1.1 - Un bassin versant intégré dans le réseau ORE AgrHys

Le site de Kervidy-Naizin est l'un des deux bassins versants du réseau ORE AgrHys (Observatoire de recherche en environnement AGrHys). Cet observatoire est l'un des quatre observatoires agro-hydrologiques d'un réseau français comptant une vingtaine d'observatoires : le Réseau de Bassins Versants (SOERE RBV). Les Systèmes d'Observation et d'Expérimentation au long terme pour la Recherche en Environnement (SOERE) mettent en réseaux des observatoires de l'environnement déployés sur des sites différents. AllEnvi est en charge de leur évaluation, leur structuration, leur labellisation et leur suivi.

### 3.1.2 – Situation, climat et fonctionnement hydrologique

Le bassin versant de Naizin-Kervidy est situé à Naizin (Morbihan), un petit village rural de 1000 habitants situé dans le centre de la Bretagne, (latitude: 48 °; longitude: 357 ° 10 '), à environ 20 km au sud-est de Pontivy (Figure 5). D'une superficie de 4,9 km<sup>2</sup>, il occupe la partie amont du bassin versant du Coët-Dan. Ce ruisseau est un affluent de la rivière l'Evel, elle-même affluent du Blavet. Ce fleuve côtier comporte plusieurs prises d'eau pour l'alimentation en eau potable, dont deux à l'aval de la confluence avec l'Evel.

Le site est soumis à un climat océanique, classé comme humide et tempéré avec des précipitations annuelles moyennes de 830 mm entre 1994 et 2013 (Figure 6) et la température moyenne mensuelle varie de 6,7° C (écart de 2 à 10°C) en hiver à 17° C (écart de 13 à 22°C). La température moyenne annuelle est de 11°C sur la période 1994-2013. La pluviométrie lors du suivi 2013-2014 est très important (1289 mm)

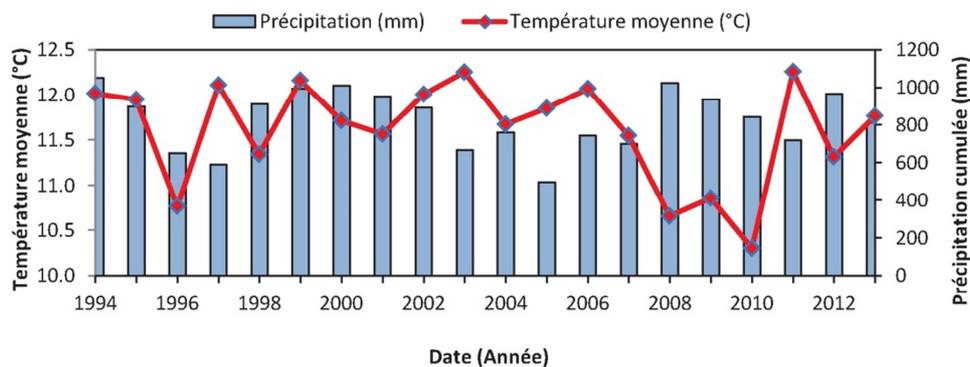


Figure 6 : Température moyenne et pluviométrie annuelle sur le bassin versant de Kervidy-Naizin sur la période 1994-2013 (dans Tete, 2014)

L'évapotranspiration moyenne annuelle est de l'ordre de 700 mm/an avec un maximum au mois de juillet et un minimum en décembre-janvier.

Le substratum du bassin versant Kervidy-Naizin est composé des schistes du Protérozoïque supérieur fissurés et fracturés. Les schistes altérés constituent un horizon d'altérites meubles dont la profondeur varie fortement, de quelques mètres à 30 mètres. L'ordre de grandeur de la conductivité hydraulique de cette altérite est de  $8 \cdot 10^{-6}$  à  $5 \cdot 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$  (Molenat et Gascuel-Odoux, 2002). Une nappe superficielle se développe dans ces schistes altérés. L'amplitude de battement de la nappe est forte en haut de versant (6 mètres environ, et la nappe reste toujours quelques mètres en dessous de la surface du sol) et plus faible en bas de versant (environ 3 mètres). L'étendue du domaine saturé de bas de versant varie entre 5 et 20% de la surface du bassin en fonction des conditions hydrodynamiques.

Le ruisseau du Coët-Dan s'écoule sur des alluvions modernes. La largeur du ruisseau à l'exutoire de Kervidy atteint 2 mètres et elle est protégée par une ripisylve sur une grande partie de sa surface (Figure 7).



Figure 7 : Ripisylve à Kervidy (photo de gauche) et vue générale d'un versant (photo de droite)

### 3.1.3 – Un site instrumenté pour un suivi long terme

Depuis 1993, d'une station de jaugeage des débits du cours d'eau équipée donc l'exutoire de du bassin versant de Kervidy-Naizin (Figure 8). Elle est également équipée d'un enregistreur automatique en continue (pas de temps de la mn). Le Bassin versant de Kervidy-Naizin a été étudié pour l'hydrologie de surface et chimie des eaux souterraines depuis cette date. En complément, une station météorologique (intégrée dans le réseau météo France) a été installée en 1996, à 1 km en limite au sud-est du bassin (précipitations, température de l'air et du sol, vitesse et direction du vent, le rayonnement solaire à la fréquence horaire ou journalier).



Figure 8 : Station de jaugeage des débits à la sortie du bassin versant de Naizin-Kervidy (à gauche); Versant de Kerolland avec zone saturée au premier plan (au centre), (c) Versant de Guériniec avec piézomètre

L'ensemble des dispositifs implantés sur le bassin versant est détaillé dans le Tableau 5.

Tableau 5 : Description de l'instrumentation et des caractéristiques des suivis hydrologique et hydrochimique

Point de mesure	Suivi hydrologique			Suivi hydrochimique	
	Type de mesure	méthode	fréquence	Analyse	fréquence
1 station limnimétrique	Hauteur (débit)	Capteur automatique (flotteur)	/ 1 mn	Anions majeurs + COD P dissout et total	1/j + crue
15 piézomètres	Profondeur de nappe	9 capteurs automatiques + mesures ponctuelles	/ 15 mn 1/mois	Anions majeurs et COD	1/ trimestre
1 station turbidimétrique				Turbidité (MES)	/ 10 min / crue
1 station météo	Température air et sol rayonnement net, vitesse et direction du vent, pluie et hygrométrie	Capteurs automatiques	1/ heure à 1/jour		

Le débit spécifique annuel du ruisseau a varié de 176 à 882 mm depuis 1993. Les variations de débit des cours d'eau le long de l'année sont marquées par un schéma classique d'un régime océanique, avec des pics de débit en hiver, parfois supérieure à  $1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ , et les étiages estivaux. Le flux à l'exutoire peut se tarir à la fin de l'été et à l'automne.

### 3.1.4 - Définition de deux sous bassins versants

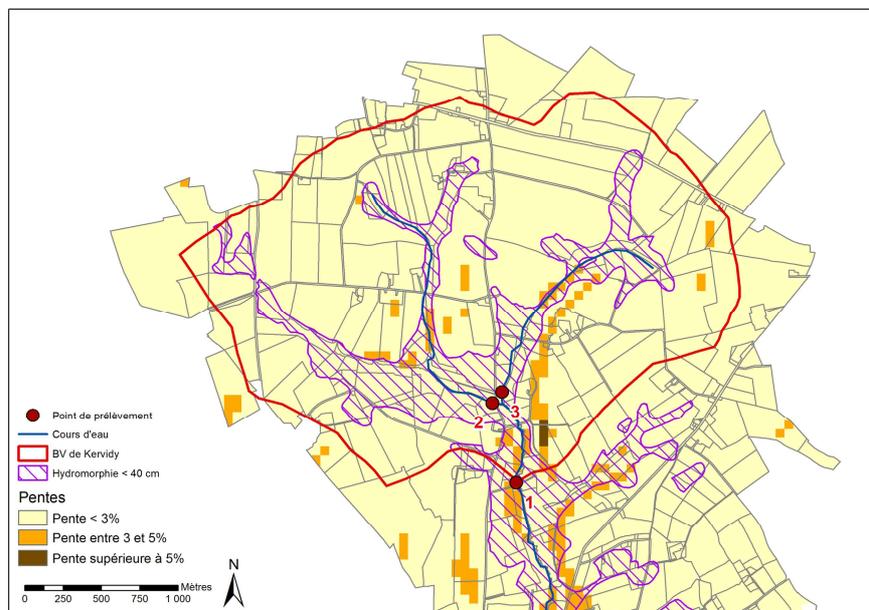
Deux points de prélèvements ponctuels ont complété le suivi à l'exutoire. Ainsi deux sous bassins versants Le mercy (point 2) et Guériniac (point 3) sur la Figure 10 sont échantillonnés pour mieux appréhender le lien entre pratique agricole et contamination des eaux.

### 3.1.5 - Connaissance des surfaces contributives aux transferts de surface.

La détermination des surfaces contributives aux transferts de surface telle que définie par Gascuel-Oudoux *et al.* (2009) s'appuie sur deux critères :

- i) les parcelles dont la pente est supérieure à 3% et qui sont connectées à la rivière seront des zones contributives au ruissellement,
- ii) l'enveloppe des sols présentant des traits d'hydromorphie apparaissant dans les quarante premiers centimètres représente la surface contributive aux écoulements de subsurface. Les écoulements latéraux ont alors lieu par refus d'infiltration de l'eau sur des sols déjà saturés.

Les pentes sont majoritairement inférieures à 3%, seule une zone située sur la rive est du ruisseau provenant de Guériniéc constitue une surface contributive au ruissellement de surface (Figure 9). La connaissance de la couverture pédologique sur le bassin versant (Walter *et al.*, 1998) permet de définir l'enveloppe des sols hydromorphes (hydromorphie <40 cm) telle que figurant sur la carte suivante (Figure 9). Les écoulements de subsurface ont généralement lieu de novembre à avril. Malgré le remembrement des années 1970, le bassin versant a préservé un certain linéaire de haies en bas de versants mais la densité linéaire reste faible (de l'ordre de 40 ml ha<sup>-1</sup>)<sup>9</sup>.



**Figure 9 : Carte des pentes sur le bassin versant et localisation des sols hydromorphes**

### 3.1.6 - Les exploitations agricoles et la gestion des effluents d'élevages

En 2013, le bassin versant de Kervidy-Naizin compte une vingtaine d'exploitants agricoles.

La typologie des exploitations montre trois systèmes différents

- un système mono-élevage majoritaire avec des élevages bovins (à dominante lait) ou porcins (naisseur et/ou engraisseur) ;
- un système d'élevage mixte où l'élevage laitier est associé à un atelier porc ou volaille (quelques exploitations)
- un système sans élevage (2 exploitations).

La localisation des bâtiments d'élevage et le type de production associé figure sur la carte ci-dessous (Figure 10).

<sup>9</sup> La densité bocagère moyenne du Morbihan en 2008 est de 52 ml ha<sup>-1</sup> de la surface totale ou 96 ml ha<sup>-1</sup> de SAU (source Agreste Bretagne, juin 2010 n°4)

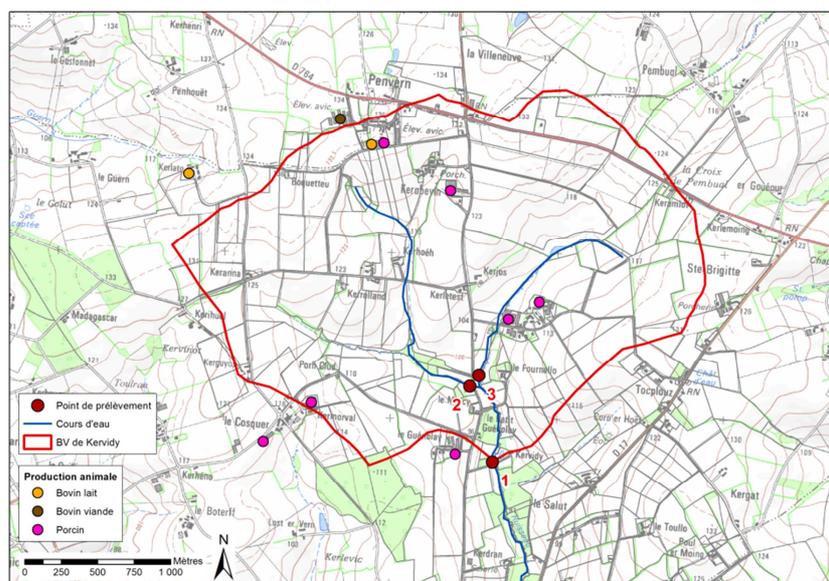


Figure 10 : Localisation des bâtiments d'élevage et typologie

### 3.1.7 – Les pratiques agricoles relatives aux épandages et pâturages.

La connaissance des pratiques agricoles sur le bassin versant (Akkal-Corfini, 2010) a été actualisée en 2013 (projet MOZAIC - ANR-12-AGRO-0005). Les données disponibles renseignent notamment sur les parcelles recevant des effluents d'élevage en précisant la période et la nature des épandages (bovin ou porcin). Les parcelles pâturées et les périodes de début et fin de pâturage sont également disponibles.

Pour des raisons de confidentialité, aucune carte localisant ces pratiques sur des parcelles ne peuvent être rendues publiques.

Aucune enquête supplémentaire sur l'utilisation des médicaments vétérinaires n'a pu être réalisée auprès des agriculteurs dans le cadre du présent projet. Le contexte difficile que connaît la profession agricole actuellement et les réticences par rapport à un nouveau sujet sensible comme celui des résidus de médicaments compliquent l'obtention d'informations sur les pratiques des agriculteurs. Quelques informations ont cependant pu être obtenues ponctuellement soit par des observations de terrains, soit par le biais d'autres programmes en cours sur le bassin versant.

#### *Les périodes d'épandages*

Les épandages sont réglementés par le calendrier d'interdiction d'épandage défini par le 5<sup>ème</sup> programme d'action de la Directives Nitrates applicable à compter du 15 mars 2014.

Les données recueillies auprès des agriculteurs en 2013 montre que les épandages de lisier de porc sont majoritaires sur le BV et qu'ils commencent fin janvier/ début février sur l'extrémité nord-est du BV (BV point 3) ou extrémité sud-ouest (BV point 2). Mais une grande partie est épandue mi mars sur l'ensemble du BV sur maïs voire prairies, puis en avril et ponctuellement jusqu'à fin mai. Le lisier de bovin est épandu mi avril-début mai.

Les parcelles concernées par l'épandage de fumier de bovin sont moins nombreuses sur le BV. La période est essentiellement mi-mars.

L'utilisation des effluents d'origine bovine a lieu principalement sur le secteur ouest (BV du Mercy, point 2).

Les données ponctuelles recueillies en 2014 sont résumées dans le tableau suivant (Tableau 6).

**Tableau 6 : Indications concernant des dates d'épandages connues en 2014**

Nature de l'effluent	BV concerné	Dates d'épandage (2014)
Lisier de porc	Gueriniec (point 3)	15/03 31/03 9/04 sept.
	Mercy (point 2)	4/03 2/05 14/06 26/09
Fumier et lisier de bovin	Mercy	22/04 24/04
	Kervidy	2/10

### *Le pâturage*

Le pâturage est localisé principalement dans le quart nord-ouest du bassin versant, sur le sous-BV du Mercy (point 2). il peut s'étendre de janvier à décembre. Certaines parcelles ne seront concernées qu'à partir du mois d'avril. Quelques parcelles situées à proximité des points de prélèvement 2 et 3 sont pâturées à partir de juillet/août et ce jusqu'en fin d'année (novembre à décembre).

Le bassin versant compte plusieurs hameaux constituant un habitat diffus autour des sièges d'exploitations. L'assainissement y est de type non collectif.

### *Un bassin versant impacté par les pollutions agricole diffuses.*

Ce bassin versant est sous agriculture intensive. Cela se traduit par une concentration importante de nitrates dans la nappe superficielle est importante, plus de 80 mg.L<sup>-1</sup>. La concentration dans la rivière est par conséquent également très élevée entre 50 et 80 mg.L<sup>-1</sup>.

En résumé :

Le bassin versant de Kervidy-Naizin inclus dans l'ORE Agrhys est :

- un bassin versant de 4.9 km<sup>2</sup> instrumenté depuis 1993 pour le suivi de la qualité des eaux et de l'hydrologie ;
- instrumenté pour échantillonner les crues (préleveur automatique asservi au débit)
- un bassin versant sous agriculture intensive avec des élevages porcins, bovins lait et avicoles mais où seuls les effluents des élevages bovins et porcins sont épandus sur les parcelles du bassin versant ;
- un site disposant d'une très bonne connaissance des sols, des processus de transfert et des pratiques agricoles.

un territoire apparaissant donc comme un site particulièrement intéressant pour étudier la contamination des eaux de surface. par les résidus pharmaceutiques à usage vétérinaire et identifier des modes de transferts à l'échelle du BV.

## 3.2 – Description générale du bassin versant de « Medreac »

### 3.2.1 – Situation et milieu physique

Le bassin versant de Médréac se situe à une trentaine de kilomètres au nord-est de Rennes, le long de l'axe Rennes/Saint-Brieuc. Il appartient au bassin versant de la Haute Rance (374 km<sup>2</sup>) dont l'exutoire est la retenue de Rophémel, lieu d'une prise d'eau utilisée pour l'alimentation en eau potable du bassin rennais. Le bassin versant étudié couvre en partie le territoire de deux communes, Medréac et St M'Hervon et s'étend sur une surface totale de 27 km<sup>2</sup>. L'exutoire se situe juste avant la confluence avec le Néal, juste en amont de la station hydrométrique J0626610 (le Néal à Médréac)<sup>10</sup>, située au droit du pont le long de la RD 220 (au nord-est du bourg de Médréac).

Le secteur est soumis à un climat océanique se caractérisant par des hivers doux et pluvieux, et des étés frais et relativement humides. La pluviométrie moyenne décennale est de l'ordre de 680 mm par an (moyenne 1992-2001).

Les données pédologiques disponibles (d'après le référentiel régional pédologique de Bretagne) indiquent que les sols se sont développés majoritairement sur des plaquages de limons éoliens qui couvrent les deux-tiers de la surface du bassin versant (Figure 11). Les sols sont profonds (de 80 à 1 m d'épaisseur) et présentent un lessivage d'argile qui induit des conditions de drainage faibles. Le tiers nord-est repose sur des formations plus anciennes de schistes briovériens ou de grès dans l'extrême nord. Les sols développés à partir de ces substrats sont également profonds et appartiennent à la famille des sols brunifiés qui se caractérisent par de bonnes conditions de drainage.

Le relief est assez marqué. Si les franges du bassin versant sont représentées par des zones de plateau, les parcelles les plus proches des cours d'eau montrent des pentes plus élevées, dépassant les 5%. Les altitudes varient de 135 m à l'extrémité nord-est à 55 m à l'exutoire.

Le bassin versant se découpe en deux sous-bassins versants principaux :

- un sous-bassin versant situé dans la partie nord, d'une superficie de 8 km<sup>2</sup> qui draine les eaux du bourg de Médréac ;
- un sous-bassin occupant les deux tiers-sud, d'une superficie de 19 km<sup>2</sup> qui draine le bourg de St- M'Hervon et traverse ensuite un large territoire agricole situé sur la commune de Médréac.

---

<sup>10</sup> Elle correspond également à la station de mesure des eaux de surface – code Sandre : 04164950

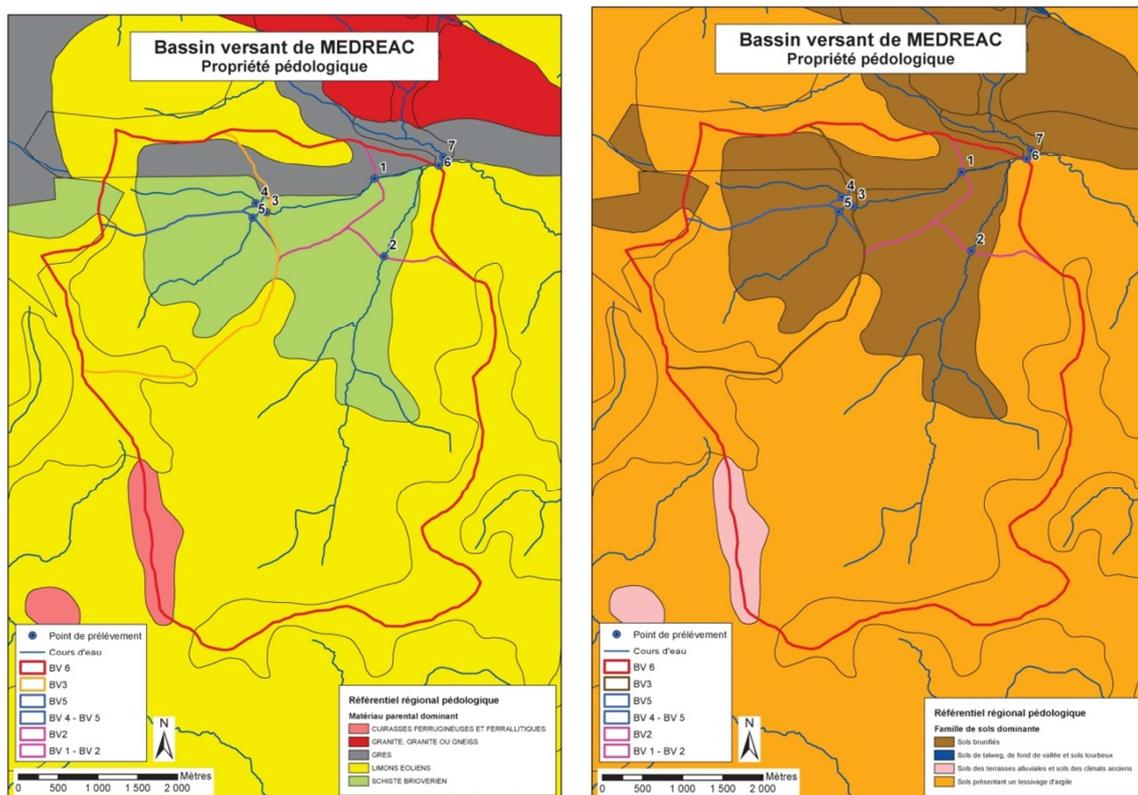


Figure 11 : Nature du substrat géologique et familles de sols dominantes rencontrés sur le bassin versant de Médréac (d'après le référentiel régional pédologique)

### 3.2.2 – Les activités présentes sur le bassin versant de Médréac

Ce bassin versant a été retenu car il réunit à la fois une activité agricole de type polyculture/élevage et une présence humaine forte représentée notamment par le bourg de Médréac au nord et celui de St M'Hervon au sud.

#### 3.2.2.1 - L'activité agricole

En 2010, la commune de Médréac compte sur l'ensemble de son territoire 27 exploitations ayant des bovins (dont 80% bovins lait), 11 exploitations ayant des porcins et 4 exploitations ayant des volailles (données Agreste – RGA 2010). La commune de St M'Hervon ne compte que 4 exploitation bovins (dominante lait). La répartition des bâtiments d'élevage sur le bassin versant est présentée sur la carte ci-après (Figure 12).

Sur l'ensemble du bassin versant, le maïs occupe 35% de la SAU (surface agricole utile) occupée contre 30% pour les prairies (permanentes et temporaires), 24% pour le blé et 3% pour les protéolégumineux. Les 8% restant correspondent à des parcelles en gel, vergers ou occupation diverses (d'après les données RPG, 2012).

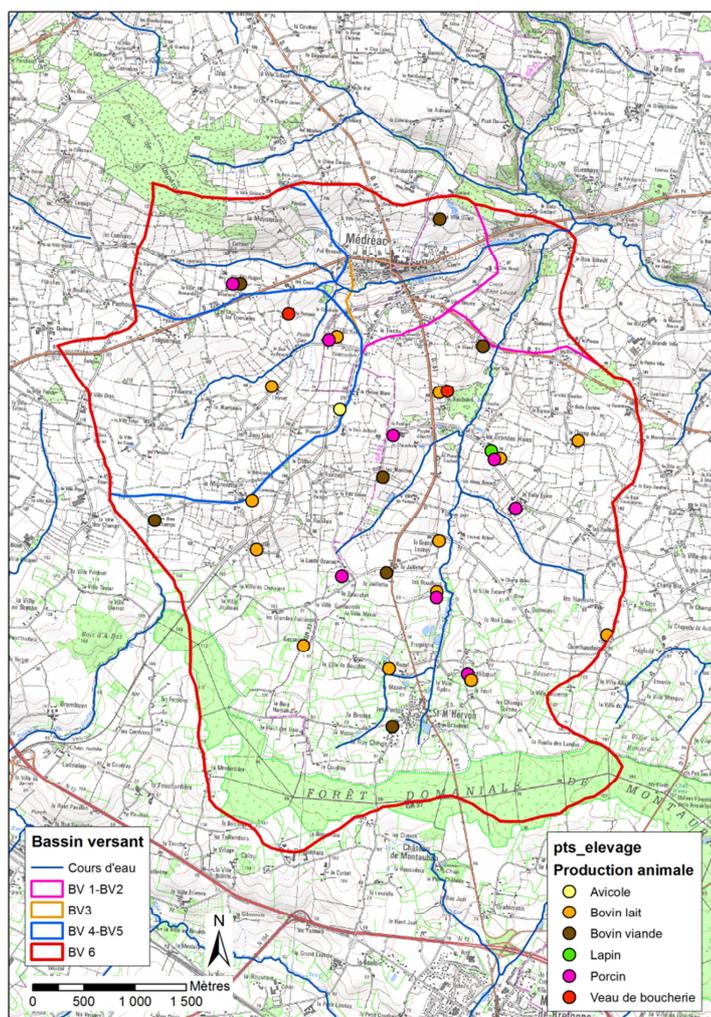


Figure 12 : Localisation des bâtiments et typologie des élevages

### 3.2.2.2 - Une présence humaine marquée au nord du BV par la station d'épuration

La commune de Médréac compte un peu plus de 1800 habitants Médréac. Le bourg est équipé d'une station d'épuration qui collecte les effluents du bourg. Elle est de type lagunage aéré et dimensionnée pour une capacité de 1000 EH (équivalents-habitants). Le nombre de branchements est de 385 correspond à une population effectivement raccordée (compte rendu de visite 2014) de 966 habitant. Il n'existe aucun raccordement industriel. Le point de rejet se fait dans le ruisseau de Médréac à l'aval immédiat du bourg. Le débit maximal de rejet autorisé est de 150 m<sup>3</sup>/j. Les données d'autosurveillance de 2013 indique de le débit autorisé est régulièrement dépassé notamment en période pluvieuse et en période de hautes eaux (jusqu'à 280 m<sup>3</sup>/j). Le dernier curage des boues de la station a eu lieu en 2005. Un bilan de contrôle de fonctionnement et d'entretien des systèmes d'assainissement non collectif autour de Médréac réalisé en 2010, montre que 76 % des installations ont un fonctionnement non acceptable ou insuffisant selon les normes mis en place actuellement.

Le bourg de St M'Hervon est entièrement en assainissement non collectif et a été réhabilité et remis aux normes en 2005.

En résumé, le bassin versant de Médréac est :

- un bassin versant de 27 km<sup>2</sup> situé à l'amont d'une prise d'eau utilisée pour l'alimentation en eau potable ;
- un bassin versant qui cumule une activité agricole dominée par les élevages bovins lait et porcins, et une présence humaine avec la station d'épuration du bourg de Médréac et les dispositifs d'assainissement non collectif associés à l'habitat épars et le bourg de St M'Hervon ;
- un site pertinent pour étudier l'origine des résidus de médicaments à usage mixte (humaine et vétérinaire) en lien avec des sources de contaminations multiples et appréhender les variabilités spatiale et temporelle en contexte agricole et humain.

## IV - METHODOLOGIE

### 4.1 - Enquêtes sur l'utilisation des médicaments vétérinaires pour les filières bovine et porcine et avicole

#### 4.1.1 - Echantillonnage des vétérinaires et leur représentativité

Les premières enquêtes ont été menées en 2013 auprès de trois vétérinaires spécialisés, un pour le bassin versant de Naizin (Jaffrezic *et al*, 2013) et deux autres pour le bassin versant de Médréac (Carrera, 2013). Les types d'élevage concernés sont les élevages bovin, porcine et avicole. Une liste d'une vingtaine de molécules a été établie.

Cet échantillon de vétérinaires a été élargi afin d'affiner cette liste en ciblant mieux les molécules à rechercher dans les eaux notamment en approfondissant plusieurs points : i) appréhender la variabilité des prescriptions des vétérinaires en tenant compte des spécificités liées à chaque production animale, ii) évaluer la pertinence d'une telle liste à l'échelle d'un territoire élargie. La question sous-jacente est alors : peut-on proposer un référentiel de molécules à rechercher dans les eaux superficielles en contexte agricole breton ?

Dix vétérinaires ont été rencontrés lors de cette deuxième série d'enquêtes. Le tableau ci-après (Tableau 7) résume les principales caractéristiques de cet échantillon.

Tableau 7: Composition de l'échantillon de vétérinaires enquêtés

Spécialité d'élevage	Nombre de vétérinaires enquêtés	Nombre et type de structure correspondante
Bovin	5	<ul style="list-style-type: none"><li>• 5 cliniques libérales spécialisées « médecine rurale<sup>11</sup> »</li></ul>
Porcin	5	<ul style="list-style-type: none"><li>• 2 cliniques libérales spécialisées « médecines rurale et industrielle »</li><li>• 3 SELAS adossées à des groupements de producteurs</li></ul>
avicole	1	<ul style="list-style-type: none"><li>• 1 clinique libérale spécialisée « médecines rurale et industrielle »</li></ul>

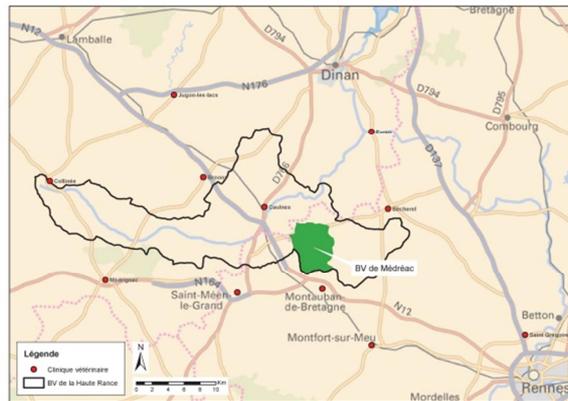
L'accent a surtout été mis sur les deux productions majoritaires présentes sur les deux bassins versants étudiés, à savoir les élevages bovins lait et les élevages porcins, ces derniers pouvant être des ateliers hors sol, complémentaires d'élevages laitiers. La prise en compte de la production avicole, minoritaire sur les bassins versants suivis, n'a pas été approfondie. Seul un vétérinaire spécialisé volaille et exerçant sur le bassin versant de Médréac a été enquêté afin d'apporter une information minimum sur cette production hors sol.

Afin de donner un sens opérationnel à ces enquêtes, l'échantillon de vétérinaires enquêtés a été construit en s'appuyant sur un territoire défini, le bassin versant de la Haute Rance qui possède un

---

<sup>11</sup> le terme médecine rurale concerne les productions animales bovins, ovins et caprins (ruminants). On parlera alors de vétérinaire « rural ». Pour les filières industrielles intégrant les élevages hors sol (porcs et volailles), on parle de vétérinaires « indus ».

captage d'alimentation en eau potable qui représente 33% de la production d'eau qui est distribuée sur le bassin rennais. Comme l'indique la carte suivante (Figure 13), une dizaine de cliniques exerçant en médecine rurale (essentiellement bovins lait) se situe dans ou aux abords immédiats de ce territoire. L'objectif n'étant pas que l'échantillon soit exhaustif, 4 cliniques ont finalement été retenues parmi celles-ci pour réaliser les enquêtes. Une cinquième a été choisie dans un rayon d'une trentaine de kilomètres au-delà de la limite du bassin versant. Seule une clinique n'a pas souhaité répondre à notre questionnaire, compte tenu de leur indisponibilité sur la période des entretiens.



**Figure 13 : Localisation des cliniques vétérinaires exerçant en médecine rurale aux abords du BV de la Haute Rance**

Les vétérinaires spécialisés bovins exercent en libéral, majoritairement au sein de cliniques<sup>12</sup> ou bien en individuel. Mais pour les élevages hors sol, porcs et volaille, la structuration de la médecine vétérinaire est différente. Les données de 2011 (volume sortie fabricants - source AIEMV dans Durand, 2014) indiquent en effet que 70% des médicaments administrés dans la filière porcine le sont par les groupements de producteurs agréés et leur SELAS par rapport aux vétérinaires libéraux, ce chiffre passant à 50% pour la filière avicole.

#### 4.1.2 – Enquêtes sur les pratiques des vétérinaires

##### 4.1.2.1 – Questionnaire et déroulement de l'enquête

L'élaboration de la liste s'est déroulée en deux temps :

- construction de la liste initiale à partir des listes existantes (AFFSA, 2008) ou en cours d'élaboration (ARS Bretagne), des études de synthèse (Togola et al, 2009), des résultats des enquêtes réalisées au début du projet (Carrera, 2013) et en intégrant les molécules critiques ou récurrentes dans la littérature ;
- enrichissement de cette liste au fur et à mesure des entretiens.

Cette deuxième étape a nécessité de reprendre contact avec les vétérinaires préalablement rencontrés pour compléter les réponses sur les molécules non renseignées.

Le questionnaire d'enquête est disponible en annexe (Annexe 2).

<sup>12</sup> structure d'exercice en commun

Il porte sur une liste de 80 molécules médicamenteuses à renseigner. On distingue 5 classes thérapeutiques différentes qui se répartissent de la façon suivante : 44 antibiotiques, 14 antiparasitaires, 4 anticoccidiens, 7 anti-inflammatoires non stéroïdiens et 11 hormones.

La liste de molécules à renseigner est au final la même pour les différentes productions animales. Même si certaines molécules n'ont pas d'AMM (autorisation de mise sur le marché) pour une des spécialités, il est apparu important de questionner les vétérinaires pour chaque molécule afin de prendre en compte le principe de la cascade dans l'usage des médicaments vétérinaires (définie selon art. L. 5143-4 du Code de la Santé Publique)<sup>13</sup>.

Le questionnaire est de type « qualitatif ordonné » avec une réponse possible pour chaque molécule : « 0 » = jamais prescrite, « + » = peu prescrite, « ++ » = moyennement prescrite et « +++ » = fortement prescrite.

L'entretien, réalisé en face à face avec le vétérinaire, dure entre 1h et 1h30.

La seconde partie du questionnaire, dans sa conduite plus libre, vise à acquérir des données plus qualitatives sur les pratiques des vétérinaires et leur représentativité afin de mettre en regard les résultats obtenus avec des éléments contextuels. Les points abordés pouvaient être les suivants : les interventions du vétérinaire sur les élevages, autonomie des éleveurs, les traitements et maladies récurrents, saisonnalité, évolution des pratiques

#### 4.1.2.2 - Traitement des enquêtes

Deux indicateurs sont calculés pour analyser les enquêtes: la moyenne et l'amplitude des réponses.

- La moyenne est calculée en attribuant une « note » à chaque réponse, jamais prescrit = 0, un peu prescrit = 1, moyennement prescrit = 2 et beaucoup prescrit = 3. Les valeurs de la moyenne sont donc comprises entre 0 et 3. Le calcul de cette moyenne permet de « hiérarchiser » les molécules entre-elles en fonction de leur niveau de prescription global.
- L'amplitude représente l'écart maximal de notation et permet donc de mesurer la variabilité des réponses entre les vétérinaires. L'amplitude s'étend de 0 à 3, sachant qu'il y a 4 niveaux de réponses possibles, de « jamais prescrit » à « beaucoup prescrit ».

Au final, l'indicateur du niveau de prescription global correspond à la moyenne classée selon trois intervalles :

- de 0,1 à 1 = « + » ;
- de 1,1 à 2 = « ++ » ;
- de 2,1 à 3 = « +++ ».

Les résultats sont analysés en distinguant chaque type de production et chaque classe thérapeutique de manière à pouvoir les comparer plus aisément aux données disponibles dans la littérature et ce, afin d'évaluer la pertinence des résultats obtenus.

---

<sup>13</sup> Dans le cas où il n'existe pas d'AMM pour un médicament pour une espèce animale donnée, le vétérinaire peut utiliser un médicament ayant une AMM pour une autre espèce, pour une même indication thérapeutique ou non, y compris pour un médicament ayant une AMM humaine.

## 4.2 – Stratégie d'échantillonnage

### 4.2.1 – Les points de prélèvements et fréquence d'échantillonnage sur Kervidy Naizin

Le tableau suivant (Tableau 8) résume les différents points et conditions de prélèvements. La localisation des points est présentée sur la Figure 10.

**Tableau 8 : Caractéristiques des prélèvements et fréquence d'échantillonnage sur le BV de Kervidy-Naizin**

type de prélèvement	points de prélèvement	date de prélèvement (nombre d'échantillon analysés mentionnés entre parenthèse)	débit (L/s)
Préleveur automatique (échnatillonnage des crues)	point 1 Kervidy Exu	09/04/2103 (4)	301
		10/04/2103 (4)	575
		18/12/2013 (4)	331
		07/01/2014 (4)	501
		03/04/2014 (3)	304
		23/04/2014 (4)	73
		23/11/2014 (3)	272
Prélèvement ponctuel et manuel	point 1 Kervidy Exu point 2 Mercy point 3 Gueriniéc	14/03/2013	156
		09/04/2103	272
		27/05/2013	16
		06/11/2013	5
		10/12/2013	13
		07/01/2014	337
		04/11/2014	36
		25/11/2014	129
		16/12/2014	134

### 4.2.2 – Positionnement des prélèvements par rapport aux périodes d'épandages

Les figures suivantes (Figure 14 a, b et c) représentent le débit à l'exutoire de janvier à aout 2013 (a), de octobre 2013 à juillet 2014 (b), de octobre à fin décembre 2014 du bassin versant de Kervidy-Naizin. Les flèches rouges représentent les prélèvements effectués ponctuellement et les flèches vertes les prélèvements effectuées en période de crue par préleveur automatique. Les trois périodes hydrologiques ont été distinguées pour plus de lisibilité des graphiques. L'année hydrologique 2013-2014 se distingue par des conditions très pluvieuses 1289 mm pour 831 mm en moyenne sur trente ans, et des débits très élevés comparativement aux autres années.

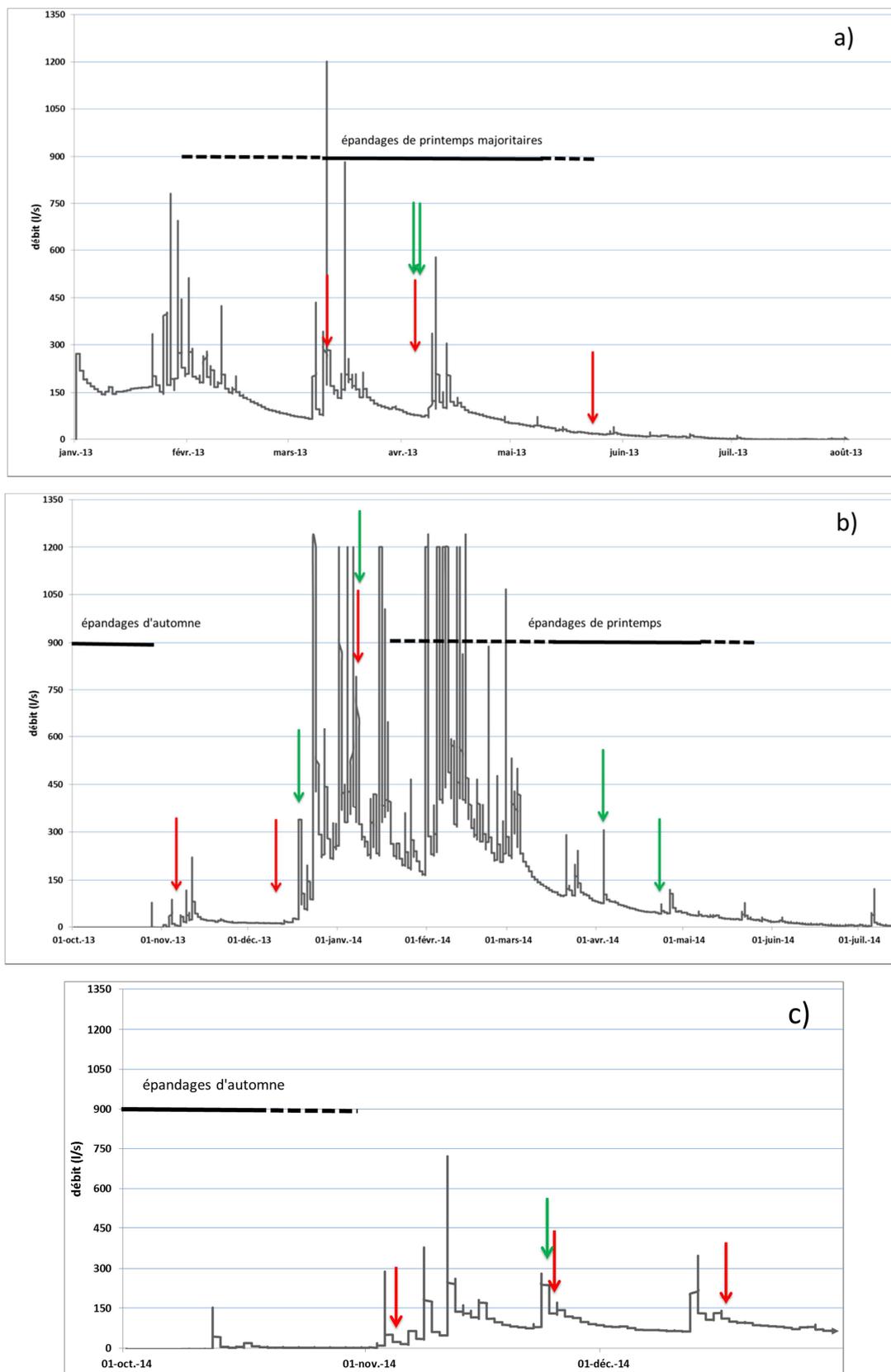


Figure 14 : Dates d'échantillonnage et périodes d'épandage, sur les trois épisodes hydrologiques entre 2013 et 2014 sur le BV de Kervidy-Naizin

### 4.3 – L'échantillonnage sur le BV de Médréac

### 4.3.1 – Les points de prélèvements et fréquence d'échantillonnage

Trois points ont été suivis initialement sur le bassin versant de Médréac :

- les points 1 (aval STEP) et 3 (amont STEP) pour évaluer l'impact de la station d'épuration sur l'occurrence des résidus de médicament dans les eaux superficielles ;
- le point 2 (pont) pour la comparaison avec un bassin versant majoritairement agricole.

Quatre autres points ont été rajoutés début 2014 :

- les points 4 (amont nord) et 5 (amont sud) afin d'appréhender plus finement les situations de tête de bassin versant tout en s'éloignant du bourg ;
- le point 6 (Exu Bois Gesbert) pour avoir une vision globale du bassin versant et appréhender les effets des bassins versants emboîtés ;
- le point 7 (le Néal), afin des comparer les résultats avec ceux pouvant être obtenus sur des bassins versants intégrés dans les réseaux de surveillance nationaux.

La localisation des points de prélèvements est sont présentée sur la figure suivante (Figure 15).

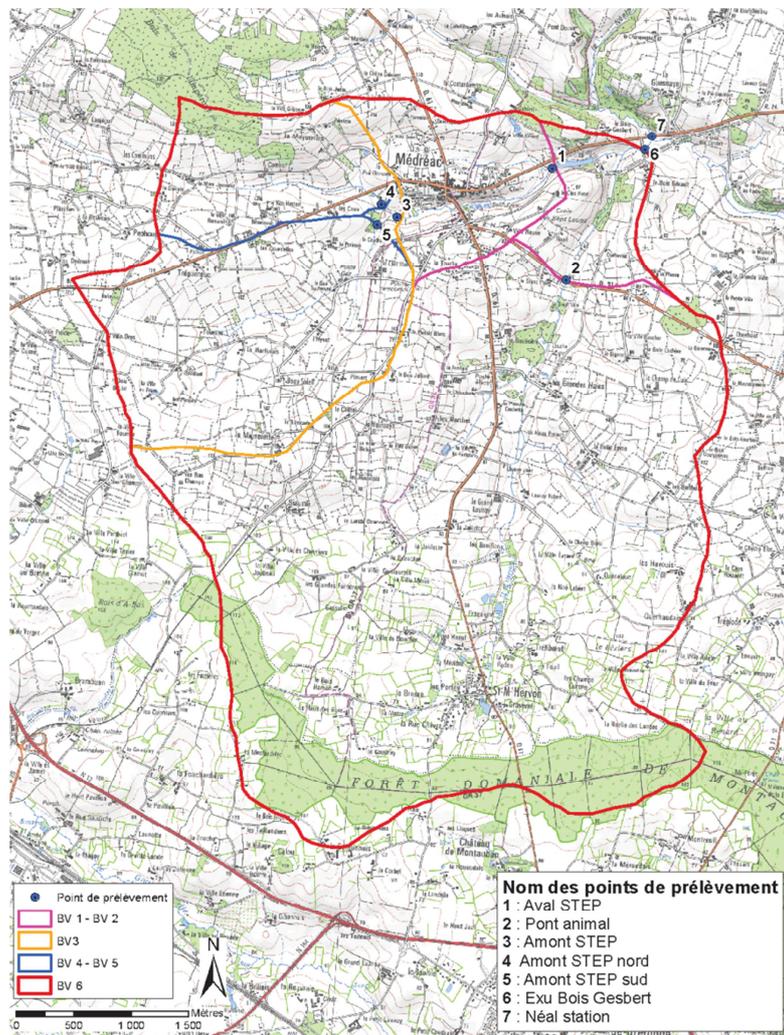


Figure 15 : Localisation des points de prélèvement sur le bassin versant de Médréac

Le tableau ci-après recense les différentes dates de prélèvements réalisés entre 2013 et 2014 (

Tableau 9)

Tableau 9 : Les dates de prélèvements sur le BV de Médréac

date de prélèvement
28/03/2013
11/04/2013
15/05/2013
19/06/2013
01/07/2013
18/11/2013
05/12/2013
19/12/2013
15/01/2014
13/02/2014
03/04/2014
04/06/2014
13/10/2014
03/11/2014
15/12/2014

Les points 4 et 5 ont été échantillonnés à compter du 13/02/2013 et les points 6 et 7 ont été rajoutés à partir du 13/10/2014. A cette date, le point 4 n'a pu être prélevé en raison d'un écoulement insuffisant.

#### 4.3.2 - Positionnement des prélèvements par rapport aux conditions hydrologiques

Il n'existe pas de station de mesures hydrologiques sur le bassin versant de Médréac. Cependant, la station de mesures du RNB située sur le Néal juste à l'aval du bassin versant a permis de calculer les débits estimés sur la période 2013-2014 pour le point 6, correspondant à l'exutoire du BV, selon la méthode développée par A. De Lavenne (2013).. D'après De Lavenne (2013), *« connaissant la quantité d'eau s'écoulant en un point et, par analyse géomorphologique du réseau hydrographique, l'ensemble des chemins de transfert l'y ayant amené, il est possible d'estimer la pluie nette fournie par le versant au réseau hydrographique par inversion de cette fonction de transfert. Cette pluie nette est indépendante de l'échelle d'observation, et peut ainsi être transposée vers le bassin non jaugé puis reconvoluée par sa propre fonction de transfert afin d'y estimer l'hydrogramme recherché »*.

Ainsi, les dates de prélèvement ont pu être positionnées sur les hydrogrammes de crues estimés. Sur le printemps 2013 et pour l'année 2014, les prélèvements ont été concomitants avec des épisodes pluvieux qui se sont traduits par des crues plus ou moins marquées.

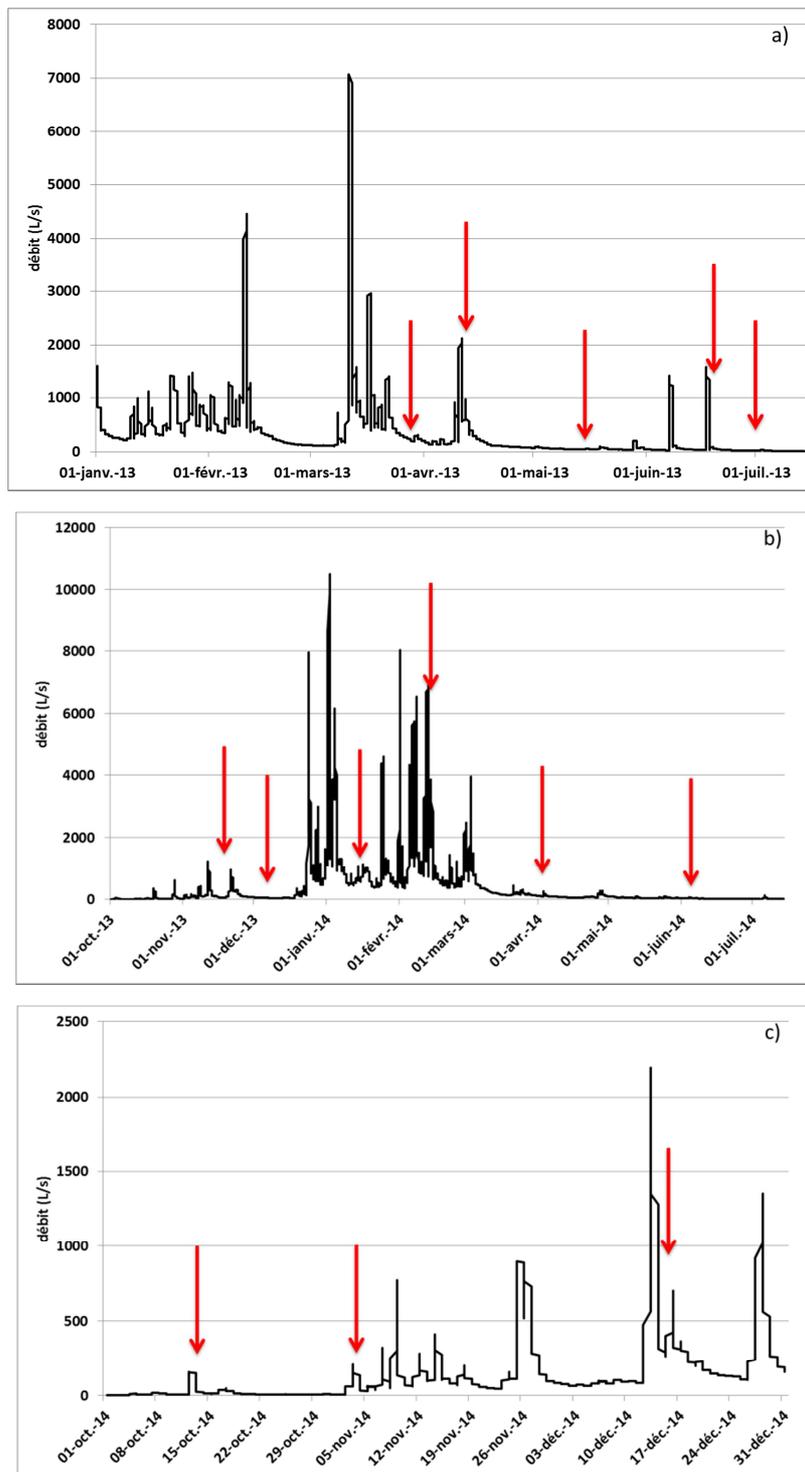


Figure 16 : Dates d'échantillonnage en fonction de l'hydrogramme estimé, sur les trois épisodes hydrologiques entre 2013 et 2014 sur le bassin versant de Médréac

### 4.3 – Les listes de molécules médicamenteuses recherchées et les protocoles d'analyse

La liste des molécules recherchées a évolué au cours du temps s'enrichissant progressivement des résultats des enquêtes menées auprès des vétérinaires et en fonction des molécules proposées par les laboratoires d'analyses. Finalement, la liste est passée de 10 molécules à usage vétérinaire à 27 molécules.

Trois molécules à usage exclusivement humain ont également rajoutées dans la liste afin d'identifier une éventuelle source d'origine humaine dans la contamination des eaux par les résidus de médicaments. Ces molécules sont le diclofénac, la carbamazépine et son métabolite l'époxycarbamazépine. Ces molécules ont été retenues car elles sont parmi les molécules humaines les plus quantifiées (ANSES, 2010).

30 molécules différentes ont donc finalement été recherchées au cours de cette étude dont la liste figure dans le tableau suivant (Tableau 10). Deux laboratoires ont été sollicités, le LERES (selon les 10 molécules présentes dans leur liste Résidus médicamenteux – Vétro /usage vétérinaire) et LABOCEA (liste de molécules à usage vétérinaire, complétée par une liste de molécules à usage humain et mixte) compte tenu des listes de molécules disponibles.

**Tableau 10 : Liste des molécules recherchées dans le cadre du projet REMEDES en fonction de chaque laboratoire**

Classe thérapeutique	molécule	usage vétérinaire par type d'élevage (www.medvet.fr - juillet 2014)	Usage humain (agence-prd.ansm.sante.fr - mise à jour 28/11/2014)	Labocea	LERES
<b>ANTIBIOTIQUES</b>	oxytétracycline	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins, équins	oui		
	doxycycline	bovins, porcins, volaille	oui		
	tétracycline	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins, équins	non		
	Sulfaméthazine	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins, équins	non		
	sulfadiazine	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins, équins	oui		
	triméthoprime	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins, équins	oui		
	ceftiofur	bovins, porcins, équins	non		
	ampicilline	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, équins	oui		
	amoxicilline	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille	oui		
	benzylpénicilline (=pénicilline G - sodium)	bovins, porcins, ovins, caprins, équins	oui		
	lincomycine hydrochloride monohydrate	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille	oui		
	spiramycine	bovins, porcs, volaille	oui		
	tylosine tartrate	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille	non		
	Fluméquine	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins, équins	oui		
	danofloxacin	bovins, porcins	non		
	enrofloxacin	bovins, porcs, volaille	non		
	marbofloxacin	bovins, porcs	non		
	dihydrostreptomycine	bovins, porcins, ovins, caprins, volaille, lapins	non		
	florfenicol	bovins, porcs, ovins	non		
	Carbamazépine	anti-épileptique	humaine exclusivement		
Epoxycarbamazépine (10,11)		humaine exclusivement			
<b>ANTIPARASITAIRES</b>	dicyclanil	ovins	non		
	lévamisole	bovins, porcins, ovins, volaille	oui		
	ivermectine	bovins, porcins, ovins, équins	oui		
	éprinomectine	bovins	non		
	métrifonate	aucune AMM	non		
<b>ANTICOCCIDIEN</b>	monensin	bovins	non		
<b>ANITI INFLAMMATOIRE NON STEROIDIEN</b>	Flunixin	bovins, porcs, équins	non		
	Kétoprofène	bovins, porcs, équins	oui		
	Diclofénac	AINS	humaine exclusivement		
<b>HORMONE</b>	Altrénogest	porcins, équins	non		

Les protocoles de prélèvement et les protocoles d'analyse sont présentés en annexe (Annexe 3)

#### 4.4 – Le suivi bactériologique et l'origine de la contamination fécale

Afin de vérifier s'il existe un co-transport entre les résidus de médicaments présents dans les eaux superficielles et les contaminations fécales, deux indicateurs sont analysés : *E. coli* et les entérocoques fécaux. Les analyses sont réalisées par le LERES. Le protocole est présenté en annexe (Annexe 3).

L'originalité de la méthode repose également sur le couplage avec les analyses de marqueurs de contamination fécale que sont les stanols fécaux. Ces derniers sont des marqueurs chimiques utilisés pour distinguer l'origine des contaminations fécales (humaine, porcine et bovine) dans les eaux superficielles bretonnes (Derrien *et al.*, 2012 et Jaffrezic *et al.*, 2011).

## V - RESULTATS - DISCUSSION

### 5.1 - Enquêtes auprès des vétérinaires – indicateur du niveau de prescription des molécules médicamenteuses en contexte d'élevages bovins, porcins et avicoles

#### 5.1.1 – Les molécules prescrites en élevage bovins lait

##### 5.1.1.1 – Usage des antibiotiques

Une douzaine de molécules sont en moyenne beaucoup prescrites par les vétérinaires dans 4 à 5 familles principales (Tableau 11) :

- i. la famille des pénicillines ( $\beta$ -lactamines) avec notamment la **cloxacilline**, la **benzylpénicilline** et l'**amoxicilline**. L'**ampicilline** se retrouve plutôt en milieu de tableau avec un usage globalement plus modéré ;
- ii. la famille des céphalosporines ( $\beta$ -lactamines) avec principalement la **céfalexine**, le **ceftiofur** et le **cefquinome**, l'usage de cette dernière molécule étant plus contrasté d'un vétérinaire à l'autre (amplitude de 3) ;
- iii. les aminosides représentés majoritairement par la **néomycine** et la **dihydrostreptomycine**. Cette liste peut être complétée par la **streptomycine** située en milieu de tableau mais dont l'usage est très variable, de « beaucoup prescrit » à « pas du tout » ;
- iv. la **tylosine**, de la famille des macrolides semble aussi largement employée et ce pour les 5 vétérinaires. Autre représentant de cette famille, la **lincomycine** située en milieu de tableau, présente donc un usage plus modéré mais systématique par les vétérinaires (amplitude 1). L'usage de la **spiramycine** semble en revanche plus contrasté (de « pas prescrit » à « moyennement prescrit »).
- v. deux autres molécules sont beaucoup utilisées par les 5 vétérinaires, le **triméthoprime**, et la **colistine** (famille des polypeptides).

D'autres familles comptent de nombreux représentants parmi les molécules pharmaceutiques à usage vétérinaire, mais leur utilisation semble plus modérée voire faible sur l'ensemble de notre échantillon. Il s'agit notamment :

- i. des tétracyclines avec comme molécule majeure l'**oxytétracycline**, puis la **tétracycline** qui apparaît en milieu de tableau mais qui présente un niveau de prescription très variable d'un vétérinaire à l'autre (amplitude de 3). L'écart est également important pour la **chlortétracycline**, même si son usage est globalement plus faible ;
- ii. des sulfamides avec comme premier représentant dans la liste et en milieu de tableau la **sulfaméthazine** (molécule équivalente à la sulfadimidine = sulfadimérazine) qui montre des niveaux de prescription contrastés. Toujours en milieu de tableau on identifie trois autres molécules qui sont la **sulfadiméthoxine**, la **sulfaguamidine** et la **sulfaméthoxyypyridazine**. Il reste deux autres molécules de cette même famille mais avec un usage plus faible, il s'agit de la **sulfadiazine** et de la **sulfadoxine** ;
- iii. des fluoroquinolones avec la **marbofloxacin**e utilisée moyennement mais la faible amplitude des réponses valide un usage généralisé. L'**enrofloxacin**e et la **danofloxacin**e sont globalement moins utilisées, voire nullement par certains vétérinaires.

Deux molécules présentent un niveau de prescription moyen avec une faible amplitude de réponse, ce qui confirme une utilisation systématique. Il s'agit du **florfénicol** (seul représentant de la famille des phénicolés) et de la **rifaximine**.

Enfin, certaines molécules ne sont pas ou très peu utilisées par l'ensemble des vétérinaires. Il s'agit de la **doxycycline**, de la **tiamuline**, de l'**apramycine** et des deux quinolones de première génération à savoir l'**acide oxolinique** et la **fluméquine**.

Les études traitant de l'usage des antibiotiques (Chevance et Moulin (2013) et Cazeau et al (201) présentent leurs résultats par un classement des familles d'antibiotiques, sans détailler les différentes molécules. La comparaison directe avec nos propres résultats reste donc difficile. Cependant, les enquêtes réalisées dans le cadre du projet REMEDES reflètent certaines tendances comme la prédominance des pénicillines, aminosides et des macrolides. En revanche, l'usage des tétracyclines semblent être sous-estimé par rapport aux données nationales, si on considère l'ensemble des molécules prescrites de cette famille et non uniquement l'oxytétracycline.

Par contre l'usage important de certaines céphalosporines ressort nettement de nos enquêtes. Ce décalage avec les résultats nationaux reflète la spécificité territoriale liée à la prédominance des élevages bovins lait comme l'on souligné Cazeau et al. (2010) et Gay *et al.* (2012).

Tout cela montre que pour la filière bovine, il est peu pertinent d'appliquer des données nationales sur un territoire sans tenir compte de sa spécificité en terme de productions animales.

Tableau 11: Indicateur du niveau de prescription des molécules antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés bovins lait

Familles (ref : med/vet 2014)	Molécules	Nombre de réponses				moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin
		jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit			
β-lactamines (pénicillines)	Cloxaciline	0	0	2	3	2,6	1	+++
Aminosides	Néomycine	0	0	2	3	2,6	1	+++
β-lactamines (céphalosporine)	Céfalexine (1G)	0	0	3	2	2,4	1	+++
β-lactamines (céphalosporine)	Ceftiofur (3G)	0	0	3	2	2,4	1	+++
Macrolides	Tylosine	0	0	3	2	2,4	1	+++
Diaminopyrimidines	Triméthoprime	0	1	1	3	2,4	2	+++
β-lactamines (pénicillines)	Benzylpénicilline	0	1	1	3	2,4	2	+++
Aminosides	Dihydrostreptomycine	0	1	1	3	2,4	2	+++
Polypeptides	Colistine	0	0	4	1	2,2	1	+++
β-lactamines (pénicillines)	Amoxicilline	0	1	2	2	2,2	2	+++
Tétracyclines	Oxytétracycline	0	2	1	2	2	2	++
β-lactamines (céphalosporine)	Cefquinome (3G)	1	0	2	2	2	3	++
Sulfamides	Sulfaméthazine	1	0	3	1	1,8	3	++
fluoroquinolones	Marbofloxacin	0	2	3	0	1,6	1	++
Phénicolés	Florfenicol	0	2	3	0	1,6	1	++
β-lactamines (pénicillines)	Ampicilline	0	3	1	1	1,6	2	++
Ansamycines	Rifaximine	1	0	4	0	1,6	2	++
Tétracyclines	Tétracycline	1	1	2	1	1,6	3	++
Aminosides	Streptomycine	2	0	1	2	1,6	3	++
Macrolides	Lincomycine	0	3	2	0	1,4	1	++
Sulfamides	Sulfadiméthoxine	1	1	3	0	1,4	2	++
Macrolides	Spiramycine	1	1	3	0	1,4	2	++
Sulfamides	Sulfaguamidine	1	2	1	1	1,4	3	++
Aminosides	Kanamycine	2	0	2	1	1,4	3	++
Aminosides	Spectinomycine	0	4	1	0	1,2	1	++
Sulfamides	Sulfaméthoxypyridazine	1	2	2	0	1,2	2	++
Macrolides	Tilmicosine	1	2	2	0	1,2	2	++
β-lactamines (céphalosporine)	Céfalonium (1G)	2	1	1	1	1,2	3	++
Macrolides	Gamithromycine	2	1	1	1	1,2	3	++
Aminosides	Gentamicine	1	3	1	0	1	2	+
Tétracyclines	Chlortétracycline	2	2	0	1	1	3	+
Macrolides	Tildiprosine	3	0	1	1	1	3	+
Sulfamides	Sulfadiazine	3	0	2	0	0,8	2	+
Sulfamides	Sulfadoxine	2	2	1	0	0,8	2	+
β-lactamines (céphalosporine)	Céfapirine (1G)	2	2	1	0	0,8	2	+
β-lactamines (céphalosporine)	Céfoperazone (3G)	2	2	1	0	0,8	2	+
fluoroquinolones	Enrofloxacin	2	2	1	0	0,8	2	+
Macrolides	Tulathromycine	3	1	0	1	0,8	3	+
Tétracyclines	Doxycycline	2	3	0	0	0,6	1	+
Pleuromutilines	Tiamuline	2	3	0	0	0,6	1	+
fluoroquinolones	Danofloxacin	3	1	1	0	0,6	2	+
Quinolones	Acide oxolinique	3	2	0	0	0,4	1	+
Quinolones	Fluméquine	4	1	0	0	0,2	1	+
Aminosides	Apramycine	4	1	0	0	0,2	1	+

0 : pas du tout prescrit ; + = un peu prescrit ; ++ = moyennement prescrit ; +++ = beaucoup prescrit

### 5.1.1.2 - Les autres classes thérapeutiques : les antiparasitaires et anticoccidiens, les anti-inflammatoires et les hormones

Le tableau (Tableau 12) suivant présente les résultats synthétiques des enquêtes réalisées auprès des vétérinaires bovins lait, pour les molécules autres que les antibiotiques.

Pour les élevages bovins lait, les antiparasitaires les plus utilisés sont ceux appartenant à la famille des avermectines avec principalement **l'éprinomectine**, puis secondairement **l'ivermectine**. L'usage de cette dernière reste moins marqué en raison notamment d'une interdiction d'utilisation sur les vaches dont le lait est destiné à la consommation humaine. La **moxidectine** est aussi moyennement utilisée mais elle est prescrite de façon plus hétérogène d'un vétérinaire à l'autre, par rapport aux deux précédentes. Pour indication, cette molécule bénéficie d'une autorisation en agriculture biologique car elle préserve le bousier et son usage est susceptible d'augmenter.

Dans la famille des benzimidazoles, le **fenbendazole** est utilisé assez régulier par les vétérinaires, et plus secondairement **l'albendazole** et **l'oxibendazole**. Un autre antiparasitaire est largement utilisé, la **deltaméthrine** (famille des pyréthrynoïdes). Rappelons que cette molécule est aussi utilisée comme insecticide dans le traitement des grandes cultures.

Parmi les anticoccidiens, le **diclarzuril** et le **décoquinat**e semblent assez largement utilisés, et de façon plus hétérogène, le **toltrazuril**, qui est une molécule plus récente que le diclarzuril. Toutes ces molécules sont à destination des très jeunes veaux.

Pour les anti-inflammatoires, trois molécules ressortent nettement, le **méloxicam** et secondairement la **flunixin**e et la **déxaméthazone**.

Parmi les onze hormones citées dans l'enquête, une molécule, le **cloprosténol** paraît plus nettement prescrite. Ensuite viennent la **busérel**ine, l'hormone **PMSG**, le **dinoprost** et **l'oxytocine**.

**Tableau 12: Indicateurs du niveau de prescription des molécules non antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés bovins lait**

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit	moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin
Antiparasitaires	Avermectine	Eprinomectine	0	0	1	4	2,8	1	+++
Antiparasitaires	Pyréthroïde	Deltaméthrine	0	0	2	3	2,6	1	+++
Anticoccidiens		Diclazuril	0	0	4	1	2,2	1	+++
Anticoccidiens		Decoquinate	0	2	1	2	2	2	++
Antiparasitaires	Avermectine	Ivermectine	0	1	4	0	1,8	1	++
Antiparasitaires	Benzimidazole	Fenbendazole	0	2	2	1	1,8	2	++
Anticoccidiens		Toltrazuril	1	1	2	1	1,6	3	++
Antiparasitaires	Avermectine	Moxidectine	1	2	1	1	1,4	3	++
Antiparasitaires	Benzimidazole	Albendazole	1	2	1	1	1,4	3	++
Antiparasitaires	Benzimidazole	Oxibendazole	2	1	1	1	1,2	3	++
Antiparasitaires	Benzimidazole	Flubendazole	3	1	0	1	0,8	3	+
Antiparasitaires	Imidazothiazoles	Lévamisole	2	3	0	0	0,6	1	+
Anticoccidiens		Monensin	2	3	0	0	0,6	1	+
Antiparasitaires	Avermectine	Doramectine	4	0	0	1	0,6	3	+
Antiparasitaires		Pipérazine	3	2	0	0	0,4	1	+
Antiparasitaires	Organophosphoré	Phoxim	4	1	0	0	0,2	1	+
Antiparasitaires		Amitraz	4	1	0	0	0,2	1	+
Antiparasitaires	Pyrimidine	Dicyclanil	5	0	0	0	0	0	0

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit	moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin
<b>AINS</b>		Meloxicam	0	1	0	4	2,6	2	+++
<b>AINS</b>		Flunixin	0	1	2	2	2,2	2	++
<b>Corticoïde stéroïdien</b>		Dexaméthazone	0	1	3	1	2	2	++
<b>AINS</b>		Acide acétylsalicylique	1	4	0	0	0,8	1	+
<b>AINS</b>		Acide tolfénamique	4	0	1	0	0,4	2	+
<b>AINS</b>		Ketoprofène	4	1	0	0	0,2	1	+
<b>AINS</b>		Paracétamol	5	0	0	0	0	0	0

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit	moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin
<b>Hormones</b>		Cloprostérol	0	0	3	2	2,4	1	+++
		Busérelène	0	2	1	2	2	2	++
		PMSG	0	2	2	1	1,8	2	++
		Oxytocine	0	2	3	0	1,6	1	++
		Dinoprost	0	3	1	1	1,6	2	++
		Sérotonine	1	3	1	0	1	2	+
		HCG	2	3	0	0	0,6	1	+
		Norgestomet	3	1	1	0	0,6	2	+
		Progestérone	3	2	0	0	0,4	1	+
		Altrénogest	4	0	1	0	0,4	2	+
		Alphaprostol	4	0	1	0	0,4	2	+

Med/vet : le recueil des spécialités à usage vétérinaire

0 : pas du tout ; + = un peu ; ++ = moyennement ; +++ = fréquemment

Pour ces différentes classes thérapeutiques, il n'existe pas comme pour les antibiotiques, de bilan spécifique mené au niveau national.

## 5.1.2 – Les molécules prescrites en élevage porcin.

### 5.1.2.1 – Les antibiotiques

En première analyse, il apparaît que le nombre de molécules utilisées dans la filière porcine (Tableau 13) est plus réduit que pour les élevages bovins, plusieurs molécules n'ayant pas d'AMM porc. Et les usages semblent plus ciblés sur quelques molécules.

Les résultats indiquent que la **colistine**, seul représentant de la famille des polypeptides, est largement utilisée en élevage porcins. La famille des tétracyclines semble aussi bien représentée avec la **doxycycline** qui montre un usage fréquent et généralisé (amplitude 1). La **chlortétracycline** et l'**oxytétracycline** présentent un usage plus modéré et aussi plus variable suivant les vétérinaires enquêtés (amplitude 2). La **marbofloxacin**e et l'**enrofloxacin**e sont majoritairement employées, en revanche la danofloxacin, autre fluoroquinolone n'est pas utilisée. L'**amoxicilline** est la molécule représentant les pénicillines la plus utilisée, les autres molécules comme la benzylpénicilline et l'ampicilline sont peu prescrites. Le **florfénicol**, qui tend à remplacer l'enrofloxacin et le ceftiofur (suite au moratoire sur les céphalosporines de 3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> générations dans la filière porcine) montre un usage modéré mais généralisé, tout comme le **triméthoprime**.

Les molécules de la famille des macrolides sont moyennement prescrites avec essentiellement la **tylosine**, la **lincomycine** et la **spiramycine**. Les autres molécules de cette famille ayant une AMM sont peu utilisées (tulathromycine et tilmicosine). Les sulfamides et les aminosides sont modérément employées et avec chacune deux représentants principaux qui sont respectivement la **sulfadiazine** et la **sulfadiméthoxine** puis la **néomycine** et la **dihydrostreptomycine**.

Comme pour les bovins, il reste difficile de comparer les résultats du Tableau 13 présentant un classement des molécules et les données présentées par famille des études menées au niveau national (Chevance et Moulin (2013) et Hémonic *et al.* (2014)). Toutefois, les résultats semblent cohérents et traduisent également un usage prédominant de la colistine et des tétracyclines. Mais, les enquêtes mettent en avant l'importance de deux fluoroquinolones (enrofloxacin et marbofloxacin) et du florfénicol dont l'utilisation s'est accrue suite au moratoire sur les céphalosporines de 3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> génération mis en place en 2010 par la filière porcine.

**Tableau 13: Indicateurs du niveau de prescription des molécules antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés porcins**

Familie (ref : med/vet 2014)	Molécules	Nombre de réponses				moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcine
		jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit			
Polypeptides	Colistine	0	0	0	5	3	0	+++
Tetracyclines	Doxycycline	0	0	1	4	2,8	1	+++
fluoroquinolones	Marbofloxacin	0	0	2	3	2,6	1	+++
fluoroquinolones	Enrofloxacin	0	0	4	1	2,2	1	+++
$\beta$ -lactamines (pénicillines)	Amoxicilline	0	1	3	1	2	2	++
Diaminopyrimidines	Triméthoprime	0	1	4	0	1,8	1	++
Phénicolés	Florfenicol	0	1	4	0	1,8	1	++
Macrolides	Tylosine	0	2	2	1	1,8	2	++
Sulfamides	Sulfadiazine	0	2	3	0	1,6	1	++
Aminosides	Néomycine	0	2	3	0	1,6	1	++
Tetracyclines	Chlortétracycline	0	3	1	1	1,6	2	++
Tetracyclines	Oxytétracycline	0	3	1	1	1,6	2	++
Macrolides	Lincomycine	0	3	2	0	1,4	1	++
Macrolides	Spiramycine	0	4	1	0	1,2	1	++
Aminosides	Dihydrostreptomycine	0	4	1	0	1,2	1	++
Sulfamides	Sulfaméthoxine	2	0	3	0	1,2	2	++
$\beta$ -lactamines (pénicillines)	Benzylpénicilline	0	5	0	0	1	0	+
Aminosides	Apramycine	0	5	0	0	1	0	+
Macrolides	Tulathromycine	1	3	1	0	1	2	+
$\beta$ -lactamines (pénicillines)	Ampicilline	1	4	0	0	0,8	1	+
Macrolides	Tilmicosine	1	4	0	0	0,8	1	+
Quinolones	Acide oxolinique	1	4	0	0	0,8	1	+
Aminosides	Spectinomycine	1	4	0	0	0,8	1	+
Pleuromutilines	Tiamuline	2	3	0	0	0,6	1	+
Aminosides	Gentamicine	2	3	0	0	0,6	1	+
Tetracyclines	Tétracycline	3	1	1	0	0,6	2	+
Sulfamides	Sulfaméthazine	3	1	1	0	0,6	2	+
$\beta$ -lactamines (pénicillines)	Cloxacilline	3	2	0	0	0,4	1	+
Quinolones	Fluméquine	3	2	0	0	0,4	1	+
$\beta$ -lactamines (céphalosporine)	Cefquinome	4	1	0	0	0,2	1	+
$\beta$ -lactamines (céphalosporine)	Ceftiofur	4	1	0	0	0,2	1	+
Macrolides	Tildiprosine	4	1	0	0	0,2	1	+
Aminosides	Streptomycine	4	1	0	0	0,2	1	+
Sulfamides	Sulfaméthoxypyridazine	5	0	0	0	0	0	0
Sulfamides	Sulfadoxine	5	0	0	0	0	0	0
Sulfamides	Sulfaguamidine	5	0	0	0	0	0	0
$\beta$ -lactamines (céphalosporine)	Céfalexine	5	0	0	0	0	0	0
$\beta$ -lactamines (céphalosporine)	Céfapirine	5	0	0	0	0	0	0
$\beta$ -lactamines (céphalosporine)	Céfoperazone	5	0	0	0	0	0	0
$\beta$ -lactamines (céphalosporine)	Céfalonium	5	0	0	0	0	0	0
Macrolides	Gamithromycine	5	0	0	0	0	0	0
fluoroquinolones	Danofloxacin	5	0	0	0	0	0	0
Aminosides	Kanamycine	5	0	0	0	0	0	0
Ansamycines	Rifaximine	5	0	0	0	0	0	0

0 : pas du tout ; + = un peu ; ++ = moyennement ; +++ = fréquemment

molécule sans AMM porc

### 5.1.2.2 - Les autres classes thérapeutiques

Contrairement à la filière bovine, il existe peu d'antiparasitaires et anticoccidiens ayant une AMM pour les porcs (Tableau 14). Seuls 8 antiparasitaires/anticoccidiens sont plus ou moins utilisés, contre 18 au moins chez les bovins.

**Tableau 14: Indicateurs du niveau de prescription des molécules non antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés porcins**

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules enquêtes porcins	jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit	moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcins
Antiparasitaires	Benzimidazole	Flubendazole	0	0	3	2	2,4	1	+++
Antiparasitaires	Imidazothiazoles	Lévamisole	0	0	4	1	2,2	1	+++
Anticoccidiens		Toltrazuril	0	1	2	2	2,2	2	+++
Antiparasitaires	Benzimidazole	Oxibendazole	0	2	3	0	1,6	1	++
Antiparasitaires	Avermectine	Ivermectine	0	3	2	0	1,4	1	++
Antiparasitaires	Benzimidazole	Fenbendazole	0	3	2	0	1,4	1	++
Antiparasitaires		Amitraz	1	2	2	0	1,2	2	++
Antiparasitaires	Organophosphoré	Phoxim	2	2	1	0	0,8	2	+
Anticoccidiens		Decoquinat	4	1	0	0	0,2	1	+
Antiparasitaires	Pyrimidine	Dicyclanil	5	0	0	0	0	0	0
Antiparasitaires	Avermectine	Doramectine	5	0	0	0	0	0	0
Antiparasitaires	Avermectine	Eprinomectine	5	0	0	0	0	0	0
Antiparasitaires	Avermectine	Moxidectine	5	0	0	0	0	0	0
Antiparasitaires	Benzimidazole	Albendazole	5	0	0	0	0	0	0
Antiparasitaires		Pipérazine	5	0	0	0	0	0	0
Antiparasitaires	Pyréthrianoïde	Deltaméthrine	5	0	0	0	0	0	0
Anticoccidiens		Monensin	5	0	0	0	0	0	0
Anticoccidiens		Didarzuril	5	0	0	0	0	0	0

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules enquêtes porcins	jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit	moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcins
<b>AINS</b> <b>AINS</b> <b>Corticoïde stéroïdien</b> <b>AINS</b> <b>AINS</b> <b>AINS</b>		Acide acétylsalicylique	0	0	2	3	2,6	1	+++
		Paracétamol	0	0	3	2	2,4	1	+++
		Dexaméthazone	0	0	4	1	2,2	1	+++
		Flunixin	0	1	4	0	1,8	1	++
		Ketoprofène	0	2	2	1	1,8	2	++
		Meloxicam	0	4	0	1	1,4	2	++
<b>AINS</b>		Acide tolfénamique	5	0	0	0	0	0	0

AINS : anti inflammatoire non stéroïdien

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules enquêtes porcins	jamais prescrit	un peu prescrit	moyennement prescrit	beaucoup prescrit	moyenne des prescriptions	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcins
<b>Hormones</b>		Altrénogest	0	0	2	3	2,6	1	+++
		Dinoprost	0	0	3	2	2,4	1	+++
		Sérotonine	0	1	4	0	1,8	1	++
		Oxytocine	1	0	3	1	1,8	3	++
		Cloprosténol	0	3	1	1	1,6	2	++
		Alphaprostol	1	2	1	1	1,4	3	++
		PMSG	0	4	1	0	1,2	1	++
		HCG	1	4	0	0	0,8	1	+
		Progéstérone	4	1	0	0	0,2	1	+
		Norgestomet	5	0	0	0	0	0	0
		Busérelène	5	0	0	0	0	1	0

molécule sans autorisation de mise sur le marché (AMM) pour les porcs

Contrairement à la filière bovine, il existe peu d'antiparasitaires et anticoccidiens ayant une AMM pour les porcs. Les benzimidazoles constituent la famille la plus utilisée avec le **flubendazole** puis

**l'oxybendazole** et le **fenbendazole**. Le **lévamisole** et le **toltrazuril** semblent aussi beaucoup employés, **l'ivermectine** l'est plus modérément. **L'amitraz** et le **phoxim** sont globalement peu prescrits et de façon plus hétérogène entre les vétérinaires.

Les anti-inflammatoires non stéroïdiens sont largement employés. On notera un usage net de **l'acide acétylsalicylique**, utilisé de façon collective et par voie orale pour le traitement de la grippe, mais aussi celui du **paracétamol**. La **flunixin**, le **kétoprofène** sont moyennement prescrits, et dans une moindre mesure le **méloxicam**. Le **dexaméthazone** est aussi moyennement prescrit.

L'usage des hormones est fréquent pour synchroniser les chaleurs au sein des élevages porcins, avec un usage marqué de **l'altrénogest**. Les prostaglandines sont aussi utilisées avec en majorité le **dinoprost**, et dans une moindre mesure ou avec un usage plus contrasté le **chloprosténol** et **l'alphaprostol**. Deux autres molécules sont moyennement utilisées, **l'oxytocine** et la **sérotonine**.

### 5.1.3 – Les molécules prescrites en élevage avicole

#### 5.1.3.1 – Les antibiotiques

L'enquête réalisée auprès d'un seul vétérinaire a mis en évidence que le nombre de molécules utilisées en élevage avicole (volaille de chair : poulet et dinde) est beaucoup plus restreint que dans les autres productions animales, avec un total de 14 molécules (Tableau 15).

Les molécules les plus utilisées dans le traitement des volailles de chair sont : la **sulfadiazine** et la **sulfadiméthoxine** (familles des sulfamides), le **triméthoprime** (en association avec les sulfamides), **l'amoxicilline** avec comme autre représentant de la famille des pénicillines **l'ampicilline** et la **phénoxyméthylpénicilline**, mais avec un usage plus modéré. Cette molécule est une molécule exclusivement destinée aux poulets et n'a pas été prise en compte dans les enquêtes bovins et porcins. La **colistine** (famille des polypeptides) est largement utilisée.

La famille des tétracyclines est principalement représentée par **l'oxytétracycline** et avec un usage plus faible la **doxycycline**. Les macrolides et les fluoroquinolones ont un seul représentant, respectivement la **tylosine** et **l'enrofloxacin**.

La comparaison avec les données nationales reste difficile. Si l'enquête confirme bien l'usage important de la colistine, elle semble diminuer l'usage des tétracyclines (dont l'usage est restreint aux dindes) et au contraire mettre en avant l'utilisation de sulfamides/triméthoprime et des pénicillines.

Certaines familles ne sont pas du tout utilisées : les céphalosporines et les aminosides.

**Tableau 15: Indicateurs du niveau de prescription des molécules antibiotiques d'après une enquête réalisée auprès d'un vétérinaire spécialisé en volaille de chair**

Famille (ref : med'vet 2014)	Molécules	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair (poulets et dinde)
Sulfamides	Sulfadiazine	+++
Sulfamides	Sulfaméthoxine	+++
Diaminopyrimidines	Triméthoprime	+++
β-lactamines (pénicillines)	Amoxicilline	+++
Polypeptides	Colistine	+++
Tetracyclines	Oxytétracycline	++
β-lactamines (pénicillines)	Ampicilline	++
β-lactamines (pénicillines)	Phénoxyéthylpénicilline	++
Macrolides	Tylosine	++
fluoroquinolones	Enrofloxacin	++
Tetracyclines	Doxycycline	+
Pleuromutilines	Tiamuline	+
Quinolones	Fluméquine	+
Tetracyclines	Chlortétracycline	0
Tetracyclines	Tétracycline	0
Sulfamides	Sulfaméthazine	0
Sulfamides	Sulfaméthoxy-pyridazine	0
Sulfamides	Sulfadoxine	0
Sulfamides	Sulfaguamidine	0
β-lactamines (céphalosporine)	Céfalexine (1G)	0
β-lactamines (céphalosporine)	Céfapirine (1G)	0
β-lactamines (céphalosporine)	Cefquinome (3G)	0
β-lactamines (céphalosporine)	Ceftiofur (3G)	0
β-lactamines (céphalosporine)	Céfoperazone (3G)	0
β-lactamines (céphalosporine)	Céfalonium (1G)	0
β-lactamines (pénicillines)	Cloxacilline	0
β-lactamines (pénicillines)	Benzylpénicilline	0
Macrolides	Lincomycine	0
Macrolides	Spiramycine	0
Macrolides	Tilmicosine	0
Macrolides	Tulathromycine	0
Macrolides	Tildiprosine	0
Macrolides	Gamithromycine	0
Quinolones	Acide oxolinique	0
fluoroquinolones	Danofloxacin	0
fluoroquinolones	Marbofloxacin	0
Aminosides	Dihydrostreptomycine	0
Aminosides	Streptomycine	0
Aminosides	Apramycine	0
Aminosides	Gentamicine	0
Aminosides	Kanamycine	0
Aminosides	Spectinomycine	0
Aminosides	Néomycine	0
Phénicolés	Florfenicol	0
Ansamycines	Rifaximine	0

0 : pas du tout prescrit ; + = un peu prescrit ; ++ = moyennement prescrit ; +++ = beaucoup prescrit

### 5.1.3.2 – les autres classes thérapeutiques

Encore plus nettement que pour les antibiotiques le nombre de molécules utilisées comme antiparasitaires, anticoccidiens et anti-inflammatoire est réduit par rapport aux autres élevages. Et aucune hormone n'est utilisée en élevage de volaille de chair.

Deux antiparasitaires sont largement prescrits le **levamisole**, et l'**amprolium**. Cette molécule est exclusivement à usage avicole n'a pas été intégrée dans les enquêtes bovins et porcins. D'un usage plus limité, on trouve le **flubendazole** et la **pipérazine**.

Le **monensin** est un anticoccidien largement prescrit (donné dans l'aliment), et dans une moindre mesure le **toltrazutil** puis le **diclazuril**.

**Tableau 16: Indicateurs du niveau de prescription des molécules non antibiotiques d'après une enquête réalisée auprès d'un vétérinaire spécialisé en volaille de chair**

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med'vet 2014)	Molécules enquêtes porcins	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
<b>Antiparasitaires</b>	Imidazothiazoles	Lévamisole	+++
<b>Anticoccidiens</b>		Monensin	+++
<b>Antiparasitaires</b>		Amprolium	++
<b>Anticoccidiens</b>		Toltrazuril	++
<b>Antiparasitaires</b>		Flubendazole	+
<b>Antiparasitaires</b>		Pipérazine	+
<b>Anticoccidiens</b>	Pyrimidine	Diclarzuril	+
<b>Antiparasitaires</b>		Dicyclanil	0
<b>Antiparasitaires</b>		Doramectine	0
<b>Antiparasitaires</b>		Ivermectine	0
<b>Antiparasitaires</b>	Avermectine	Eprinomectine	0
<b>Antiparasitaires</b>		Moxidectine	0
<b>Antiparasitaires</b>		Albendazole	0
<b>Antiparasitaires</b>	Benzimidazole	Fenbendazole	0
<b>Antiparasitaires</b>		Oxibendazole	0
<b>Antiparasitaires</b>	Organophosphoré	Phoxim	0
<b>Antiparasitaires</b>	Pyréthroïde	Amitraz	0
<b>Antiparasitaires</b>		Deltaméthrine	0
<b>Anticoccidiens</b>		Decoquinate	0

<b>AINS (anti inflammatoire non stéroïdien)</b>		Acide acétylsalicylique	+
		Flunixin	0
		Paracétamol	0
	Oxicam	Meloxicam	0
		Acide tolfénamique	0
		Ketoprofène	0
<b>Corticoïde stéroïdien</b>		Dexaméthazone	0

## 5.1.4 – Intérêts et limites de la méthode, pertinence des indicateurs

### 5.1.4.1. Signification de l'indicateur du niveau de prescription et limites à prendre en compte

L'objectif de la méthode retenue dans le projet REMEDES est d'identifier les molécules prescrites ou non par les vétérinaires sur un territoire et d'estimer leur importance relative, afin d'appréhender la pression environnementale qu'elles peuvent potentiellement représenter. En cela, l'indicateur du niveau de prescription utilisé ici se rapproche des indicateurs quantitatifs directement liés aux volumes des ventes de médicaments et donc des volumes de matières actives qui en découlent.

Dans la plupart des études proposant des bilans sur l'usage des antibiotiques, les divers indicateurs calculés s'appuient sur des données chiffrées et intègrent d'autres critères (posologie, durée des traitements, poids vif traité, etc.) mais leur finalité est d'évaluer l'exposition des animaux aux antibiotiques, ce qui n'est pas l'objectif du présent projet. A l'inverse de ces différentes études, l'approche REMEDES reste beaucoup plus simple et rapide à mettre en œuvre à l'échelle des territoires considérés.

En revanche, l'indicateur du niveau de prescription n'a pas de signification quantitative à savoir qu'une molécule ayant un indicateur « +++ » n'est pas trois fois plus prescrite qu'une molécule « + ». De la même façon, on ne peut établir d'équivalence entre deux indicateurs relatifs à différentes classes thérapeutiques ou entre deux indicateurs relatifs à deux productions animales distinctes. Les réponses apportées et le classement qui en découle sont relatifs et spécifiques à chaque catégorie. Pour être appliquées sur d'autres territoires que ceux étudiés ici, ces données devront être mises en regard des productions animales effectivement présentes (typologie, effectifs).

En résumé, l'indicateur du niveau de prescription i) renseigne sur la nature des molécules prescrites ou non sur un territoire, ii) guide sur les molécules à rechercher ou non dans les eaux mais iii) cet indicateur ne présume en rien de la présence effective dans les cours d'eau des molécules majoritairement prescrites ni de leur concentration. Les voies d'administration des médicaments, la dégradation des molécules dans l'organisme, les conditions et la durée de stockage des effluents, les périodes d'épandage, les facteurs de transfert sont autant de paramètres qui vont influencer et contrôler la présence des molécules dans les eaux superficielles. A ce titre, les données des ventes qu'elles soient nationales ou régionales n'apportent pas à elles seules plus de précision.

### 5.1.4.2. Pertinence de choisir les vétérinaires pour les enquêtes

La méthode s'appuie sur des enquêtes menées auprès de vétérinaires. S'adresser aux praticiens plutôt qu'aux éleveurs permet de réduire le nombre d'enquêtes à mener sur un territoire de plusieurs centaines de kilomètres carrés. Un éleveur n'est pratiquement représentatif que de sa propre exploitation. Chauvin *et al.* (2012) ont en effet montré que l'usage des antibiotiques était influencé par l'élevage et ses caractéristiques intrinsèques (état des bâtiments, implantation géographique, pratiques de l'éleveur, etc.). Questionner un vétérinaire permet de couvrir un territoire plus grand en raison d'un rayon d'action plus large, et ce d'autant plus que les

vétérinaires sont groupés au sein de cliniques au sein desquelles les pratiques tendent à être homogènes.

Suivant l'objectif recherché, il est aussi plus rapide (nombre plus restreint d'enquêtes) d'atteindre par l'intermédiaire des vétérinaires l'exhaustivité sur un territoire géographique (quelques centaines de kilomètres carrés). Le choix d'un public ciblé et restreint permet plus facilement de réaliser des enquêtes directes plutôt que par courrier, ce qui améliore nettement la qualité et la complétude des informations recueillies.

Un échantillon s'appuyant sur les éleveurs aurait aussi compliqué le travail de préparation avec la phase d'identification et de sélection des élevages. Et faire accepter une telle enquête, dans un contexte agricole déjà fragilisé et tendu autour de cette problématique, aurait probablement été plus difficile. Il est aussi probable que les vétérinaires s'approprient plus facilement un questionnaire dont l'entrée se fait par le nom de la molécule et non par la spécialité médicamenteuse, à laquelle sera peut-être plus familier l'éleveur.

Toutefois, il peut exister des différences dans les résultats suivant l'origine de l'information. Ainsi, Gay *et al.* (2012) relèvent dans leurs enquêtes que les tétracyclines représentent 30% des antibiotiques utilisés d'après les éleveurs contre 14% d'après les vétérinaires. Ces écarts peuvent être dus à la différence de médicaments administrés par les éleveurs et ceux que prescrivent les vétérinaires lorsqu'ils interviennent « au chevet de l'animal »<sup>14</sup>. De plus, l'éleveur peut être conseillé par plusieurs professionnels de santé intervenants au sein de son exploitation, ce qui peut aussi moduler l'information recueillie.

#### **5.1.4.3 - Variabilité des prescriptions des vétérinaires**

La variabilité des prescriptions entre vétérinaires intervenant sur un même type d'élevage est appréhendée par l'amplitude des réponses figurant dans les tableaux précédents.

A la lecture de ces derniers, il apparaît nettement que les réponses apportées par les cinq vétérinaires spécialisés porcins sont globalement homogènes. Sur les 36 molécules antibiotiques ayant une AMM pour les porcs, 19 ;5 % ont un niveau de prescription identique pour les 5 vétérinaires, 58,3% présentent une amplitude de 1, est 22,2% présentent un écart de réponse plus élevé avec une amplitude de 2. Pour aucune molécule l'écart de réponse est maximal. Un constat identique peut être fait sur les autres classes thérapeutiques, avec toutefois plus de nuances : aucune réponses identiques, 65,2% de réponses avec une amplitude de 1, 26% avec une amplitude de 2 et 8,8% avec une amplitude de 3.

En revanche, pour les bovins, les réponses sont beaucoup plus contrastées. En effet, pour 25% des molécules l'écart des réponses est maximal. 41% montrent une amplitude de 2 et 34% une amplitude de 1. Pour aucune molécule les réponses des vétérinaires sont identiques, qu'il s'agisse des molécules prescrites ou non.

L'homogénéité des réponses pour les élevages porcins peut en partie s'expliquer par un nombre de molécules utilisées plus restreint que pour les bovins, cela limite nécessairement les choix de

---

<sup>14</sup> Depuis le décret n° 2007-596 du 24 avril 2007, « prescription-délivrance », les vétérinaires peuvent prescrire un médicament sans avoir vu l'animal, sous réserve d'avoir préalablement réalisé un bilan sanitaire d'élevage et d'avoir établi avec l'éleveur un protocole de soins pour différentes maladies types.

traitements possibles. Cela peut résulter aussi d'un effet « filière » plus marqué chez les porcins. Cette production animale bénéficie au niveau national une filière très structurée qui peut orienter les décisions en termes de santé animale et dont les choix sont largement suivis. On retiendra par exemple le moratoire sur les céphalosporines de 3eme et 4eme génération qui a conduit à une forte baisse de l'usage de ces molécules. Tous les vétérinaires porcins ont aussi souligné les nombreux échanges qu'ils peuvent avoir au sein de leur structure ou de leur groupement professionnel. De plus la majorité des traitements en élevage porcins sont attribués de façon collective en post sevrage pour des problèmes notamment digestifs. Cela accentue probablement cette homogénéité dans l'usage des antibiotiques. En élevage bovins, les traitements sont pour beaucoup administrés individuellement.

#### *5.1.4.4 - Apports de la méthode et représentativité des résultats*

Comme indiqué dans les paragraphes précédents, les résultats qualitatifs obtenus s'inscrivent dans les grandes tendances des suivis menés au niveau national et au sein des différentes filières. Mais ils ont permis de mettre en avant des spécificités territoriales (usage des fluoroquinolones en élevage porcin) ou des spécificités d'élevage (usage plus important des céphalosporines pour les bovins lait par rapport à la filière bovine dans son ensemble). Rappelons que ces familles de molécules sont reconnues comme molécules critiques compte tenu des enjeux de santé publique dans le développement de l'antibiorésistance. Cela valide la pertinence de l'approche suivie au regard des objectifs fixés.

Cette méthode permet aussi de renseigner facilement toutes les classes thérapeutiques, ce qui permet de compléter les données concernant les antiparasitaires, les anticoccidiens, les anti-inflammatoires et les hormones, absentes des suivis nationaux. Or ces molécules par leur présence potentielle dans les milieux aquatiques peuvent contribuer à « l'effet cocktail ».

Ces enquêtes ont aussi confirmé la plus grande diversité de molécules utilisées dans la filière bovine comparativement à la filière porcine. Ceci est d'autant plus marqué pour les antiparasitaires.

#### *Représentativité des vétérinaires spécialisés bovins lait*

Lors de l'entretien, tous les vétérinaires ont indiqué que leurs réponses concernant les molécules prescrites étaient représentatives des autres vétérinaires exerçant dans leur clinique. Même si chaque vétérinaire reste libre de ses pratiques et de ses choix, les grandes tendances restent comparables au sein d'une clinique.

Chaque structure comptant un à quatre vétérinaires associés ou salariés, l'échantillon enquêté représente en tout 16 vétérinaires exerçant en bovins lait (environ 95% minimum de l'activité médecine rurale de ces cliniques). De plus, certaines cliniques sont également associées avec d'autres cliniques (non enquêtées) exerçant sur ce territoire, soit au sein d'une même structure juridique, soit au sein d'un réseau de cabinets vétérinaires, regroupement qui visent dans tous les cas à favoriser les échanges et à homogénéiser les pratiques sur la base des retours d'expérience.

Ce dernier point renforce la portée des enquêtes au-delà des cinq praticiens rencontrés.

## *Représentativité des vétérinaires spécialisés porcins*

Compte tenu de la structuration de la médecine vétérinaire pour la filière porcine, notre échantillon permet d'appréhender les deux types existants en Bretagne, à savoir les SELAS adossées à un groupement de producteurs et les cliniques libérales, spécialisées en élevage dit 'industriel' ..

Les trois SELAS rencontrées exercent en lien avec des groupements très implantés en Bretagne voire le Grand-Ouest. Elles représentent un nombre total de 21 vétérinaires accompagnant des élevages sur l'ensemble de la Bretagne. Comme précédemment, les trois vétérinaires enquêtés ont précisé que leurs réponses étaient également représentatives de leurs collègues de la SELAS.

La situation est identique pour les vétérinaires exerçant en libéral, avec un nombre total de 4 vétérinaires porcins. Les réponses au questionnaire pour la production porcine sont donc représentatives de 25 vétérinaires.

## **5.2 – Un outil d'aide à la décision pour choisir les molécules à rechercher prioritairement dans les eaux superficielles**

### **5.2.1 - Quelles molécules rechercher prioritairement sur les bassins versants étudiés ?**

Le choix des molécules à rechercher dans les eaux s'appuie sur les molécules majoritairement prescrites sur l'ensemble de productions animales présentes sur les bassins versants.

Les tableaux ci-dessous (Tableau 17 et Tableau 18 ) synthétisent l'ensemble des enquêtes et permettent de dégager des molécules majoritairement prescrites dans les élevages bovins lait, porcins et avicoles. Les molécules sont classées par famille de molécules de manière à pouvoir plus aisément identifier les principaux représentants de chacune d'entre-elles.

Ces résultats sont mis en parallèle de la liste nationale AFSSA produite en 2008 et des molécules disponibles dans les menus analytiques des deux laboratoires sollicités (LERES et LABOCEA).

Dans le contexte des bassins versants étudiés, les tétracyclines les plus prescrites sont la doxycycline et l'oxytétracycline. Cette dernière, notamment en élevage porcin, tend à être remplacée par la doxycycline et la chlortétracycline. Celle-ci va donc voir son utilisation croître dans les années à venir. La liste AFFSA n'a retenu que l'oxytétracycline.

Parmi les sulfamides, trois molécules semblent globalement prédominer : la sulfadiméthoxine, la sulfadiazine et à un niveau moindre, la sulfaméthazine. Seule cette dernière est retenue dans la liste AFSSA.

Le triméthoprime est largement prescrit dans ces deux types de production. Mais il ne figure pas dans la liste AFSSA. Dans les spécialités médicamenteuses, il est toujours associé à des sulfamides, majoritairement la sulfadiazine et la sulfadiméthoxine.

**Tableau 17 : Usage des molécules antibiotiques dans les élevages bovins lait, porcins et avicoles et identification des molécules à rechercher prioritairement dans les eaux des bassins versants étudiés en fonction des menus analytiques proposés par les laboratoires**

Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	liste nationale (AFFSA, 2008)	Molécules disponibles dans les menus analytiques	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcine	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
Tetracyclines	Chlortetracycline			3	+	2	++	0
	Doxycycline			1	+	1	+++	+
	Tetracycline			3	++	2	+	0
	Oxytetracycline			2	++	2	++	++
Sulfamides	Sulfaméthazine			3	++	2	+	0
	Sulfaméthoxypyridazine			2	++	0	0	0
	Sulfadiazine			2	+	1	++	+++
	Sulfadiméthoxine			2	++	2	++	+++
	Sulfadoxine			2	+	0	0	0
	Sulfaguamidine			3	++	0	0	0
Diaminopyrimidines	Triméthoprime			2	+++	1	++	+++
β-lactamines (céphalosporine)	Céfalexine			1	+++	0	0	0
	Céfapirine			2	+	0	0	0
	Céfquinome			3	++	1	+	0
	Ceftiofur			1	+++	1	+	0
	Céferazone			2	+	0	0	0
	Céfalonium			3	++	0	0	0
β-lactamines (pénicillines)	Amoxicilline			2	+++	2	++	+++
	Ampicilline			2	++	1	+	++
	Cloxacilline			1	+++	1	+	0
	Benzylpénicilline			2	+++	0	+	0
Macrolides	Lincomycine			1	++	1	++	0
	Spiramycine			2	++	1	++	0
	Tylosine			1	+++	2	++	++
	Tilmicosine			2	++	1	+	0
	Tulathromycine			3	+	2	+	0
	Tildiprosine			3	+	1	+	0
	Gamithromycine			3	++	0	0	0
Pleuromutilines	Tiamuline			1	+	1	+	+
Quinolones	Acide oxolinique			1	+	1	+	0
	Fluméquine			1	+	1	+	+
	fluoroquinolones Danofloxacin			2	+	0	0	0
	fluoroquinolones Enrofloxacin			2	+	1	+++	++
	fluoroquinolones Marbofloxacin			1	++	1	+++	0
Aminoglycosides	Dihydrostreptomycine			2	+++	1	++	0
	Streptomycine			3	++	1	+	0
	Apramycine			1	+	0	+	0
	Gentamicine			2	+	1	+	0
	Kanamycine			3	++	0	0	0
	Spectinomycine			1	++	1	+	0
	Néomycine			1	+++	1	++	0
Phénicolés	Florfenicol			1	++	1	++	0
Polypeptides	Colistine			1	+++	0	+++	+++
Ansamycines	Rifaximine			2	++	0	0	0



molécules sans AMM porc

molécules à rechercher dans les eaux

Le moratoire mis en place par la filière porcine sur l'utilisation des céphalosporines apparaît nettement dans ce tableau. En effet, le ceftiofur et le céfquinome peuvent être utilisés ponctuellement chez les porcins. En revanche les molécules de cette famille sont largement employées chez les bovins lait et notamment par voie intra-mammaire pour le traitement des mammites et le traitement des vaches laitières au tarissement. Parmi les molécules les plus

prescrites, on identifie la céfalexine, le céphalonium et parfois le cefquinome. Se pose alors la question du transfert des molécules dans l'organisme. Par cette voie d'administration (tube intramammaire installé dans le ou les trayons), la molécule est en effet très peu absorbée par l'organisme et son élimination se fait via le lait. La probabilité de les retrouver dans les effluents épandus paraît alors très faible. Cependant, des pratiques de l'éleveur peuvent contrecarrer cela. Pendant le délai d'attente du lait, celui-ci peut être rejeté dans la fosse ou alors être donné aux veaux. Les résidus pourront donc indirectement se retrouver dans les effluents. Seul le cefquinome est retenu dans la liste AFSSA. Précisons qu'il est la seule molécule de cette famille, avec le ceftiofur, à être aussi intégré dans des spécialités médicamenteuses injectables.

Parmi les pénicillines qui sont largement utilisées en filière bovine, l'amoxicilline présente un usage plus généralisé. Cette molécule ne figure cependant pas dans la liste AFSSA, au profit de l'ampicilline et de la benzylpénicilline. La cloxacilline exclusivement utilisée chez les bovins, n'est disponible qu'en intramammaire pour les vaches laitières.

Dans la famille des macrolides, trois molécules semblent principalement prescrites dans les deux types de productions. Il s'agit de la spiramycine, de la lincomycine et de la tylosine, ces deux dernières étant retenues dans la liste AFSSA.

Les fluoroquinolones reconnues comme molécules critiques dans le développement de l'antibiorésistance, sont largement prescrites sur le territoire avec notamment la marbofloxacin et l'enrofloxacin. Or ces molécules ne sont pas présentes dans la liste nationale, où seule figure la danofloxacin qui n'est quasiment pas utilisée d'après les enquêtes, quel que soit le type d'élevage.

Pour les aminosides, la néomycine et la dihydrostreptomycine sont les molécules les plus fréquemment utilisées et de façon plus modérée, on identifie la spectinomycine et la streptomycine mais cette dernière a un usage très contrasté (amplitude 3). Le seul représentant dans la liste AFSSA est la dihydrostreptomycine.

Le florfenicol, dont l'usage d'après les enquêtes, ira croissant en remplacement des molécules critiques, est déjà bien prescrit et il est identifié par la liste AFSSA.

Enfin la colistine est une molécule très prescrite dans toutes les productions, clairement majoritaires dans les productions porcines et avicoles et elle figure également dans la liste nationale.

D'après les résultats des enquêtes menées dans REMEDES, 24 molécules antibiotiques sont moyennement à beaucoup prescrites sur les bassins versants étudiés, toutes productions animales confondues. Certaines molécules n'ont pas été retenues comme prioritaire en fonction notamment de leur forte variabilité du niveau de prescriptions (ex : le céphalonium) et/ou de leur usage très spécifique (ex : rifaximine, un seul intramammaire à destination des vaches laitières).

Le tableau ci-dessous fait le bilan des molécules non-antibiotiques

**Tableau 18 : Usage des molécules non-antibiotiques dans les élevages bovins et porcins et identification des molécules à rechercher prioritairement dans les eaux des bassins versants étudiés en fonction des menus analytiques proposés par les laboratoires.**

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	liste nationale (AFSSA, 2008)	Molécules disponibles dans les menus analytiques	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcine	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair	
<b>Antiparasitaires</b>	Pyrimidine	Dicyclanil			0	0	0	0	0	
	Imidazothiazoles	Lévamisole			1	+	1	+++	+++	
	Avermectines	Doramectine				3	+	0	0	0
		Ivermectine				1	++	1	++	0
		Eprinomectine				1	+++	0	0	0
		Moxidectine				3	++	0	0	0
	Benzimidazole	Albendazole				3	++	0	0	0
		Fenbendazole				2	++	1	++	0
		Flubendazole				3	+	1	+++	+
		Oxibendazole				3	++	1	++	0
	Organophosphoré	Phoxim				1	+	2	+	0
		Pipérazine				1	+	0	0	+
Amitraz					1	+	2	++	0	
Deltaméthrine					1	+++	0	0	0	
<b>Anticoccidiens</b>		Monensin			1	+	0	0	+++	
		Decoquinat			2	++	1	+	0	
		Diclarzuril			1	+++	0	0	+	
		Toltrazuril			3	++	2	+++	++	

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	liste nationale (AFSSA, 2008)	Molécules disponibles dans les menus analytiques	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcine	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
<b>AINS</b>		Flunixin			2	++	1	++	0
		Acide acétylsalicylique			1	+	1	+++	+
		Paracétamol			0	0	1	+++	0
	Oxicam	Meloxicam			2	+++	2	++	0
		Acide tolfénamique			2	+	0	0	0
		Ketoprofène			1	+	2	++	0
<b>Corticoïde stéroïdien</b>	corticoïde	Dexaméthazone			2	++	1	+++	0

Classes thérapeutiques	Famille (ref : med/vet 2014)	Molécules	liste nationale (AFSSA, 2008)	Molécules disponibles dans les menus analytiques	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Amplitude	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcine	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage volaille de chair
<b>Hormones</b>		Altrénogest			2	+	0	+++	
		Dinoprost			2	++	0	+++	
		Cloprosténol			1	+++	1	++	
		Alphaprostol			2	+	1	++	
		PMSG			2	++	0	++	
		HCG			1	+	0	+	
		Sérotinine			2	+	0	++	
		Oxytocine			1	++	0	++	
		Busérelène			2	++	0	0	
		Progestérone			1	+	0	+	
		Norgestomet			2	+	0	0	

molécule sans AMM pour la production animale

molécule à rechercher dans les eaux

Aucune des grandes familles d'antiparasitaires n'est représentée dans la liste nationale AFSSA, pourtant les benzimidazoles et les avermectines semblent largement prescrits, même si ces derniers paraissent plus spécifiques des élevages bovins. En dehors du lévamisole, il apparaît nettement l'inadéquation de la liste nationale AFSSA avec les molécules effectivement utilisées sur les territoires étudiés.

Les anticoccidiens majoritairement prescrits sont le toltrazuril, le diclarzuril et le décoquinate. Cette dernière molécule est administrée dans l'alimentation chez les jeunes veaux pendant plusieurs semaines.

Les anti-inflammatoires sont largement utilisés dans la filière porcine à l'exception de l'acide tolfénamique. Dans la filière bovine, les usages semblent plus contrastés. Le seul anti-inflammatoire utilisé dans la filière volaille et l'acide acétylsalicylique.

Seule l'hormone altrénogest est représentée au niveau national mais les enquêtes mettent en avant d'autres hormones qui semblent largement prescrites. On retiendra notamment le dinoprost et le chloprosténol puis l'hormone PMSG et l'oxytocine.

La liste AFSSA (Annexe 1) intègre d'autres antiparasitaires ou anti-coccidiens mais ils ne figurent pas dans ce tableau soit parce que leur usage est exclusivement réservé à d'autres espèces cibles, soit parce que les vétérinaires ne les ont pas mentionnés lors de l'entretien. Pour les anticoccidiens, il s'agit de la semduramicine, du narasin, de la maduramicine et de l'Amprolium. Cette dernière molécule est utilisée exclusivement chez les volailles. Le vétérinaire enquêté dans le cadre de REMEDES a toutefois indiqué un usage « ++ » pour cette molécule. Mais, elle n'a pas été prise en compte ici, compte tenu de la faible présence de cette production sur les bassins versants étudiés. Pour les antiparasitaires, il s'agit i) du métrifonate qui n'est plus utilisé dans aucun médicament, ii) du parconazole à destination exclusive des pintades et iii) du clorzulon qui est uniquement destiné aux bovins. Ce dernier est toujours associé à l'ivermectine dans les spécialités disponibles mais il n'a jamais été cité par les vétérinaires. Son usage est probablement contraint chez les bovins lait par un temps d'attente du lait très important. Et les traitements utilisant l'ivermectine s'orientent probablement sur des médicaments n'intégrant pas cette molécule.

Les laboratoires d'analyses LERES et LABOCEA proposent des listes de molécules à analyser, en ciblant spécifiquement pour certaines, un usage vétérinaire, le plus grand choix reste toutefois pour les molécules à usage humain. Le caractère mixte de certaines molécules utilisées en élevage permet ainsi d'élargir le choix de molécules disponibles.

Les enquêtes ainsi que les molécules disponibles dans les menus analytiques proposés par les laboratoires d'analyse retenus ont conduits à rechercher 26 molécules d'origine vétérinaire dans les eaux et non exclusivement des antibiotiques (Tableau 17 et Tableau 18).

Certaines molécules figurent dans ce tableau car elles sont proposées d'emblée dans les menus analytiques mais ne sont pas ou plus utilisées dans les élevages concernés (cas du dicyclanil).

Ces enquêtes menées sur l'usage des molécules antibiotiques ou appartenant à d'autres classes thérapeutiques en contexte d'élevage intensif et spécialisé, montrent que l'utilisation de données nationales ne s'avère pas pertinente et que l'utilisation préférentielle de certaines molécules peut être influencée par des spécificités de territoire ou d'élevage.

L'approche suivie dans REMEDES permet, de façon simple, d'identifier un niveau de prescription relatif des différentes molécules, de mettre ainsi en avant des molécules utilisées ou non et donc d'orienter les choix à faire par les laboratoires d'analyse pour établir des menus analytiques les plus complets et pertinents possibles. L'importance devient d'autant plus grande lorsqu'il s'agit de molécules critiques.

Cet indicateur du niveau de prescription représente un indicateur de pression vis-à-vis de l'environnement, au même titre que peut l'être le volume des ventes annuelles. Mais il ne préjuge en rien de la présence effectivement des molécules dans les cours d'eau. Le devenir de ces molécules va être influencé : par les voies d'administration des médicaments et les modalités d'élimination par l'organisme (avec notamment la métabolisation), la demi-vie des molécules, la durée écoulée entre l'administration du traitement et l'épandage sur les parcelles (donc l'influence de la saisonnalité des traitements en lien avec la demi-vie des molécules), les conditions de stockage des effluents, etc. A cela s'ajouteront aussi l'ensemble des facteurs influençant les conditions de transferts vers les cours d'eau.

### 5.2.2 - De nouvelles molécules à prendre en compte pour adapter les menus analytiques aux contextes d'élevage des territoires

Plusieurs molécules sont majoritairement prescrites sur les bassins versants et ne sont pas disponibles dans les listes des deux laboratoires. Il s'agit principalement des molécules antibiotiques suivantes :

- la colistine très majoritairement utilisée dans tous les élevages ;
- la néomycine ;
- la sulfadiméthoxine ;
- la chlortétracycline qui tend à remplacer l'oxytétracycline ;
- la spectinomycine ;
- le cefquinome ;
- la céfalexine ;
- la cloxaciline.

Pour les molécules non antibiotiques, le déficit de molécules disponibles est plus important. Or plusieurs d'entre elles montrent un usage généralisé. Il s'agit notamment :

- pour les antiparasitaires, des trois principaux représentants de la famille des benzimidazoles (fenbendazole, flubendazole et oxybendazole), de l'amebazine. La deltaméthrine est très prescrite chez les bovins mais elle est aussi utilisée en tant qu'insecticide pour grandes cultures. De ce fait elle est déjà intégrée dans des menus analytiques ciblant les molécules phytopharmaceutiques.
- pour les anticoccidiens, du torgrazuril, du diclazuril et du décoquinate ;

- pour les anti-inflammatoires, du méloxicam et de la dexamétazone ;
- pour les hormones, du coprostérol, du dinoprost, de l'hormone PMSG et de l'oxytocine.

La colistine apparaît comme l'une des molécules les plus prescrites en médecine vétérinaire. Mais, pour des contraintes analytiques (molécule de grande taille), elle n'est pas intégrée dans les méthodes multi-résidus.

D'autres critères peuvent conduire à prendre en compte ou non ces molécules. Par exemple, l'usage exclusivement en intramammaire de la cefalexine et de la cloxaciline diminue considérablement leur passage dans l'organisme et donc leur présence potentielle dans les effluents d'élevage.

## **5.3 - Les transferts sur le bassin versant de Kervidy Naizin**

### **5.3.1 - Occurrence des résidus de médicaments sur le BV de Kervidy-Naizin lors des prélèvements ponctuels**

#### ***5.3.1.1 - Quelles molécules sont quantifiées ?***

Les résultats obtenus sur 9 campagnes de prélèvements ponctuels réalisées sur trois points du BV et sur la période du 14/03/2013 au 16/12/2014 figurent en Annexe 4.

14 molécules ont été quantifiées sur les 30 recherchées (Tableau 19).

Tableau 19 : Fréquence de quantification et niveaux de concentration pour les 14 molécules quantifiées lors des prélèvements ponctuels sur le BV de Kervidy-Naizin

Molécule (usage : bovin, porcin, volaille, humain)	n (fréquence)	% de quantification	moyenne des concentrations (en ng/L)	concentration maxi (en ng/L)
triméthoprime (B/P/V/H)	4/9	44%	12	20
Oxytétracycline (B/P/V/H)	9/22	41%	86	170
Enrofloxacin (B/P/V)	9/22	41%	22	50
Levamisole ((B/P/V/H)	1/3	33%	10	13
Eprinomectine (B)	6/22	27%	358	950
Spiramycine (B/P/V/H)	3/22	14%	245	550
Lincomycine (B/P/V/H)	'3/21	14%	7	10
sulfaméthazine (B/P/V)	3/22	14%	1	1
Doxycycline (B/P/V/H)	1/9	11%	37	37
Flumequine (B/P/V/H)	1/9	11%	1	1
Marbofloxacin (B/P)	2/22	9%	18	20
Ivermectine (B/P/H)	1/22	5%	1800	1800
Flunixin (B/P)	1/22	5%	20	20
Tylosine (B/P/V/H)	1/21	5%	11	11

Globalement, les fréquences s'échelonnent de 5 à 44% sur le BV de Kervidy. .

Les trois molécules les plus fréquemment quantifiées sont 3 antibiotiques : le **triméthoprime** (44%), l'**oxytétracycline** (41%) et l'**enrofloxacin** (41%), cette dernière étant reconnue comme une molécule critique vis-à-vis de l'antibiorésistance. Deux anti-parasitaires, le **lévamisole** et l'**éprinomectine** sont quantifiés avec des fréquences de 33 et 17% respectivement. Les autres molécules ont des fréquences inférieures à 15%. Compte tenu des variations dans la liste de molécules recherchées au fil des campagnes, ces pourcentages de quantification sont relatifs à un nombre total d'échantillons allant de 3 à 22 (voir la fréquence « n »).

Sur les 25 échantillons prélevés pour l'étude des résidus médicamenteux, 16 molécules n'ont jamais été quantifiées :

- 9 molécules antibiotiques : la tétracycline, la sulfadiazine, le ceftiofur, l'amoxicilline, l'ampicilline, la benzylpénicilline, la danofloxacin, et le florfenicol ;
- 4 antiparasitaires et anticoccidiens : le dicyclanil, le métrifonate, le monensin et le kétoprofène ;
- 1 hormone : l'altrénogest ;
- les 3 molécules à usage exclusivement humain : la carbamazépine, l'époxycarbamazépine, et le diclofénac.

28% des échantillons ne présentent aucun résidu de médicaments. Et aucune molécule à usage exclusivement humain n'est quantifiée.

### *5.3.1.2 - Les niveaux de concentrations observés*

Sur l'ensemble des 25 échantillons, les concentrations individuelles varient de 1 à 1800 ng/L (Annexe 4). Pour 4 molécules, les concentrations maximales dépassent les 100 ng/L (Tableau 19). Ainsi, deux antibiotiques et deux anti-parasitaires montrent des concentrations moyennes et maximales élevées :

- la **spiramycine** (245 et 550 ng/L respectivement) et l'**oxytétracycline** (86 et 170 ng/L respectivement) ;
- l'**ivermectine** (1800 ng/L quantifiés une fois) et l'**éprinomectine** (358 et 950 ng/L respectivement).

Parmi ces 4 molécules, seule l'**oxytétracycline** a une fréquence de quantification de 41%, les autres sont plus faibles.

Les teneurs cumulées pour l'ensemble des molécules quantifiées varient de 7 à 3178 ng/L (soit 3,178 µg/L) (Annexe 4). 24% des 25 échantillons montrent des teneurs cumulées >100 ng/L et 12% des teneurs cumulées >500 ng/L.

Si on ne prend en compte que les teneurs cumulées des ATB utilisés en médecine vétérinaire, les valeurs sont plus faibles, ainsi 20% des échantillons ont des teneurs cumulées >100 ng/L et seulement 4% des échantillons ont des teneurs cumulées > 500 ng/L.

### *5.3.1.3 - Des sous-bassins versants avec des niveaux de contaminations contrastés*

Le tableau suivant (Tableau 20) présente les concentrations des molécules quantifiées dans tous les échantillons prélevés manuellement aux trois points de prélèvements suivis sur le BV de Kervidy-Naizin.

**Tableau 20 : Concentrations observées pour les principales molécules du bassin versant de Naizin sur les points 1, 2 et 3**

	Oxytétracycline (B/P/V/H)	Doxycycline (B/P/V/H)	sulfaméthazine (B/P/V)	triméthoprime (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Flumequine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacine (B/P)	Levamisole (B/P/V/H)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	
<b>1 Kervidy Exu</b>	14/03/2013	/	/	<5	/	<5	/	<5	/	/	<5	/	/	/	
	09/04/2013	170	/	/	/	/	<50	/	10	<10	/	<100	<50	<10	
	27/05/2013	<50	/	<10	/	/	<50	/	<10	<10	/	<100	<50	<10	
	06/11/2013	100	/	<5	/	8	<100	11	10	<10	<5	<500	100	<10	
	10/12/2013	10	/	<1	/	<1	550	<1	50	20	/	<500	120	<10	
	07/01/2013	<5	/	<1	/	10	<100	<1	10	<10	/	<500	<100	20	
	04/11/2014	19	<30	<1	9	<1	<50	<1	<1	<10	/	<100	<50	<10	
	25/11/2014	11	37	<1	1	<1	<50	<1	1	<10	/	<100	<50	<10	
	16/12/2014	<5	<20	1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	/	<100	<50	<10	
	n (fréquence)	5/8	1/3	1/8	2/3	2/7	1/8	1/7	1/3	3/8	1/8	0/2	0/8	2/8	1/8
	%quantification	63%	33%	13%	67%	29%	13%	14%	33%	38%	13%	0%	0%	25%	13%
	moyenne des concentrations	62	37	1	5	9	550	11	1	23	20	<LQ	<LQ	110	20
	concentration maxi	170	37	1	9	10	550	11	1	50	20			120	20
	moyenne des concentrations du 6/11/2014 au 16/12/2014	35	37	1	5	9	550	11	1	30	20	<LQ	<LQ	110	20
<b>2 Mercy</b>	14/03/2013	/	/	<5	/	<5	/	/	15	<10	<5	/	50	<10	
	09/04/2013	<50	/	/	/	/	<50	<5	/	/	/	<100		<10	
	27/05/2013														
	06/11/2013	<5	/	<5	/	<5	<100	<5	25	<10	<5	<500	630	<10	
	10/12/2013	6	/	<1	/	<1	<100	<1	<10	<10	/	<500	<100	<10	
	07/01/2013	<5	/	<1	/	2	<100	<1	15	<10	/	<500	<100	<10	
	04/11/2014	<5	<30	<1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	/	<100	<50	<10	
	25/11/2014	<5	<20	<1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	/	<100	<50	<10	
	16/12/2014	<5	<20	<1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	/	<100	<50	<10	
	n (fréquence)	1/7	0/3	0/8	0/3	1/7	0/7	0/7	0/3	3/7	0/7	0/2	0/7	2/7	0/7
	%quantification	14%	0%	0%	0%	14%	0%	0%	0%	43%	0%	0%	0%	29%	0%
	moyenne des concentrations	6	<LQ	<LQ	<LQ	2	<LQ	<LQ	<LQ	18	<LQ	<LQ	<LQ	340	<LQ
	concentration maxi	6				2				25				630	
	moyenne des concentrations du 6/11/2014 au 16/12/2014	6	<LQ	<LQ	<LQ	2	<LQ	<LQ	<LQ	20	<LQ	<LQ	<LQ	630	<LQ
<b>3 Gueriniec</b>	14/03/2013	/	/	<5	/	<5	/	<10	/	/	7	/	/	/	
	09/04/2013	<50	/	/	/	/	65	/	15	<10	/	<100	<50	<10	
	27/05/2013														
	06/11/2013	380	/	<5	/	<5	<100	<5	35	<10	13	1800	950	<10	
	10/12/2013	30	/	<1	/	<1	<100	<1	<10	<10	/	<500	<100	<10	
	07/01/2013	<5	/	<1	/	<1	<100	<1	<10	<10	/	<500	<100	<10	
	04/11/2014	<5	<30	<1	20	<1	<50	<1	<1	<10	<10	<100	<50	<10	
	25/11/2014	46	<20	1	16	<1	120	<1	<1	25	15	/	<100	300	<10
	16/12/2014	<5	<20	1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	/	<100	<50	<10	
	n (fréquence)	3/7	0/3	2/7	2/3	0	2/7	0/7	0/3	3/7	1/7	1/2	1/7	2/7	0/7
	%quantification	43%	0%	29%	67%	0%	29%	0%	0%	43%	14%	50%	14%	29%	0%
	moyenne des concentrations	152	<LQ	1	18	<LQ	93	<LQ	<LQ	25	15	7	1800	625	<LQ
	concentration maxi	380		1	20		120			35	15	7	1800	950	
	moyenne des concentrations du 6/11/2014 au 16/12/2014	152	<LQ	1	18	<LQ	120	<LQ	<LQ	30	15	13	1800	625	<LQ

A l'exutoire (point 1), 12 molécules différentes ont pu être quantifiées, avec des pourcentages de quantification variant de 13 à 67%, mais 7 molécules n'ont été quantifiées qu'une seule fois et souvent avec des concentrations proches des limites de quantification. Seule l'oxytétracycline est nettement récurrente en ce point. Le triméthoprime semble aussi présent avec une fréquence de 67% mais il n'a été recherché que trois fois.

Le sous-BV du Mercy (point 2) paraît nettement moins contaminé. Seules 4 molécules ont été quantifiées. Les fréquences sont faibles. L'enrofloxacin est quantifiée dans 43% des échantillons mais les concentrations restent faibles, proches des limites de quantification.

Le sous-bassin versant de Gueriniec (point 3) présente une situation de contamination intermédiaire, avec 9 molécules quantifiées, dont 7 sont communes avec l'exutoire mais pas toujours aux mêmes dates. La présence de 3 antibiotiques communs semble confirmée : l'oxytétracycline, le triméthoprime et l'enrofloxacin. Les concentrations moyennes sont sensiblement supérieures sur Gueriniec.

Trois antiparasitaires sont présents sur Gueriniec : le lévamisole (non quantifié sur les deux autres points), l'ivermectine mesurée une seule fois à 1800 ng/L et l'éprinomectine (300 ng/L et 950 ng/L). Seule l'éprinomectine est retrouvée à l'exutoire mais avec une seule date commune entre ces deux points.

Le sous-BV de Gueriniec semble plus contribuer au niveau de contamination de l'exutoire par les RM que le sous-BV du Mercy.

Si les molécules retrouvées à l'exutoire sur l'ensemble des prélèvements semblent refléter les molécules identifiées à l'amont, il n'y a pas de relation systématique au cours d'une même campagne. Certaines molécules présentes à l'amont ne vont pas se retrouver à l'aval pour une date donnée (ex : l'ivermectine sur Gueriniec le 6/11/2013, l'enrofloxacin le 25/11/2014). Ou alors la spiramycine dont la présence est quantifiée à l'exutoire le 10/12 mais non à l'amont, alors que le 9/04/14 et le 25/11/2013 elle est quantifiée sur Gueriniec (point 3) et non à l'aval.

### 5.3.2 - Occurrence des molécules lors des épisodes de crues (préleveur automatiques), comparaison avec les prélèvements ponctuels

Au total, quatorze molécules ont été quantifiées dans les échantillons prélevés lors des crues (Tableau 21).

**Tableau 21 : Fréquence de quantification et niveau de concentration pour les 14 molécules quantifiées lors des prélèvements en crue sur le BV de Kervidy-Naizin, comparaison avec les prélèvements ponctuels**

Molécule (usage : bovin, porcin, volaille, humain)	n (fréquence)	% de quantification	moyenne des concentrations (en ng/L)	concentration maxi (en ng/L)	% de quantification en ponctuel	moyenne des concentrations (en ng/L)	concentration maxi (en ng/L)
triméthoprime (B/P/V/H)	4/7	57%	35	69	44%	12	20
Oxytétracycline (B/P/V/H)	13/26	50%	69	226	41%	86	170
Enrofloxacin (B/P/V)	11/26	42%	21	60	41%	22	50
Lincomycine (B/P/V/H)	7/18	39%	24	106	14%	7	10
Eprinomectine (B)	8/26	31%	415	890	27%	358	950
Tylosine (B/P/V/H)	3/18	17%	45	115	5%	11	11
sulfadiazine (B/P/V/H)	4/26	15%	24	30	0%	<LQ	<LQ
Ivermectine (B/P/H)	4/26	15%	1010	1400	5%	1800	1800
Spiramycine (B/P/V/H)	3/26	12%	213	290	14%	245	550
Flunixin (B/P)	3/26	12%	10	10	5%	20	20
Ketoprofène (B/P/H)	3/26	12%	23	25	0%	<LQ	<LQ
Ampicilline (B/P/V/H)	2/26	8%	922	1609	0%	<LQ	<LQ
Marbofloxacin (B/P)	2/26	8%	15	20	9%	18	20
Ceftiofur (B/P)	1/26	4%	20	20	0%	<LQ	<LQ

Les colonnes grisées correspondent aux données obtenues dans les échantillons prélevés ponctuellement.

Les trois molécules les plus fréquemment retrouvées sont le **triméthoprime**, l'**oxytétracycline** et l'**enrofloxacin**, avec des pourcentages de quantification de 57 à 42%. Ces molécules sont les mêmes que celles retrouvées lors des prélèvements ponctuels et les pourcentages sont comparables. Les concentrations moyennes et maxi sont également du même ordre de grandeur dans les deux modes de prélèvement.

La **lincomycine** et **l'éprinomectine** sont quantifiées dans 39 et 31% des échantillons, respectivement. Là aussi, les résultats sont comparables entre les deux modes de prélèvements.

Quatre nouvelles molécules sont quantifiées lors des épisodes de crue, par rapport aux prélèvements ponctuels, i) 3 antibiotiques : la sulfadiazine, l'ampicilline et le ceftiofur et ii) un anti-inflammatoire : le kétoprofène. Mais ces molécules ne sont quantifiées que ponctuellement (faibles % de quantification).

En revanche, quatre molécules quantifiées lors des prélèvements ponctuels ne sont pas retrouvées ici. Il s'agit de i) de 3 antibiotiques : la doxycycline, la sulfaméthazine, la fluméquine et ii) un anti-parasitaire : le levamisole. Mais là aussi, ces molécules ne sont quantifiées que très ponctuellement (une à trois fois).

En résumé, les 15 molécules suivantes n'ont jamais été quantifiées dans les échantillons prélevés lors des crues.

- 9 molécules antibiotiques : la tétracycline, la doxycycline, la sulfaméthazine, l'amoxicilline, la benzylpénicilline, la fluméquine, la danofloxacin, et le florfenicol ;
- 4 antiparasitaires et anticoccidiens : le dicyclanil, le métrifonate, et le monensin ;
- 1 hormone : l'altrénogest ;
- les 3 molécules à usage exclusivement humain : la carbamazépine, l'époxy-carbamazépine, et le diclofénac.

Sur l'ensemble des 26 échantillons prélevés lors des crues, les concentrations individuelles varient de 6 à 1609 ng/L (Annexe 5). Pour 5 molécules, les concentrations maximales dépassent les 200 ng/L (Tableau 21). Ainsi, trois antibiotiques et deux anti-parasitaires montrent des concentrations moyennes et maximales élevées :

- la **spiramycine** (210 et 290 ng/L respectivement), **l'oxytétracycline** (69 et 226 ng/L respectivement) et **l'ampicilline** (922 et 1609 ng/L) ;
- **l'ivermectine** (1010 et 1400 ng/L) et **l'éprinomectine** (415 et 89 ng/L respectivement).

Parmi ces 5 molécules, seules **l'oxytétracycline** et **l'éprinomectine** ont une fréquence de quantification assez élevée, respectivement 50 et 31%. Les autres sont quantifiées plus ponctuellement.

A l'exception de l'ampicilline, les teneurs pour les quatre autres molécules sont similaires à celles observées lors des prélèvements ponctuels.

### 5.3.3 - Comparaison des teneurs cumulées à l'exutoire en crue et lors des prélèvements ponctuels

La comparaison des prélèvements en crue et hors crue à l'exutoire (Figure 17 et Figure 18) montre que sur l'année 2014 les teneurs cumulées les plus élevées sont obtenues lors des épisodes de crues.

En revanche, toutes les crues ne sont pas chargées de la même façon. Ainsi les crues du 7 janvier et du 3 avril présentent des concentrations nettement moins fortes que celles du 2 avril ou du 23 novembre. Et pour le 7 janvier, les concentrations obtenues juste avant la crue (P\_janvier2014) en prélèvement ponctuel et pendant la crue sont du même ordre de grandeur.

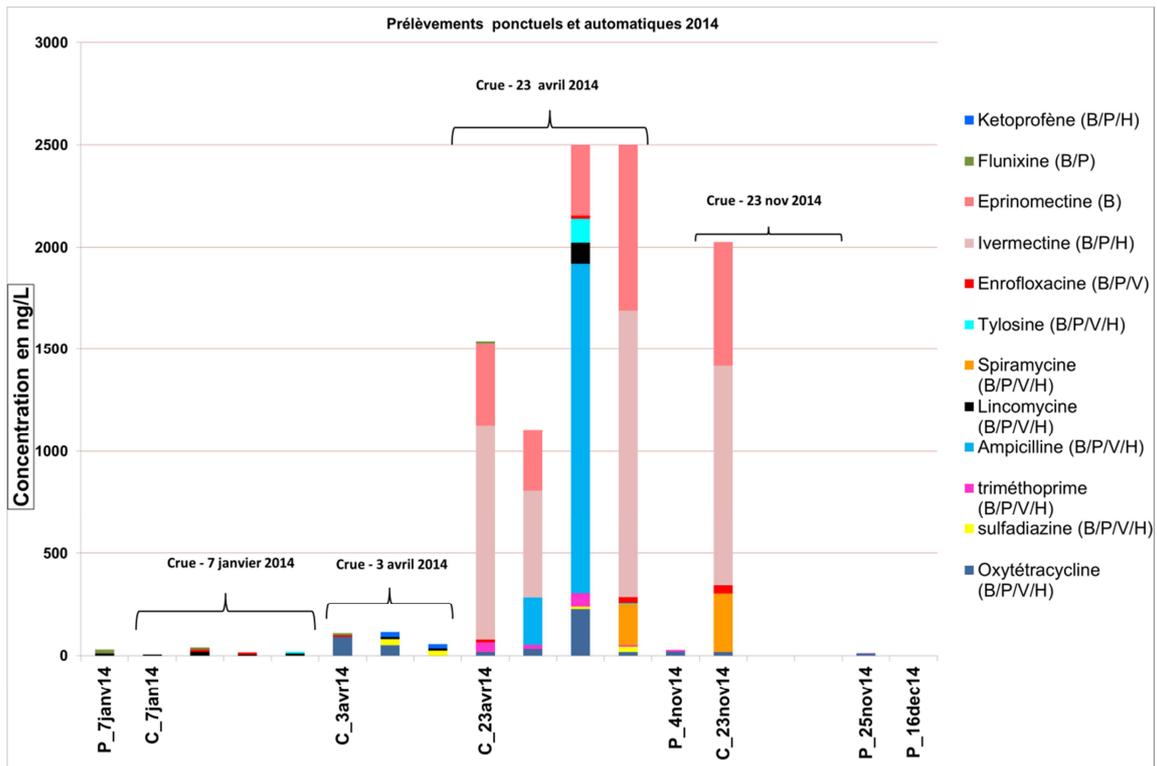


Figure 17 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P\_date) et les prélèvements en crue (C\_date) pour l'année 2014

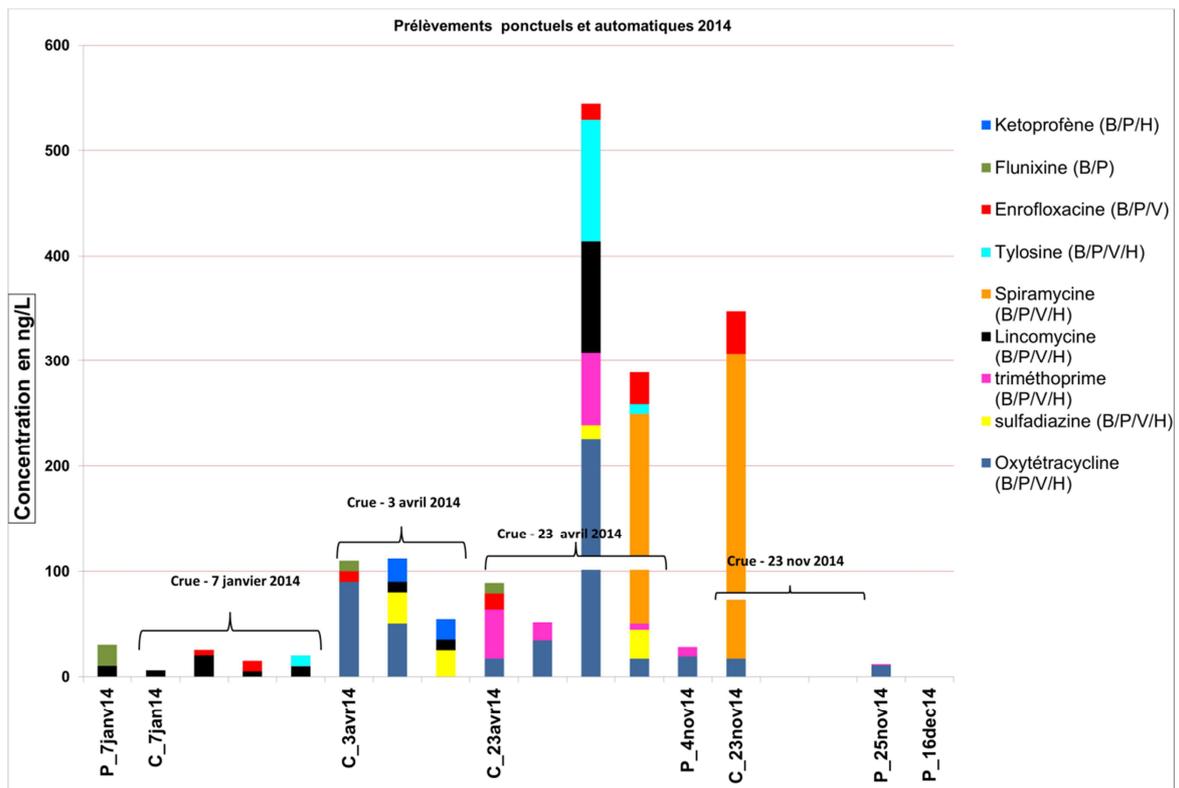


Figure 18 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P\_date) et les prélèvements en crue (C\_date) pour l'année 2014 – (l'éprinomectine, l'ivermectine et l'ampicilline ont été supprimées afin d'améliorer la lisibilité du graphique)

Les concentrations élevées obtenues lors des crues résultent pour beaucoup de teneurs élevées en antiparasitaires (ivermectine, éprinomectine). Pour un des points de la crue du 23 avril 2014, c'est également l'antibiotique ampicilline qui est quantifié à plus de 1500 ng/L.

La variabilité temporelle des concentrations est importante au cours de la crue. Pour la crue du 23 avril les concentrations cumulées restent élevées, mais ce ne sont pas toujours les mêmes molécules quantifiées. Et pour la crue du 23 novembre 2014, les concentrations cumulées sont élevées sur le premier point de prélèvement avant le pic de crue, puis aucune molécule n'est ensuite quantifiée sur les deux autres points.

Sur l'année 2013 (Figure 19), la différence entre les prélèvements automatiques en crue et les prélèvements ponctuels est moins nette. Le prélèvement ponctuel du 9 avril a été effectué en période pluvieuse juste en début de crue. La crue qui a suivie a été échantillonnée mais les molécules quantifiées ne sont pas les mêmes.

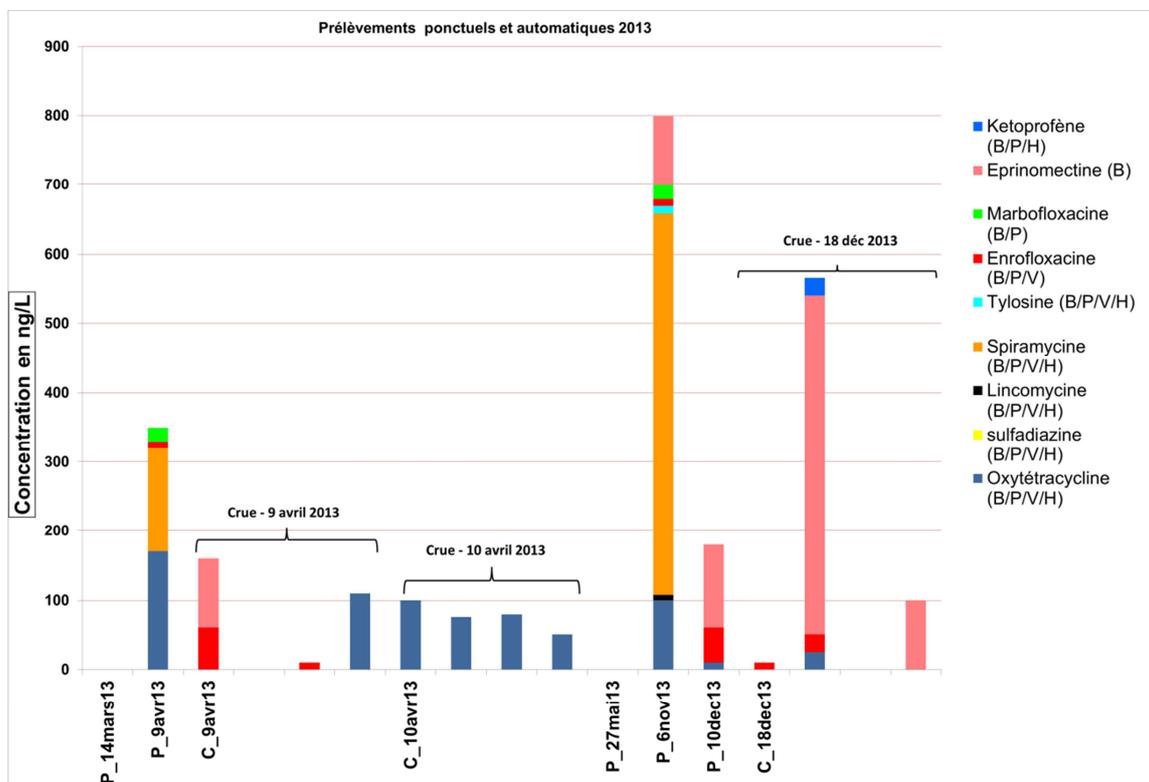


Figure 19 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P\_date) et les prélèvements en crue (C\_date) pour l'année 2013

Enfin, dans la majorité des cas, plusieurs molécules vont être quantifiées au cours d'une crue. Toutefois, la crue du 10 avril 2013 ne montre qu'une seule molécule qui sort sur tous les échantillons, l'oxytétracycline.

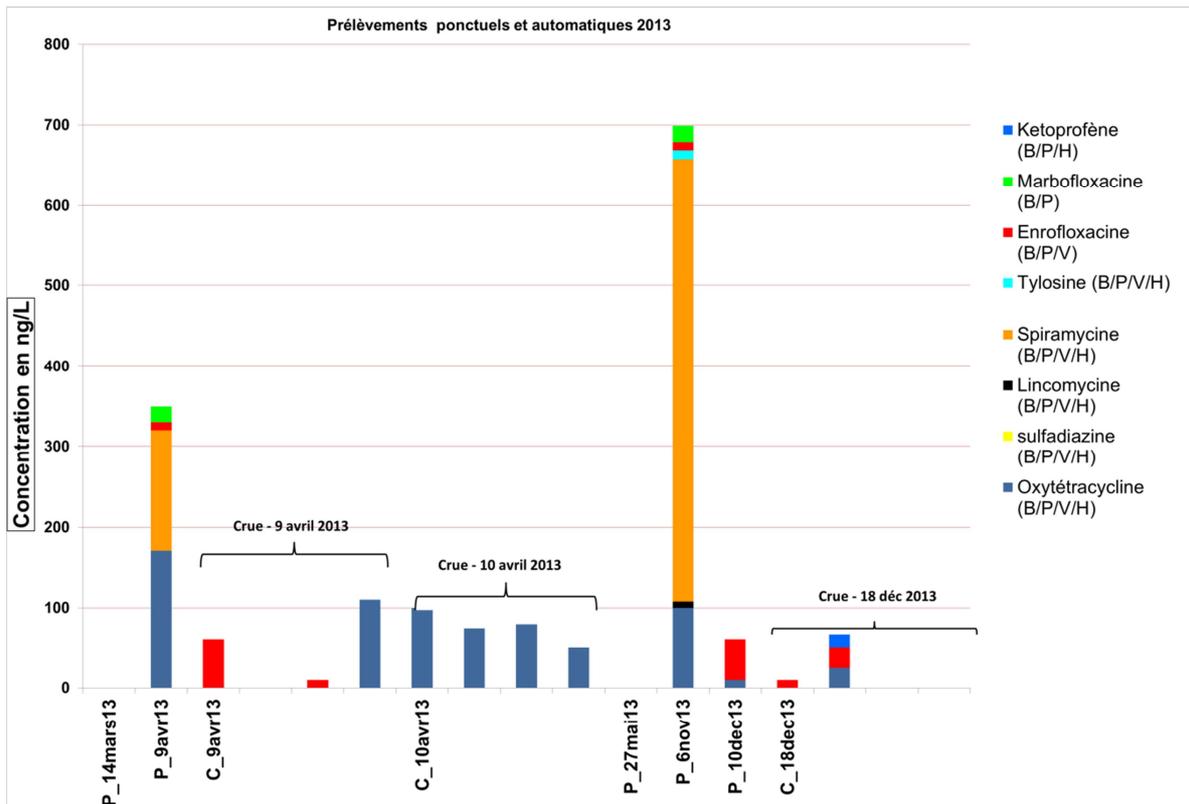


Figure 20 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P\_date) et les prélèvements en crue (C\_date) pour l'année 2013 – (l'éprinomectine a été supprimée afin d'améliorer la lisibilité du graphique)

L'absence de molécule quantifiée, s'observe aussi bien sur des points prélevés ponctuellement (14/0313, 27/05/13, 16/12/14) que sur des points en crue (9/04/13, 18/12/14, 23/11/14).

L'analyse des données sur les deux années doit toutefois tenir compte de l'intégration progressive de nouvelles molécules analysées dans les échantillons. Ainsi, parmi les molécules les plus fréquemment quantifiées, la lincomycine, comme l'ampicilline ont été recherchées à partir de novembre 2013 et le triméthoprime à partir du 23 avril 2014.

Tout cela témoigne d'une grande irrégularité en termes de concentration et/ou de molécules présentes, entre les différents prélèvements et les différents épisodes de crues, mais également au sein d'un même épisode de crue.

Sur Naizin, l'analyse globale des échantillons obtenus par prélèvement automatique lors des crues ou par prélèvements ponctuels sur différents points du bassin versant, montre i) la présence récurrente de 5 molécules ayant des % de quantification assez élevés et des niveaux de concentrations comparables et parfois élevés : le **triméthoprime**, **l'oxytétracycline**, **l'enrofloxacin**, la **lincomycine** et **l'éprinomectine**, ii) 3 molécules ayant des concentrations élevées mais qui ne sont quantifiées que ponctuellement : la **spiramycine**, **l'ampicilline** et **l'ivermectine**, dont les concentrations peuvent dépasser le µg/L pour ces deux dernières.

On retiendra la présence sur la bassin versant de molécules critiques, reconnues comme telles en raison de leur sensibilité vis-à-vis de l'antibiorésistance : le **ceftiofur**, la **marbofloxacine** et **l'enrofloxacin**. Seule cette dernière présente un pourcentage de quantification supérieur à 40% ce qui confirme sa présence sur le bassin versant. Ses concentrations restent toutefois inférieures à 60 ng/L.

L'analyse comparée des teneurs cumulées montre que les plus fortes valeurs sont obtenues en crue, notamment en 2014. Mais toutes les crues ne présentent pas des teneurs cumulées élevées. Ces concentrations élevées sont fréquemment liées à la présence des antiparasitaires (ivermectine et éprinomectine) qui sont quantifiés aussi bien en avril qu'en novembre.

Quant aux molécules présentes, il existe une grande variabilité entre les crues, mais également au sein d'une crue.

Aucune molécule à usage exclusivement humain n'est quantifiée sur Naizin.

### 5.3.4 - La contamination fécale sur le bassin versant Kervidy Naizin

#### 5.3.4.1- Niveau de contamination lors des crues et en prélèvement ponctuel

Les teneurs en *E. coli* et entérocoques sur les trois points de prélèvements sont comprises entre  $10^2$  et  $1 \cdot 10^5$  CFU/100 ml (Figure 21). Les concentrations sont plus importantes lors des crues échantillonnées par le préleveur. Mais certaines campagnes de prélèvement ponctuel montrent des valeurs proches de  $1 \cdot 10^4$  CFU/100 ml.

Ces concentrations sont dans les mêmes ordres de grandeurs que celle mesurées sur d'autres bassins versants bretons (Derrien et al., 2012). Les teneurs en *E. coli* dans de l'eau de ruissellement après épandage de lisier de porc sont comprises entre  $10^5$  à  $10^4$  CFU/100 ml, de  $10^5$  après apport de fumier et entre 10 et  $10^2$  CFU/100 ml sur des sols sans apport d'effluents d'élevage (Jaffrézic et al., 2011).

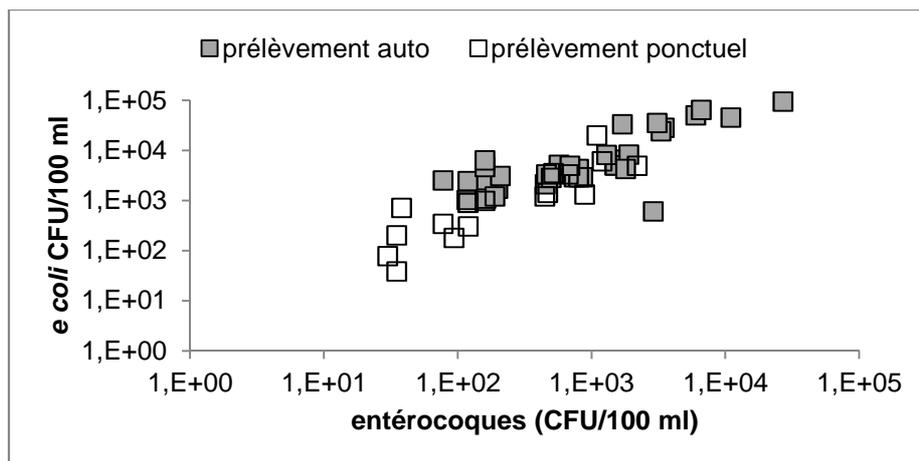


Figure 21 : Teneurs en *E. coli* et entérocoques dans les échantillons prélevés ponctuellement ou par préleveur automatique (cru)

La contamination fécale est du même ordre de grandeur sur les trois points de prélèvements, hormis à deux dates. En avril 2013, les contaminations fécales sont plus élevées sur le Mercy et sur Gueriniac, ainsi qu'en novembre 2014 sur Gueriniac (Figure 22).

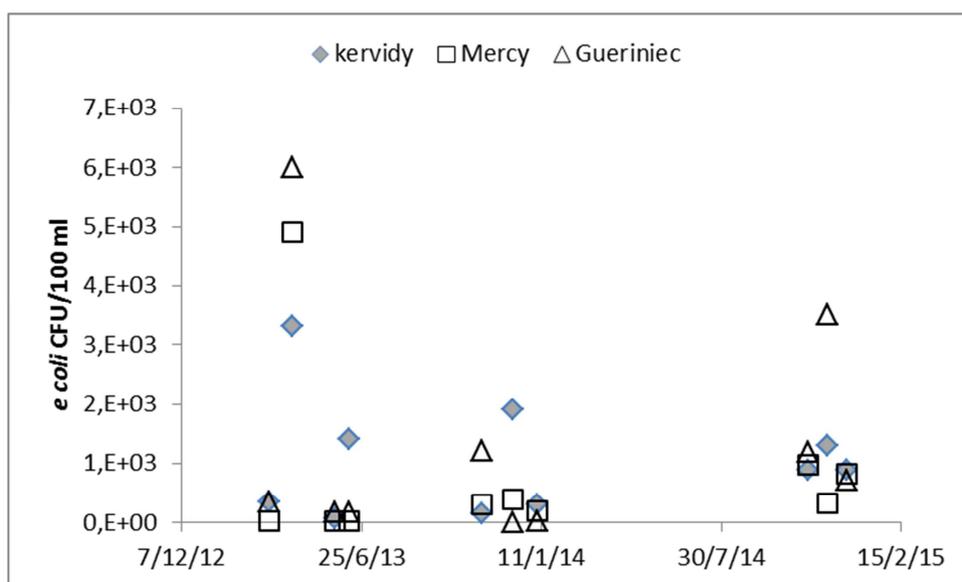


Figure 22 : Teneurs en *E. coli* aux trois points de prélèvement sur le BV de Kervidy-Naizin

#### 5.3.4.2 - Quand ont lieu les plus importantes contaminations fécales?

Les teneurs en *E. coli* supérieures à  $10^4$  sont mesurées dans des conditions de crues mais également hors période de crue. Les concentrations en *E. coli* sont les plus élevées pendant l'automne et pendant le printemps. Cette période correspond aux périodes d'autorisation des épandages d'effluents d'élevage sur les sols et de pâturage. Les teneurs vont baisser à la faveur des crues hivernales qui favorisent la dilution.

### 5.3.4.3 – Origine des contaminations fécales

Les plus fortes contaminations fécales sont quantifiées lors des épisodes de crues (préleveur automatique) et sont majoritairement d'origine animale (Figure 23). Une contamination fécale d'origine humaine n'est mesurée que sur un site (Guerinie) et à une seule date.

Sur l'ensemble des prélèvements, qu'ils soient ponctuels ou spécifiquement en crue (préleveur automatique), la contamination fécale peut être d'origine porcine ou d'origine bovine.

Cependant, pour un même épisode de crue, les marqueurs restent homogènes sur tous les prélèvements et ne montrent pas de contamination croisée.

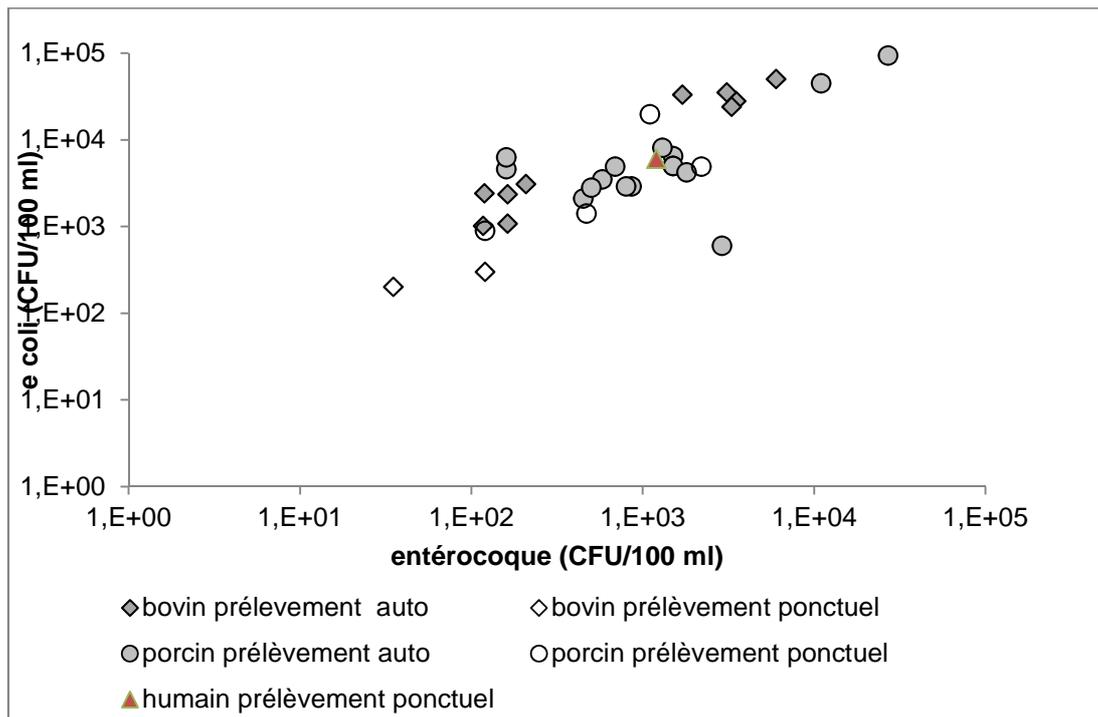


Figure 23 : Origine des contaminations fécales sur le BV de Kervidy-Naizin

### En crue

L'origine de la contamination fécale est principalement d'origine porcine en avril 2013 et 2014 ainsi qu'en novembre 2014 (

). Par contre, elle est exclusivement bovine en décembre 2013 et janvier 2014. Il semble donc y avoir une saisonnalité dans l'origine des contaminations fécales, en lien avec la gestion des apports d'effluents sur les sols.

**Tableau 22 : Origine des contaminations fécales aux différents points de prélèvements et sous-BV correspondants**

	Points de prélèvement ponctuel			Prélèvements automatiques (crues)
	Gueriniec	Mercy	Kervidy	exutoire Kervidy
14/03/2013				
09/04/2013	humain	porcin		porcin
10/04/2013				porcin
27/05/2013				
12/06/2013	porcin		porcin	
06/11/2013				
10/12/2013				
18/12/2013				bovin
07/01/2014	nd	bovin	bovin	bovin
03/04/2014				porcin
23/04/2014				porcin
04/11/2014				
23/11/2014				porcin
25/11/2014				
16/12/2014		porcin	porcin	

Une case grisée indique qu'aucun prélèvement n'a été fait sur ce point à la date indiquée.

### **Les apports d'effluents sur les deux sous-BV, Mercy et Gueriniec (point 2 et 3)**

Le lisier de porc est l'effluent principal apporté sur les parcelles de février à mai sur les deux SBV. En 2013, le lisier de porc a été épandu à partir de mars mais principalement en avril et mai car les sols étaient trop humides pour pénétrer dans les parcelles. Les épandages de fumier de bovins ne concernent que quelques parcelles localisées au nord-ouest, à l'amont du BV du Mercy ou sur deux parcelles situées à l'est mais éloignées du ruisseau de Gueriniec. Une partie de ces parcelles se trouve dans la surface contributive aux écoulements de subsurface telle que définie Figure 9.

Le pâturage a lieu essentiellement sur le BV du Mercy et notamment à l'amont du bassin (secteur nord-ouest). Certaines parcelles sont « 100% » pâturage. Aux abords des points de prélèvements 2 et 3, le pâturage débute en juillet (sur Gueriniec) et en août (sur le Mercy) pour s'arrêter respectivement en novembre et en décembre. La conduite du pâturage est quasiment identique entre 2013 et 2014.

Donc, sur le BV du Mercy (point 2), l'origine des contaminations fécales peut être porcine ou bovine, alors qu'elle va être majoritairement porcine sur le BV de Gueriniec (point 3).

Au mois de janvier, la contamination fécale est d'origine bovine et provient a priori du sous-BV du Mercy, en lien avec le pâturage conduit en tête de bassin.

Le lien entre ces pratiques agricoles et les résultats sur l'origine de la contamination ne peut être fait qu'à partir des données obtenues lors prélèvements ponctuels car ce sont les seuls qui concernent sur les trois points de suivis. Or sur de nombreuses dates, l'origine de la contamination fécale n'a pu être déterminée du a des problèmes analytiques. Il n'est donc pas toujours aisé de faire le parallèle entre pratiques et contamination fécale en un point.

### **5.3.5 – Contamination fécale et occurrence des résidus de médicaments**

La figure suivante (Figure 24) reprend l'ensemble des résultats, qu'il s'agisse des échantillons prélevés manuellement et ponctuellement en trois points du BV ou des échantillons prélevés automatiquement lors d'un épisode de crue.

Les teneurs cumulées en médicaments les plus élevées (supérieures à 500 ng/L) sont majoritairement obtenues dans les prélèvements effectués en crue. Mais l'inverse ne se vérifie pas à savoir que tous les points en crue ne présentent pas des teneurs élevées en RM.

Un point prélevé ponctuellement présente une concentration très élevée, supérieure à 3000 ng/L. Cette teneur élevée, correspondant à l'échantillon prélevé le 6/11/13 qui présente de fortes concentrations en anti-parasitaires

Les contaminations fécales les plus fortes sont essentiellement obtenues lors des épisodes de crue. Les teneurs cumulées élevées, comprises entre 500 et 3200 ng/L sont en général associées à des teneurs en *E. coli* supérieures à  $5 \cdot 10^3$  CFU/100 ml. Mais, à l'inverse, de fortes concentrations en *E. coli* ne s'accompagnent pas toujours de fortes teneurs en RM.

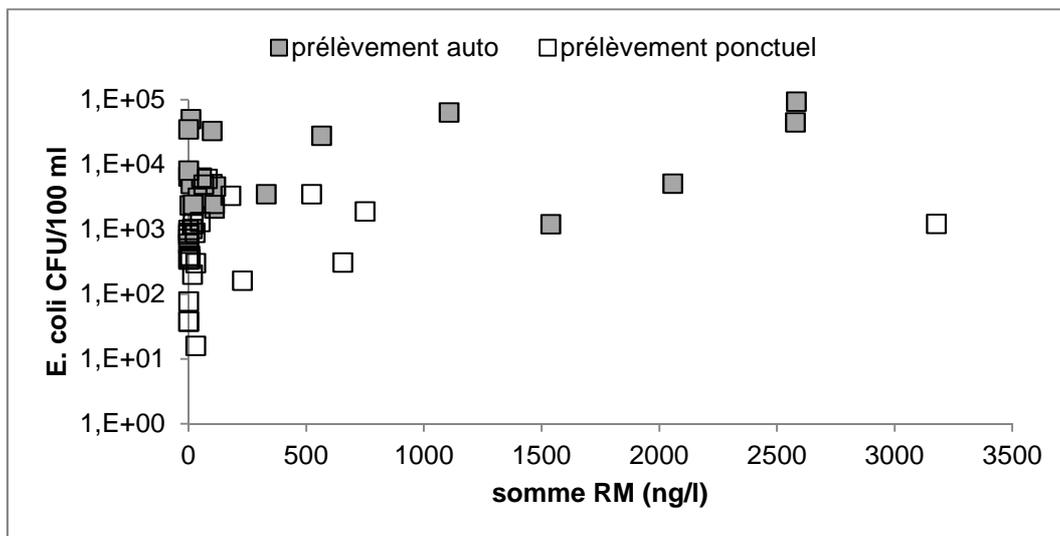


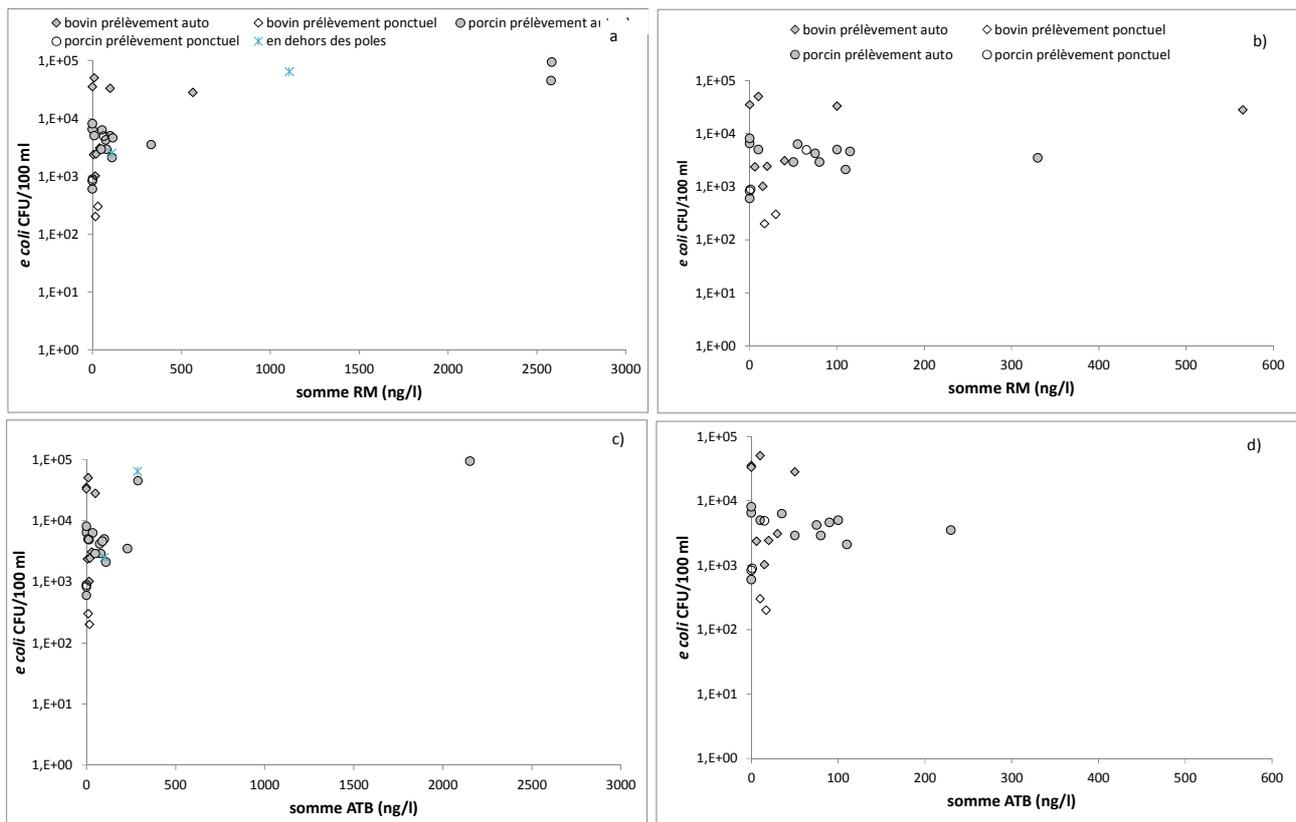
Figure 24 : Relation entre les teneurs cumulées de tous les RM et les concentrations en *E. coli*, pour chaque échantillon prélevé ponctuellement ou par préleveur

### 5.3.6 – Origine de la contamination fécale et contamination par les résidus médicamenteux

La Figure 25 (a) montre des teneurs cumulées élevées en RM entre 500 et 2500 ng/l associées à des teneurs en *E. coli* supérieures à  $5 \cdot 10^3$  CFU/100 ml. La contamination fécale peut être d'origine porcine ou bovine, elle est une fois « en dehors des pôles » ce qui signifie qu'on ne peut attribuer clairement une origine.

Les antibiotiques ne sont pas les molécules prédominantes. La Figure 25 (c), montre qu'à une seule date les antibiotiques contribuent essentiellement aux teneurs cumulées. Ce sont les antiparasitaires qui sortent principalement sur ces points.

Si on exclue les contaminations fécales les plus importantes (Figure 25 b), il est plus difficile de trouver une corrélation entre contamination fécale et contamination par les RM. Les valeurs cumulées s'échelonnent entre 30 et 550 ng/l de RM pour des contaminations fécales parfois faibles. Dans ces cas, la contribution des antibiotiques aux valeurs cumulées est majoritaire (Figure 25d).



**Figure 25 : Relation entre les teneurs cumulées en résidus de médicament et les concentrations en *E. coli* a) et b), en c) et d), seule la somme des antibiotiques est présentée. Lien avec l'origine de la contamination fécale. Sur les graphes b) et d) les points extrêmes ont été supprimés pour mieux voir la distribution**

Les graphiques précédents indiquent que les teneurs cumulées en antibiotiques les plus élevées sont associées à des contaminations fécales d'origine porcine, ce qui est cohérent avec la nature des épandages majoritaires, tel que présenté dans le paragraphe 5.4.4.5. Toutefois, il reste difficile d'associer une origine de ces contaminations fécales définie par les stanols et la présence des molécules médicamenteuses, avec l'hypothèse sous-jacente d'un co-transport entre les deux.

L'éprinomectine est un antiparasitaire exclusivement à usage bovin. Le tableau suivant (Tableau 23) indique qu'elle apparaît notamment sur 4 crues, en avril et décembre 2013 et en avril et décembre 2014.

**Tableau 23 : Occurrence de l'éprinomectine et origine de la contamination fécale sur le BV de Kervydi-Naizin**

	Date de prélèvement en crue	09/04/2013	18/12/2013	23/04/2014	23/11/2014
usage exclusivement bovin	Eprinomectine (exclusivement bovin)	100	490	890	610
usage bovin/porcin	ceftiofur				20
	enrofloxacin	60	25	30	40
	marbofloxacin	20			10
	ivermectine			1400	1070
usage mixte : bovin/porcin/humain	oxytétracycline		25	17	17
	triméthoprime			6	
	spiramycine	150		200	290
	tylosine			9	
	sulfadiazine			27	
	kétoprofène		25		
	<b>Origine</b>	porcin	bovin	porcin	tendance porcin

Or, une seule fois, elle est associée à une origine bovine. Dans tous les autres cas, les indicateurs témoignent d'une contamination fécale d'origine porcine.

Cela indique que les stanols reflètent une origine de contamination fécale dominante, mais que d'autres sources peuvent contribuer à la contamination fécale et donc à la présence de résidus de médicaments.

Si les résultats laissent à penser que les résidus de médicaments sont bien co-transportés, pour toute ou partie, avec les contaminations fécales, ils montrent en revanche que les stanols ne peuvent être utilisés comme un indicateur d'une origine unique des résidus de médicaments.

### 5.3.7 - Y a-t-il une cohérence entre les molécules majoritairement prescrites (résultats des enquêtes) et celles quantifiées sur le bassin versant ?

Le tableau (Tableau 24) permet de comparer la fréquence de quantification de chaque molécule sur le BV de Kervydi-Naizin, et ce quel que soit le mode de prélèvement, avec leur niveau de prescription globale obtenu à partir des enquêtes réalisées auprès des vétérinaires.

**Tableau 24 : Synthèse des résultats obtenus pour chaque molécule quantifiée sur le bassin versant de Kervidy-Naizin et indicateur du niveau de prescription globale**

Molécule (usage : bovin, porc, volaille, humain)	n (fréquence) prél. en crue	% de quantification prél. en crue	moyenne des concentrations (en ng/L) pré. en crue	n (fréquence) prél. ponctuel	% de quantification prél. ponctuel	moyenne des concentrations (en ng/L) pré. ponctuel	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcin
triméthoprim (B/P/V/H)	4/7	57%	35	4/9	44%	12	+++	++
Oxytétracycline (B/P/V/H)	13/26	50%	69	9/22	41%	86	++	++
Enrofloxacin (B/P/V)	11/26	42%	21	9/22	41%	22	+	+++
Lincomycine (B/P/V/H)	7/18	39%	24	3/21	14%	7	++	++
Eprinomectine (B)	8/26	31%	415	6/22	27%	358	+++	sans AMM
Tylosine (B/P/V/H)	3/18	17%	45	1/21	5%	11	+++	++
Sulfadiazine (B/P/V/H)	4/26	15%	24	0/22	0%	<LQ	+	++
Ivermectine (B/P/H)	4/26	15%	1010	1/22	5%	1800	++	++
Spiramycine (B/P/V/H)	3/26	12%	213	3/22	14%	245	++	++
Flunixin (B/P)	3/26	12%	10	1/22	5%	20	++	++
Ketoprofène (B/P/H)	3/26	12%	23	0/22	0%	<LQ	+	++
Ampicilline (B/P/V/H)	2/26	8%	922	0/22	0%	<LQ	++	+
Marbofloxacin (B/P)	2/26	8%	15	2/22	9%	18	++	+++
Ceftiofur (B/P)	1/26	4%	20	0/22	0%	<LQ	+++	+
Levamisole ((B/P/V/H)	non recherché			1/3	33%	10	+	+++
Sulfaméthazine (B/P/V)	0/26	0%	<LQ	3/22	14%	1	++	+
Doxycycline (B/P/V/H)	0/7	0%	<LQ	1/9	11%	37	+	+++
Flumequine (B/P/V/H)	0/7	0%	<LQ	1/9	11%	1	+	+

Toutes les molécules quantifiées sont prescrites sur le bassin versant. Les cinq premières molécules triméthoprim, oxytétracycline, enrofloxacin, lincomycine et éprinomectine les plus quantifiées sont nettement prescrites, notamment chez les porcins. Seule l'éprinomectine a un usage exclusivement bovin. Quelques molécules ont un usage contrasté entre les deux types d'élevage, comme l'enrofloxacin, dont la tendance d'utilisation est plus porcine, comme le levamisole ou la doxycycline. Cette dernière n'a été quantifiée qu'une fois, mais dans la filière porcine, son usage tend à remplacer celui de l'oxytétracycline. Compte tenu du moratoire sur l'utilisation des céphalosporines dans la filière porcine, le ceftiofur est peu utilisé dans les élevages porcins contrairement à la filière bovine.

Ces résultats confirment l'intérêt des enquêtes qui ont permis de compléter la première liste établie sur Naizin (Carrera, 2013) et d'orienter le choix de certaines molécules, comme le triméthoprim, dont l'utilisation nette dans les deux filières se répercute sur une fréquence d'apparition parmi les plus importantes. Cependant, la recherche du triméthoprim a été effectuée sur les 16 derniers prélèvements, et la fréquence de quantification importante sera à confirmer. De même la lincomycine, signalée comme non prescrite dans la première enquête est quantifiée fréquemment.

Compte tenu du niveau de prescription, on aurait pu s'attendre à retrouver plus fréquemment la marbofloxacin, comparativement à l'enrofloxacin.

## 5.4 – Le bassin versant de Médréac

### 5.4.1 - Occurrence des résidus de médicaments sur l'ensemble du bassin versant de Médréac (27km<sup>2</sup>)

Les résultats obtenus pour les 15 campagnes de prélèvement effectuées de mars 2013 à décembre 2014, sont présentés en annexe (Annexe 6).

Sur les 30 molécules recherchées, 16 molécules ont été quantifiées au moins une fois (Tableau 25) :

- 13 molécules utilisées en médecine vétérinaire, dont quatre exclusivement à usage vétérinaire ;
- 3 molécules à usage exclusivement humain

Tableau 25 : Fréquence de quantification et niveaux de concentration pour les 16 molécules quantifiées

Molécule (usage : bovin, porc, volaille, humain)	n (fréquence)	% de quantification	moyenne des concentrations (en ng/L)	concentration maxi (en ng/L)
Diclofenac (H)	17/22	77%	15	89
<i>Flunixin</i> (B/P)	22/32	69%	123	1450
sulfaméthazine (B/P/V)	35/52	67%	43	195
Lincomycine (B/P/V/H)	30/54	56%	68	410
Flumequine (B/P/V/H)	12/22	55%	29	143
Carbamazepine (H)	12/22	55%	8	46
sulfadiazine (B/P/V/H)	19/54	35%	48	374
<i>Oxytétracycline</i> (B/P/V/H)	10/32	31%	137	350
Ketoprofène (B/P/H)	10/32	31%	11	50
<i>Eprinomectine</i> (B)	6/32	19%	136	240
triméthoprim (B/P/V/H)	3/22	14%	15	23
<i>Ivermectine</i> (B/P/H)	4/32	13%	658	910
Enrofloxacin (B/P/V)	3/32	9%	12	15
Ampicilline (B/P/V/H)	2/32	6%	62	91
Epoxy-carbamazepine (H)	1/22	5%	<LQ	2
Tylosine (B/P/V/H)	2/54	4%	9	12

Parmi les molécules utilisés en médecine vétérinaire, un anti-inflammatoire et 3 antibiotiques sont fréquemment quantifiés : la **flunixin** (69, %), la **sulfaméthazine** (67%), la **lincomycine** (56%), la **fluméquine** (55%). Ces pourcentages de quantification sont relatifs à un nombre total d'échantillons compris entre 22 et 54.

La **sulfadiazine** (35%), le **kétoprofène** (31%) et l'**oxytétracycline** (31%) ont chacune été quantifiées dans environ un tiers des échantillons.

Toutes ces molécules sont à usage vétérinaire et humain à l'exception de la sulfaméthazine qui est exclusivement à usage vétérinaire.

Dans les 54 échantillons issus des 15 campagnes menées en différents points du bassin versant de Médréac, 13 molécules n'ont jamais été quantifiées:

- 9 molécules antibiotiques : la doxycycline, la tétracycline, le ceftiofur, l'amoxicilline, la benzylpénicilline, la spiramycine, la danofloxacin, la marbofloxacin et le florfenicol ;
- 4 antiparasitaires et anticoccidiens : le dicyclanil, le lévamisole et le métrifonate ;
- 1 hormone : l'altrénogest.

Seuls 15% des 54 échantillons ne contiennent aucune molécule parmi celles recherchées, toutes classes thérapeutiques confondues. Ce pourcentage est probablement sur-estimé car les échantillons concernés sont ceux correspondant aux premières campagnes pour lesquelles le nombre de molécules recherchées était moindre et pour lesquelles certaines limites de quantification étaient plus élevées pour plusieurs molécules (tableau en Annexe 6).

Parmi les molécules à usage exclusivement humain, deux molécules sont très fréquemment quantifiées sur l'ensemble du bassin versant. Le **diclofénac** est quantifié dans 77% des échantillons ce qui la place en tête des molécules quantifiées en terme de pourcentage de quantification. La **carbamazépine** est quantifiée dans 55% des échantillons, contre 8% pour son métabolite, l'époxy carbamazépine.

Le pourcentage de quantification doit être mis en regard des limites de quantification proposées par les laboratoires d'analyses pour chaque molécule. Les pourcentages de quantification les plus élevés sont obtenus pour les limites de quantification (LQ) inférieures à 10 mais, la LQ ne suffit pas pour expliquer l'absence de certaines molécules.

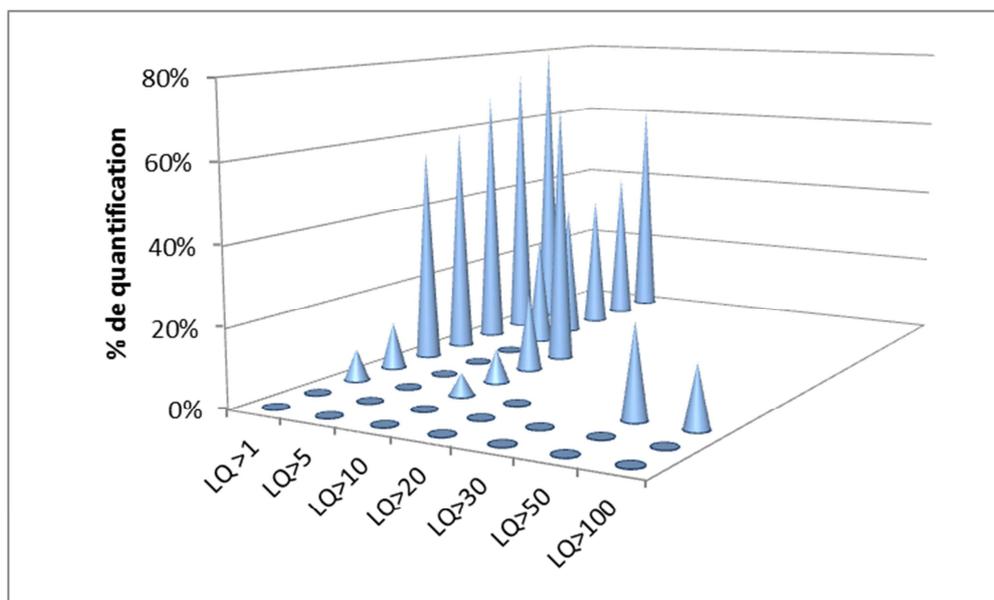


Figure 26 : Pourcentage de quantification des molécules en fonction de la limite de quantification

#### 5.4.2 - Les niveaux de concentrations sur l'ensemble du bassin versant

Les concentrations moyennes et les concentrations maximales pour chaque molécule quantifiée sur l'ensemble du bassin versant de Médréac sont présentées dans le Tableau 25.

Dans la grande majorité des échantillons, les concentrations individuelles varient de 1 à quelques dizaines de ng/l (Annexe 6). Pour 7 molécules, les concentrations dépassent ponctuellement les 100 ng/L voire le µg/L, cas pour la flunixin notamment (Tableau 25).

Quatre molécules se distinguent par des concentrations moyennes élevées, supérieures à 100 ng/L : l'oxytétracycline, l'ivermectine, l'éprinomectine (les deux seuls antiparasitaires quantifiés) et la flunixin. L'ivermectine est quantifiée peu fréquemment mais sort toujours à des concentrations supérieures à 500 ng/L (pour une LQ>100ng/L).

Les trois molécules à usage exclusivement humain présentent des concentrations moyennes variant de 10 à 20 ng/L, ce qui reste inférieur à la majorité des autres molécules à usage vétérinaire.

Les teneurs cumulées de toutes les molécules quantifiées varient de 0 à 2571 ng/L (soit 2,5 µg/L) sur l'ensemble des échantillons. Près de 56% des échantillons présentent des concentrations cumulées supérieures à 100 ng/L et près de 17% ont des concentrations supérieures à 500 ng/L. Ces pourcentages pourraient être plus élevés si toutes les molécules avaient été recherchées dès les premières campagnes.

Ces teneurs cumulées sont plus faibles si on ne prend en compte que les antibiotiques à usage vétérinaire (mixte ou exclusivement animal), en excluant les anti-parasitaires, les anti-inflammatoires et molécules exclusivement à usage humain. Ainsi, 41% des échantillons présentent des concentrations supérieures à 100 ng/L et 7% des échantillons ont des concentrations supérieures à 500 ng/L.

#### 5.4.3. - Un état de contamination contrasté entre les deux bassins versants principaux

L'analyse globale du bassin versant de Médréac a été présentée dans les paragraphes précédents. Mais les deux principaux bassins versants ne montrent pas tous le même niveau de contamination.

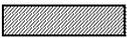
La comparaison du point 2 avec le point 1 indique une contamination par les résidus de médicaments très différente entre le bassin versant du ruisseau de St M'Hervon et celui du ruisseau de Médréac (longeant le bourg).

Le point 2 totalise 11 molécules quantifiées (Annexe 6), ce qui reste comparable à l'autre bassin versant (de 8 à 14 molécules quantifiées en fonction des points). Mais ces molécules ont des fréquences de quantification faibles. Les molécules majoritaires sur ces deux bassins versants sont présentées dans le tableau suivant (Tableau 26).

**Tableau 26 : Concentrations observées pour les principales molécules du bassin versant de Médréac sur les points 1, 2 et 3**

	date des campagnes de prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfaméthazine (B/P/V)	sulfadiazine (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Flumequine (B/P/V/H)	Ivermectine (mixte)	Eprinomectine (B)	Flunixinine (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)	Carbamazépine (H)	Diclofenac (H)
<b>1 aval STEP (643 ha)</b>	28/03/2013	/	/	<5	29	/	/	/	/	/	/	/
	11/04/2013	/	109	<5	18	/	/	/	/	/	/	/
	15/05/2013	/	138	<5	67	/	/	/	/	/	/	/
	19/06/2013											
	01/07/2013	/	176	10	26	/	/	/	/	/	/	/
	18/11/2013	/	<5	<5	28	/	/	/	/	/	/	/
	05/12/2013	/	37	<5	177	/	/	/	/	/	/	/
	19/12/2013	/	28	<5	24	/	/	/	/	/	/	/
	15/01/2014	/	18	147	71	/	/	/	/	/	/	/
	13/02/2014	150	10	15	410	/	<500	<100	20	15	/	/
	03/04/2014	120	90	10	<1	/	<500	<100	20	<10	/	/
	04/06/2014	<5	7	<5	24	4	<100	<50	<10	12	9	14
	13/10/2014	41	22	4	56	24	<100	<50	85	6	6	89
	03/11/2014	<5	<1	<5	6	4	590	110	40	6	1	32
	15/12/2014	<5	8	<2	373	<1	<100	135	<10	<5	<1	9
	n (fréquence)	3/6	11/13	4/14	13/14	3/4	1/6	2/6	4/6	4/6	3/4	4/4
	%quantification	50%	85%	29%	93%	75%	17%	33%	67%	67%	75%	100%
	moyenne des concentrations	104	58	47	101	11	590	123	41	10	5	36
concentration maximum	150	176	147	410	24		135	85	15	9	89	
<b>2 St M'Hervon (1760 ha)</b>	28/03/2013	/	/	8	<5	/	/	/	/	/	/	/
	11/04/2013	/	<20	<5	<20	/	/	/	/	/	/	/
	15/05/2013	/	<5	<5	<10	/	/	/	/	/	/	/
	19/06/2013	/	<5	<20	<20	/	/	/	/	/	/	/
	01/07/2013	/	<5	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/
	18/11/2013	/	<5	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/
	05/12/2013	/	<5	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/
	19/12/2013	/	<5	<5	<20	/	/	/	/	/	/	/
	15/01/2014	/	11	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/
	13/02/2014	<5	15	<5	<1	/	<500	<100	<10	<10	/	/
	03/04/2014	<5	<1	<5	<1	/	<500	<100	<10	50	/	/
	04/06/2014	<5	<1	<5	<1	<1	<100	<50	20	1	<1	5
	13/10/2014	<5	<1	<5	<1	<1	910	110	125	<5	<1	<1
	03/11/2014	<5	<1	<5	<1	<1	<100	<50	100	<5	<1	<1
	15/12/2014	<5	<1	<2	<1	<1	<100	<50	<10	<5	3	2
	n (fréquence)	0/6	2/14	1/15	0/15	0/4	1/6	1/6	3/6	2/6	1/4	2/4
	%quantification	0%	14%	7%	0%	0%	6%	17%	50%	33%	25%	50%
	moyenne des concentrations	<LQ	13	8	<LQ	<LQ	910	110	82	26	3	4
concentration maximum		15	8				110	125	50	3	5	

« / » : molécule non analysée dans l'échantillon

 : point non échantillonné lors de campagne de prélèvement à la date indiquée

Des fréquences et des concentrations faibles caractérisent le bassin versant du ruisseau de St M'Hervon (point 2). Certaines molécules très fréquemment présentes sur le bassin versant du ruisseau de Médréac à l'aval de la STEP (point 1) ne sont quantifiées que ponctuellement (cas de la sulfaméthazine), voire sont absentes (cas de l'oxytétracycline, de la lincomycine et de la flumequine) sur le ruisseau de St M'Hervon.

Au point 2, les fréquences les plus élevées sont obtenues pour les anti-inflammatoires avec un fréquence de 50% pour la flunixinine et 33% pour le kétoprofène. Leur concentration maximale sont respectivement de 125 et 50 ng/L. Les plus fortes concentrations sont obtenues pour les antiparasitaires avec notamment l'ivermectine à 910 ng/L et l'éprinomectine à 110 ng/L. En revanche pour ces deux molécules, les fréquences de quantification sont très faibles, respectivement 6% et 17%.

Les trois molécules à usage exclusivement humain montrent aussi des concentrations et des fréquences plus faibles que pour les autres points sur le ruisseau de Médréac. Seule la carbamazépine présente ponctuellement une concentration maximale de 50 ng/L. Sinon les concentrations sont de 1 à 5 ng/L.

Cela se traduit aussi par des teneurs cumulées de l'ensemble des molécules globalement inférieures à celles observées au point 1, mais aussi aux autres points situés à l'amont de la STEP (Tableau 27). Les pics de teneurs cumulées dépassant les 2000 ng/L résultent principalement des concentrations élevées en ivermectine observées ponctuellement.

**Tableau 27 : Teneurs cumulées (en ng/L) sur les différents points au cours des 15 campagnes de prélèvements**

	4 amont step nord	5 amont step sud	3 amont step	1 aval STEP	2 St M'Hervon	6 Exu Boisgesbert
28/03/2013				29	8	
11/04/2013				127	<LQ	
15/05/2013				205	<LQ	
19/06/2013			122		<LQ	
01/07/2013			569	212	<LQ	
18/11/2013				28	<LQ	
05/12/2013			57	214	<LQ	
19/12/2013			63	52	12	
15/01/2014			183	236	11	
13/02/2014	125	505	620	620	15	
03/04/2014	40	320	196	240	50	
04/06/2014	1000	287	272	103	26	
13/10/2014		2571	453	333	1236	429
03/11/2014	66	112	159	789	100	156
15/12/2014	31	15	31	538	15	100

 point non échantillonné lors de campagne de prélèvement à la date indiquée

Bien que ces deux bassins versants soient comparables en termes d'activités agricoles, occupation du sol et pratiques agricoles, leur niveau de contamination est très différent. Des contaminations très ponctuelles, avec des concentrations globalement faibles sont mesurées sur le bassin versant du ruisseau de St M'Hervon. Les molécules à usage exclusivement humain sont également moins quantifiées sur ce BV. Un tel contraste pourrait s'expliquer par des caractéristiques du milieu physique différentes, comme la topographie (Tableau 28). En effet, les pentes sont plus marquées sur le bassin sur le BV1 avec 22% de la surface occupée par des pentes >5% contre seulement 8% sur le BV2. De même, la part des pentes faibles (<3%) est plus importante sur le BV2 (61%) que sur le BV1 (41%). A ce facteur de pente peut s'ajouter d'autres paramètres comme la proportion de structures paysagères qui jouent un rôle tampon sur les écoulements de surface et de subsurface (densité de haie, zone humide, zone tampon).

**Tableau 28: Pourcentage du bassin versant occupé par les trois classes de pente**

	pente >3%	entre 3 à 5 %	pente >5%
BV1	41%	37%	22%
BV2	61%	31%	8%

#### 5.4.4 - Transferts dans les têtes de bassin versant.

L'analyse des points 3, 4 et 5 situés en amont du bourg et de la station d'épuration permettent d'identifier les molécules présentes en tête de bassin versant dans un environnement largement dominé par l'activité agricole et la présence de quelques habitations éparses ayant des dispositifs

d'assainissement individuels. Le point 3 se situe à l'aval immédiat de la confluence des deux petits ruisseaux représentés par les points 4 et 5.

Le tableau suivant présente les résultats concernant les principales molécules quantifiées sur cette tête de bassin d'une superficie de 643 ha dont le point 3 est l'exutoire.

**Tableau 29 : Concentrations observées pour les principales molécules présentes aux points 3, 4, et 5 sur plusieurs dates de prélèvement**

	date des campagnes de prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfaméthazine (B/P/V)	sulfadiazine (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Flumequine (B/P/V/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)	Carbamazépine (H)	Diclofenac (H)
<b>4 Amont STEP Nord (199 hectares)</b>	13/02/2014	<5	5	<5	110	/	<100	10	<10	/	/
	03/04/2014	<5	<1	15	<1	/	<100	25	<10	/	/
	04/06/2014	<5	<1	<5	105	<1	240	<10	20	<1	5
	13/10/2014										
	03/11/2014	<5	<1	<5	9	<1	<50	45	<5	<1	12
	15/12/2014	<5	11	<2	19	<1	<50	<10	<5	<1	1
	n (fréquence)	0/5	2/5	1/5	4/5	0/3	1/5	3/5	1/5	0/3	3/3
	%quantification	0%	40%	20%	80%	0%	20%	60%	20%	0%	100%
	moyenne des concentrations	<LQ	8	15	61	<LQ	240	27	20	<LQ	6
	concentration maximum		11	15	110		240	45	20		12
<b>5 Amont STEP sud (437 hectares)</b>	13/02/2014	280	20	80	35	/	<100	90	<10	/	/
	03/04/2014	125	50	15	110	/	<100	20	<10	/	/
	04/06/2014	<5	41	1	13	64	<50	120	<5	46	<1
	13/10/2014	144	181	35	71	143	<50	1450	1	4	19
	03/11/2014	14	7	1	7	13	<50	55	<5	1	14
	15/12/2014	<5	14	<2	<1	1	<50	<10	<5	<1	<1
	n (fréquence)	4/6	6/6	5/6	5/6	4/4	0/6	5/6	1/6	3/4	2/4
	%quantification	67%	100%	83%	83%	100%	0%	83%	17%	75%	50%
	moyenne des concentrations	141	52	26	47	55	<LQ	347	1	17	17
	concentration maximum	280	181	80	110	143		1450	1	46	19
<b>3 Amont STEP (643 hectares)</b>	28/03/2013										
	11/04/2013										
	15/05/2013										
	19/06/2013	/	122	<20	<20	/	/	/	/	/	/
	01/07/2013	/	195	374	<5	/	/	/	/	/	/
	18/11/2013										
	05/12/2013	/	57	<5	<5	/	/	/	/	/	/
	19/12/2013	/	37	26	<20	/	/	/	/	/	/
	15/01/2014	/	17	150	16	/	/	/	/	/	/
	13/02/2014	350	20	35	110	/	<100	90	<10	/	/
	03/04/2014	120	40	15	<1	/	<100	15	<10	/	/
	04/06/2014	22	17	<5	20	25	110	35	7	32	4
	13/10/2014	<5	49	15	38	50	<50	300	<5	1	<1
	03/11/2014	<5	12	<5	<1	22	<50	95	<5	2	9
	15/12/2014	<5	11	<2	19	<1	<50	<10	<5	<1	1
	n (fréquence)	3/6	11/11	6/11	5/11	3/4	1/6	5/6	1/6	3/4	3/4
	%quantification	50%	100%	55%	45%	75%	17%	83%	17%	75%	75%
	moyenne des concentrations	164	52	103	41	32	110	107	7	12	5
concentration maximum	350	195	150	110	50	110	300	7	32	9	
moyenne des concentrations du 13/02/2014 au 15/12/2014	164	25	22	47	32	110	107	7	12	5	

« / » : molécule non analysée dans l'échantillon

 : point non échantillonné lors de campagne de prélèvement à la date indiquée

(B/P/V/H) : molécules à usage bovin/porcin/volaille/humain

Le point 3 présente des contaminations nettes par des molécules à usage vétérinaire : 5 antibiotiques et 1 anti-inflammatoire, à usage mixte ou exclusivement animal :

Les pourcentages de quantification sont en majorité supérieurs à 50% et les concentrations moyennes varient entre 7 et 164 ng/L. A l'exception de la fluméquine, les molécules présentent au moins une fois des concentrations supérieures à 100 ng/L.

Parmi les antibiotiques, la sulfaméthazine, à usage strictement vétérinaire, est détectée systématiquement (100% des échantillons) à une concentration moyenne de 52 ng/l. Les concentrations sont élevées (>120 ng/l) en juin et juillet 2013 et sont de l'ordre de 30 ng/L de décembre 2013 à 2014. La fluméquine est également fréquemment détectée (83%) mais la concentration moyenne est plus faible (32 ng/l). L'oxytétracycline (vétérinaire et humain) présente des concentrations parfois élevées (350 ng/l) ainsi qu'une fréquence élevée (50%). La sulfadiazine (vétérinaire et humain) est détectée sur 54% des échantillons à une concentration moyenne de 102 ng/l. La lincomycine (vétérinaire et humain) est détectée sur 45% des échantillons à une concentration moyenne de 40 ng/l. La flunixin, anti inflammatoire, est très fréquemment détectée (83%). La concentration moyenne est élevée (107 ng/l) et le max atteint 300 ng/l.

Les fréquences de quantification sont donc en majorité supérieures à 50% et les concentrations moyennes varient entre 7 et 164 ng/L. A l'exception de la fluméquine, les molécules présentent au moins une fois des concentrations supérieures à 100 ng/L.

Deux molécules à usage exclusivement humain sont également quantifiées, la carbamazépine (mais pas son métabolite) et le diclofénac. Si leur fréquence reste élevée, leurs concentrations sont en moyenne plus faibles que les molécules à usage vétérinaire. Cela confirme une source humaine dans la contamination des eaux superficielles par les résidus de médicaments, vraisemblablement liée aux dispositifs d'assainissement individuel, mais dont la part relative est moindre en contexte d'activité d'élevage.

Toutes ces molécules sont également quantifiées plus en amont, au point 5. Les fréquences de quantification et les concentrations sont du même ordre de grandeur entre ces deux points.

Les concentrations moyennes sur la période comparable du 13/02/2014 au 15/12/2014 entre le point 5 et le point 3 sont respectivement de 141 et 164 ng/L pour l'oxytétracycline, de 52 et 25 ng/L pour la sulfaméthazine, de 26 et 22 ng/L pour la sulfadiazine, de 47 ng/L dans les deux cas pour la lincomycine, de 17 et 12 ng/L pour la carbamazépine et de 17 et 5 ng/L pour le diclofénac. L'écart est plus prononcé pour la flunixin (respectivement 347 et 107 ng/L) car le 13/02/14 elle a été quantifiée à 1450 ng/L au point 5 contre 300 ng/L au point 3 à l'aval.

En revanche, l'autre petit bassin versant situé plus au nord représenté par le point 4, semble être moins contaminé. Cela se traduit par des fréquences plus faibles pour certaines molécules et l'absence de quantification de certaines comme l'oxytétracycline, la fluméquine et la carbamazépine. Bien qu'il s'agisse d'un bassin versant de petite taille (environ 200 ha) avec quelques habitations, la présence du diclofénac confirme la contribution des dispositifs d'assainissement comme source de résidus de médicaments, même une faible densité d'habitat.

La liste de ces 8 molécules largement quantifiées (oxytétracycline, sulfaméthazine, sulfadiazine, lincomycine, fluméquine, flunixin, carbamazépine et diclofénac) peut être complétée par 8 autres molécules qui n'apparaissent que très ponctuellement : le triméthoprime, l'ampicilline, la tylosine, l'enrofloxacin, le kétoprofène, l'époxy-carbamazépine, l'ivermectine et l'éprinomectine. ces deux dernières ont des concentrations plus élevées, de plusieurs centaines de ng/L pour l'ivermectine.

Donc la contribution majeure pour les molécules à usage vétérinaire en amont de la STEP provient majoritairement du BV 5.

### 5.4.5 - Influence limitée de la station d'épuration sur la contamination par les résidus médicamenteux

Le point 3 et le point 1 permettent d'appréhender l'effet de la station d'épuration sur la contamination de l'eau par les résidus médicamenteux.

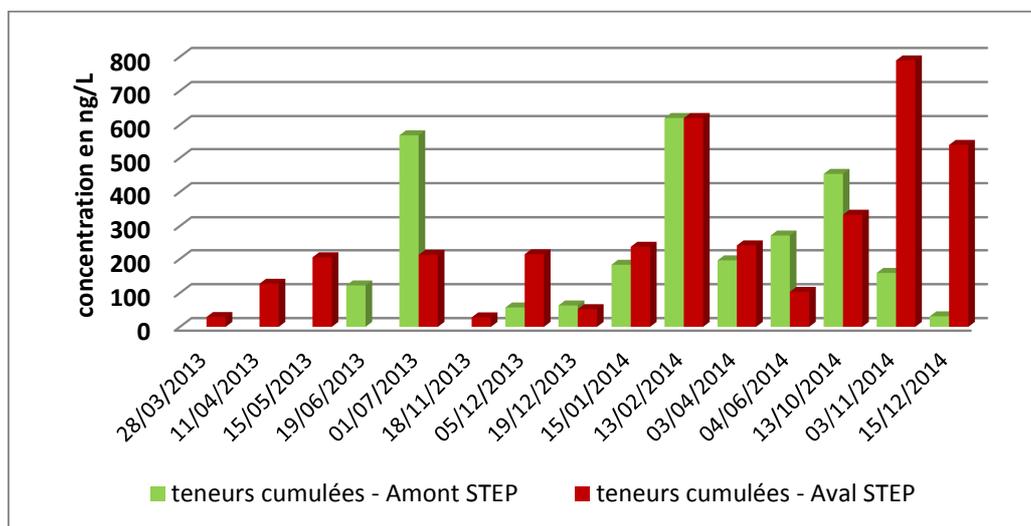


Figure 27 : Influence de la STEP sur les teneurs cumulées en résidus de médicaments

L'analyse de la Figure 27 montre que la station d'épuration ne contribue pas systématiquement à l'augmentation des teneurs cumulées en résidus de médicaments. Seuls les prélèvements effectués en novembre-décembre pour les deux années révèlent des concentrations nettement plus élevées à l'aval de la station d'épuration. Comme l'indique les graphiques suivants (Figure 28), l'influence de la STEP varie en fonction des molécules, qu'elles soient mixtes ou non.

Pour les molécules à usage à la fois vétérinaire et humain, l'influence de la STEP est nette sur les concentrations observées pour la lincomycine et le kétoprofène. En revanche, pour l'oxytétracycline et la sulfadiazine, les résultats montrent bien l'absence d'une contribution particulière de la STEP sur les concentrations observées.

Pour les molécules exclusivement à usage vétérinaire telles que la sulfaméthazine (antibiotique) ou la flunixinine (anti-inflammatoire) aucune contribution particulière de la STEP n'est observée.

L'apport lié à la station d'épuration est net pour le diclofénac, en revanche il est moins perceptible pour la carbamazépine, dont on observe la présence aussi à l'amont.

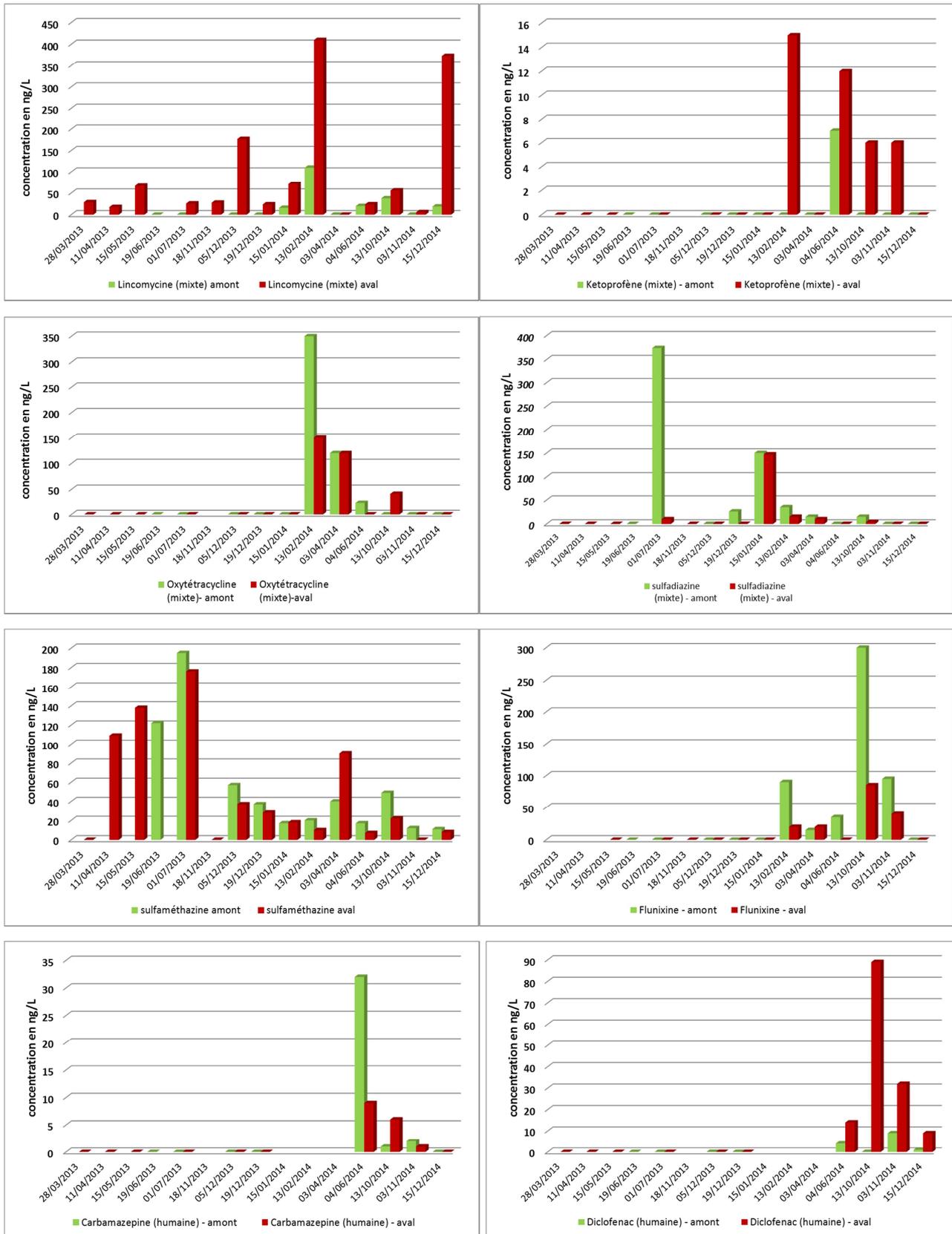


Figure 28 : Comparaison des concentrations de huit molécules analysées à l'amont et à l'aval de la STEP

#### 5.4.6 – Effet de la taille du bassin versant

L'effet de la taille du bassin versant étudié sur l'occurrence des molécules a été appréhendé en rajoutant les points 6 et 7 comme point de prélèvement, correspondant respectivement à l'exutoire du bassin versant de Médréac (27 km<sup>2</sup>), incluant les points 1 et 2, et un point sur le Néal (82 km<sup>2</sup>) situé juste à l'aval.

La sulfadiazine et la lincomycine quantifiés sur 100% des prélèvements dans le Néal semblent provenir du BV du ruisseau de Médréac, ainsi que les deux molécules à usage humain carbamazépine et Diclofénac. La flunixinine (66% de fréquence de détection) est retrouvée sur tous les points de prélèvements sur deux dates, cette molécule est donc bien transférée et persiste de l'amont à l'aval.

En revanche, les molécules apparaissant plus ponctuellement, même avec des niveaux de concentrations élevés, tels que l'oxytétracycline, l'éprinomectine, l'ivermectine ne sont pas retrouvées lors des prélèvements dans le Néal.

Les prélèvements dans le Néal semblent confirmer la présence des molécules à usage humain, comme la carbamazépine et le diclofénac.

Tableau 30 : Comparaison des points de prélèvement 1, 2 6 et 7 pour analyser l'effet "taille du bassin versant"

		Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfaméthazine (B/P/V)	sulfadiazine (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Flumequine (B/P/V/H)	Eprinomectine (B)	Flunixinine (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)	Carbamazépine (H)	Diclofénac (H)
<b>1 aval STEP (643 ha)</b>	13/10/2014	41	22	4	56	24	<50	85	6	6	89
	03/11/2014	<5	<1	<5	6	4	110	40	6	1	32
	15/12/2014	<5	8	<2	373	<1	135	<10	<5	<1	9
	n (fréquence)	1/3	2/3	1/3	3/3	2/3	2/6	2/3	2/3	2/3	3/3
	%quantification	33%	67%	33%	100%	67%	33%	67%	67%	67%	100%
	moyenne des concentrations	41	15	4	145	14	123	63	6	4	43
<b>2 St M'Hervon (1760 ha)</b>	13/10/2014	<5	<1	<5	<1	<1	110	125	<5	<1	<1
	03/11/2014	<5	<1	<5	<1	<1	<50	100	<5	<1	<1
	15/12/2014	<5	<1	<2	<1	<1	<50	<10	<5	3	2
	n (fréquence)	0/3	0/3	0/3	0/3	0/3	1/6	2/3	0/3	1/3	1/3
	%quantification	0%	0%	0%	0%	0%	17%	67%	0%	33%	33%
	moyenne des concentrations	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	<LQ	110	113	<LQ	3	2
<b>6 exutoire Boisgesbert (27 km2)</b>	13/10/2014	<5	47	<5	72	21	110	135	3	7	34
	03/11/2014	<5	25	3	29	6	<50	50	<5	6	37
	15/12/2014	<5	3	<2	90	<1	<50	<10	<5	<1	7
	n (fréquence)	0/3	3/3	1/3	3/3	2/3	1/3	2/3	1/3	2/3	3/3
	%quantification	0%	100%	33%	100%	67%	33%	67%	33%	67%	100%
	moyenne des concentrations	<LQ	25	3	64	14	110	93	3	7	26
<b>7 BV le Néal (82 km2)</b>	13/10/2014	<5	3	<5	6	<1	<50	35	10	15	73
	03/11/2014	<5	18	4	33	5	<50	125	<5	12	46
	15/12/2014	<5	1	<2	25	<1	<50	<10	<5	6	5
	n (fréquence)	0/3	3/3	1/3	3/3	1/3	0/3	2/3	1/3	3/3	3/3
	%quantification	0%	100%	33%	100%	33%	0%	67%	33%	100%	100%
	moyenne des concentrations	<LQ	7	4	21	5	<LQ	53	10	11	41

#### 5.4.7. Existe-t-il une variabilité saisonnière dans l'occurrence des molécules ?

Sur l'ensemble du bassin versant du ruisseau de Médréac, plusieurs molécules sont quantifiées régulièrement dans les différents échantillons prélevés lors des campagnes successives : la

sulfaméthazine, la lincomycine, la fluméquine, la flunixin et de façon un peu moins nette la sulfadiazine, de même que le diclofénac et la carbamazépine (les deux molécules à usage humain).

Aucune saisonnalité n'est observée. Leurs niveaux de concentrations restent globalement du même ordre de grandeur tout au long de l'année, même si quelques pics de concentration peuvent être observés très ponctuellement.

D'autres molécules sont quantifiées très ponctuellement, sans qu'il y ait concomitance entre les différents points de prélèvement, et sans continuité entre des points amont et aval. Certaines molécules comme la tylosine, le triméthoprime, l'ampicilline et l'enrofloxacin présentent des concentrations relativement proches des limites de quantification, alors que d'autres comme, l'éprinomectine et l'ivermectine, montrent des concentrations élevées dépassant, pour cette dernière, les 500 ng/L

L'oxytétracycline et le kétoprofène présentent une situation intermédiaire, avec des campagnes où ces molécules sont quantifiées pratiquement sur tous les points (respectivement, le 13/02/14 et 03/04/14, et le 4/06/14 et 13/10/14) et d'autres où elles ne sont quantifiées que très ponctuellement, avec des niveaux de concentration variables.

#### **5.4.8 - La contamination fécale sur le bassin versant de Médréac**

##### **5.4.8.1 - Niveau de contamination dans les têtes de bassins et influence de la STEP**

Les teneurs en *E. coli* sur les points de prélèvements 1, 3, 4 et 5 sont comprises entre  $10^2$  et  $2 \cdot 10^5$  CFU/100 ml. La contamination la plus élevée ( $3 \cdot 10^5$  CFU/ 100 ml) est mesurée en aval de la STEP. Sur le bassin versant du ruisseau de St M'Hervon (point 2), les valeurs sont comprises entre  $10^2$  et  $7 \cdot 10^5$ . Comme pour le BV de Kervidy-Naizin, les concentrations sont dans la même gamme que celle mesurée sur d'autres bassins versants bretons (Derrien et al., 2012). Les teneurs observées sur le bassin versant de Médréac reflètent donc bien des épisodes de contamination fécale.

Les teneurs en *E. coli* en aval de la STEP sont fortement corrélées à celles de l'amont de la STEP (Figure 29, a). Il n'y a que deux dates où la contamination fécale est plus forte après la STEP qu'avant la STEP. Il existe donc des sources de contaminations fécales localisées en amont de la STEP.

Les deux bassins versants situés à l'amont (4 et 5) contribuent de manière équivalente à la contamination fécale (Figure 29, b)

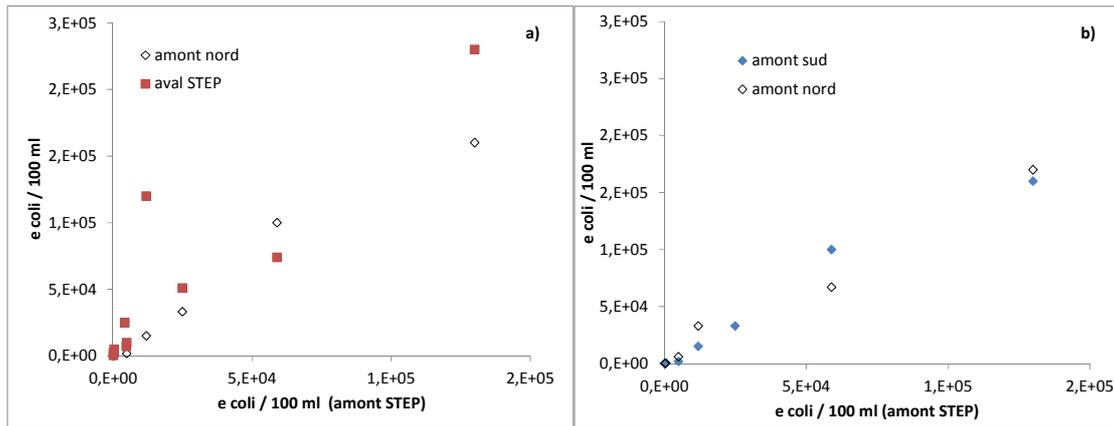


Figure 29 : Teneurs en *E. coli* comparées entre l'amont et l'aval de la STEP (a) et entre les points de prélèvement amont nord et amont sud (b)

#### 5.4.8.2 - Quand ont lieu les plus importantes contaminations fécales?

Les teneurs en *E. coli* supérieures à  $10^4$  sont mesurées dans des conditions d'étiage et de crues. Les concentrations en *E. coli* sont les plus élevées pendant l'automne et pendant le printemps. Cette période correspond aux périodes d'autorisation des épandages d'effluents d'élevage sur les sols et de pâturage. Les crues hivernales favorisent la dilution.

#### 5.4.8.3 - Origine des contaminations fécales

Sur le bassin versant correspondant au point 2, la contamination fécale est essentiellement d'origine bovine. En avril et juin 2014, les contaminations fécales sont élevées et d'origine humaine et porcine/humaine respectivement.

En aval de la STEP, les marqueurs de contamination fécales montrent une origine essentiellement humaine, mais la contamination est d'origine bovine le 19/12/13 et le 13/10/14, et mixte humaine/bovine sur trois prélèvements en janvier/février et en novembre 2014. Cette contribution liée aux effluents bovins se retrouve en amont de la STEP (point 3) et sur les deux petits bassins versants amonts 4 et 5.

Au printemps, en avril et en juin, les contaminations fécales sont élevées sur tous les points de prélèvements et sont certainement dues à des épandages de lisiers de porcs ainsi qu'à des rejets de dispositifs d'assainissement non collectif.

A l'automne, les contaminations fécales sont d'origine bovine et mixtes « humain/bovin ».

La rivière transporte donc des *E. coli* et entérocoques d'origines animale et humaine. Les contributions bovines et humaines prédominent mais au printemps, le milieu est impacté par les épandages de lisiers de porcs.

**Tableau 31 : Origine de la contamination fécale (humaine, porcine et bovine) sur les points de prélèvements du bassin versant de Médréac**

Date prélèvement	2 pont	1 aval STEP	3 amont STEP	4 amont STEP (nord)	5 amont STEP (sud)
28/03/2013 <i>E coli</i> (CFU/100ml)	2100	Humain 1500			
11/04/2013	1300	4600			
15/05/2013	< LQ 1200	Humain			
01/07/2013	Bovin 1200	Humain 7100	Humain/porcin 4800		
18/11/2013	Bovin 330	n.d 185			
05/12/2013	Bovin 251	Humain 442	Humain 161		
19/12/2013	Bovin 7300	Bovin 25000	Bovin 4200		
15/01/2014	Bovin 950	Humain/Bovin 2300	Humain/Bovin 200	Humain/Bovin 160	Humain/Bovin 250
13/02/2014	Bovin 1100	Humain/Bovin 10100	Bovin 5000	Bovin 6000	Bovin 1700
03/04/2014	Humain 20000	Humain 120000	Humain/Bovin 12000	Porcin/Humain 33000	Porcin/Humain 15000
04/06/2014	Porcin/Humain 9800	Humain 74000	Porcin/humain 59000	Porcin/Humain 67000	Porcin/Humain 100000
13/10/2014	Bovin 230000	Bovin 51000	Bovin/Humain 25000		Bovin/Humain 33000
03/11/2014	Bovin 700000	Bovin/Humain 230000	Bovin/Humain 130000	Bovin 170000	Bovin 160000
15/12/2014	Bovin 1400	Humain 5000	Bovin 460	Bovin 360	nd 300

#### 5.4.9 - La contamination par les résidus médicamenteux est indépendante de la contamination fécale

La contamination fécale des eaux n'entraîne pas systématiquement de contamination des eaux par les résidus médicamenteux. Les eaux peuvent présenter des teneurs cumulées de résidus de médicaments de 200 ng/ l sans qu'il y ait de contamination fécale avérée ou au contraire être très contaminées. Par contre, les valeurs maximales de résidus de médicaments dans les eaux (800 et 1300 ng/l) correspondant au transfert préférentiel d'une ou deux molécules, sont associées à des contaminations fécales fortes et surement dues à des transferts de surface.

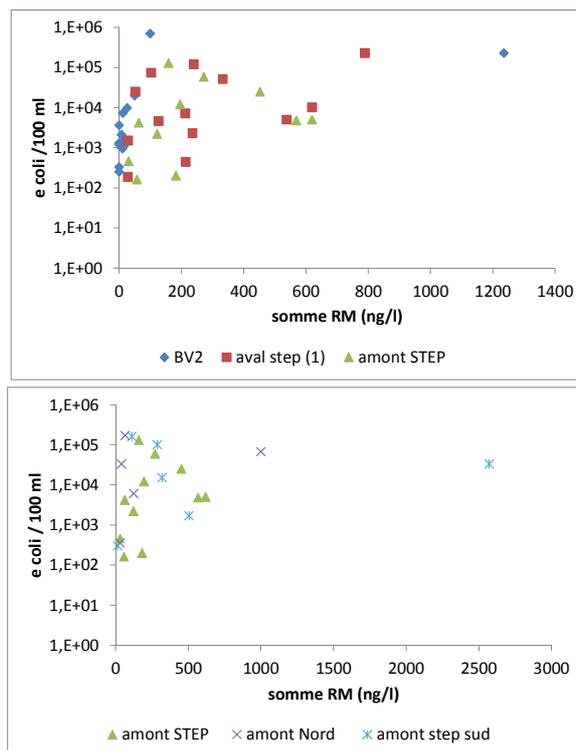


Figure 30: Relation entre les teneurs cumulées en résidus de médicament et les concentrations en *E. coli* pour les différents points de prélèvements

#### 5.4.10 – Résidus de médicaments et l’origine de la contamination fécale

Parmi les médicaments vétérinaires quantifiés, la seule molécule ayant un usage destiné à une seule espèce animale est l’éprinomectine, anti-parasitaire à usage bovin. Cette molécule apparaît ponctuellement aussi bien au printemps (4/06/14) qu’en automne (13/10/14, 3/11/14 et 15/12/14).

Tableau 32 : Occurrence de l’éprinomectine et origine de la contamination fécale

	Date et point de prélèvement	04/06/2014 3 Amont STEP	04/06/2014 4 amont STEP (nord)	13/10/2014 2 St M'Hervon	13/10/2014 6 Exu Bois Gesbert	03/11/2014 1 Aval STEP	15/12/2014 1 Aval STEP
usage exclusivement bovin	Eprinomectine (exclusivement bovin)	110	240	110	110	110	135
usage bovin/porcin	sulfaméthazine	17			47		8
	enrofloxacin						10
	ivermectine		630	910		590	
	flunixin	35		125	135	40	
usage mixte : bovin/porcin/humain	oxytétracycline	22					
	triméthoprime						3
	ampicilline			91			
	lincomycine	20	105		72	6	373
	fluméquine	25			21	4	
	kétoprofène	7	20		3	6	
usage exclusivement humain	carbamazépine	35			7	1	
	diclofénac	4	5		34	32	9
	<b>Origine</b>	Porcin/Humain	Porcin/Humain	Bovin	Bovin/Humain	Bovin/Humain	Humain

Les résultats présentés dans le tableau précédent confirment les observations faites sur le BV de Kervidy-Naizin à savoir que les stanols, à un instant T, reflètent une origine de contamination fécale principale, mais que d'autres sources contribuent à la contamination fécale et donc à la présence de résidus de médicaments.

Si les résultats laissent à penser que les résidus de médicaments sont bien co-transportés, pour toute ou partie, avec les contaminations fécales, ils montrent en revanche que les stanols ne peuvent être utilisés comme un indicateur d'une origine unique des résidus de médicaments.

La même démonstration peut être faite avec les molécules à usage exclusivement humain, comme le diclofénac ou la carbamazépine qui ne sont pas toujours associés à des contaminations humaines définies par les stanols à la date de prélèvement correspondante.

#### 5.4.11 - Y a-t-il une cohérence entre les molécules majoritairement prescrites (résultats des enquêtes) et celles quantifiées sur le bassin versant ? lien avec l'origine de la contamination

Les résultats concernant les molécules médicamenteuses obtenus sur l'ensemble des points sont comparés avec les niveaux de prescription identifiés à partir des enquêtes vétérinaires.

**Tableau 33 : Synthèse des résultats obtenus pour chaque molécule quantifiée sur le bassin versant de Médréac et indicateur du niveau de prescription globale**

Molécule (usage : bovin, porcin, volaille, humain)	n (fréquence)	% de quantification	moyenne des concentrations (en ng/L)	concentration maxi (en ng/L)	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcin
Diclofenac (H)	17/22	77%	15	89		
Flunixin (B/P)	22/32	69%	123	1450	++	++
sulfaméthazine (B/P/V)	35/52	67%	43	195	++	+
Lincomycine (B/P/V/H)	30/54	56%	68	410	++	++
Flumequine (B/P/V/H)	12/22	55%	29	143	+	+
Carbamazépine (H)	12/22	55%	8	46		
sulfadiazine (B/P/V/H)	19/54	35%	48	374	+	++
Oxytétracycline (B/P/V/H)	10/32	31%	137	350	++	++
Ketoprofène (B/P/H)	10/32	31%	11	50	+	++
Eprinomectine (B)	6/32	19%	136	240	+++	sans AMM
triméthoprime (B/P/V/H)	3/22	14%	15	23	+++	++
Ivermectine (B/P/H)	4/32	13%	658	910	++	++
Enrofloxacin (B/P/V)	3/32	9%	12	15	+	+++
Ampicilline (B/P/V/H)	2/32	6%	62	91	++	+
Epoxy-carbamazépine (H)	1/22	5%	2	2		
Tylosine (B/P/V/H)	2/54	4%	9	12	+++	++

Les molécules quantifiées sur le bassin versant ont des niveaux de prescriptions moyens à élevés pour au moins l'un des types d'élevage. Seule la fluméquine quantifiée dans plus de la moitié des échantillons, est faiblement prescrite à la fois dans les élevages bovins et porcins.

Deux molécules humaines sont présentes avec des pourcentages de quantification parmi les plus élevés. Cela reste cohérent avec l'origine humaine des contaminations fécales identifiée en différents points du bassin versant de Médréac et à différent moment de l'année.

## 5.5 – Comparaison des deux bassins versants étudiés et lien avec les résultats des enquêtes

Le tableau suivant (Tableau 34) synthétise l'ensemble des résultats obtenus sur les deux bassins versants étudiés, Kervidy-Naizin et Médréac. Cela est mis en lien avec les niveaux de prescription globale définis à partir des enquêtes.

**Tableau 34 : Comparaison des molécules quantifiées sur les deux bassins-versants étudiés et des niveaux de prescriptions d'après les enquêtes**

Molécule (usage : bovin, porcin, volaille, humain)	% de quantification			Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcin
	Kervidy-Naizin <i>en crue</i>	Kervidy-Naizin <i>prél. ponctuel</i>	Médréac		
triméthoprime (B/P/V/H)	57%	44%	14%	+++	++
Oxytétracycline (B/P/V/H)	50%	41%	31%	++	++
Enrofloxacin (B/P/V)	42%	41%	9%	+	+++
Lincomycine (B/P/V/H)	39%	14%	56%	++	++
Eprinomectine (B)	31%	27%	19%	+++	sans AMM
Tylosine (B/P/V/H)	17%	5%	4%	+++	++
Sulfadiazine (B/P/V/H)	15%	0%	35%	+	++
Ivermectine (B/P/H)	15%	5%	13%	++	++
Spiramycine (B/P/V/H)	12%	14%	0%	++	++
Flunixin (B/P)	12%	5%	69%	++	++
Ketoprofène (B/P/H)	12%	0%	31%	+	++
Ampicilline (B/P/V/H)	8%	0%	6%	++	+
Marbofloxacin (B/P)	8%	9%	0%	++	+++
Ceftiofur (B/P)	4%	0%	0%	+++	+
Levamisole ((B/P/V/H)	NR	33%	0%	+	+++
Sulfaméthazine (B/P/V)	0%	14%	67%	++	+
Doxycycline (B/P/V/H)	0%	11%	0%	+	+++
Flumequine (B/P/V/H)	0%	11%	55%	+	+
Diclofenac (H)	0%	0%	77%	usage exclusivement humain	
Carbamazepine (H)	0%	0%	55%		
Epoxy-carbamazepine (H)	0%	0%	5%		

NR : molécule non recherchée ,  : molécule dont la concentration moyenne est >100 ng/L

21 molécules ont été quantifiées au total sur les deux sites. Toutes sont bien prescrites sur les bassins versants. Des molécules se distinguent par des pourcentages de quantification élevés et/ou des concentrations moyennes supérieures à 100 ng/L, mais ce ne sont pas toujours les mêmes sur les deux sites.

**L'oxytétracycline** et la **lincomycine** sortent assez nettement sur les deux sites et leur usage est bien marqué pour les deux types d'élevage. Le **triméthoprime** et **l'enrofloxacin** présentent une fréquence de quantification plus importante sur Kervidy-Naizin, peut être à mettre en lien avec une prédominance des élevages porcins sur ce bassin versant, notamment pour cette dernière molécule. Les sulfamides (sulfaméthazine et sulfadiazine) sont nettement présentes sur le BV de Médréac alors que sur Kervidy-Naizin leur présence dans les eaux est plus ponctuelle.

Les antiparasitaires (**éprinomectine** et **ivermectine**) sont quantifiés sur les deux sites, avec des pourcentages de quantification faible à moyen mais avec des concentrations toujours élevées.

Les pourcentages de quantification élevés de deux molécules spécifiquement humaines (le diclofénac et la carbamazépine) sur le BV de Médréac illustrent une contribution humaine qui peut se faire par la STEP mais aussi par les dispositifs d'assainissement non collectif qui sont situés en amont de la STEP.

En revanche, 10 molécules n'ont jamais été quantifiées sur les deux bassins versants. Elles sont présentées dans le tableau suivant. (Tableau 35).

**Tableau 35 : Liste des molécules jamais quantifiées dans les échantillons et comparaison avec leur niveau de prescription**

Molécule (usage : bovin, porcine, volaille, humain)	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage bovin	Indicateur du niveau de prescription globale - élevage porcine
tétracycline	++	+
amoxicilline	+++	++
benzylpénicilline (=pénicilline G - sodium)	+++	+
danofloxacin	+	0
dihydrostreptomycine	+++	++
florfénicol	++	++
dicyclanil	0	sans AMM
métrifonate	sans AMM	sans AMM
monensin	+	sans AMM
Altrénogest	+	+++

Certaines molécules comme le dicyclanil, le métrifonate, le monensin ou la danofloxacin ne sont pas ou peu prescrites, soit parce que ces molécules n'ont plus d'AMM, soit parce qu'elles ne sont pas ou peu utilisées localement par les vétérinaires.

Cela confirme l'intérêt de mener préalablement des enquêtes auprès des vétérinaires pour identifier si les molécules sont prescrites ou non avant de les rechercher par les analyses. Cela montre aussi la pertinence d'élaborer une liste plus adaptée à un niveau régional voir plus local, comparativement à des données établies au niveau national. Ces quatre molécules figurent en effet dans la liste nationale proposée par l'AFFSA (AFSSA, 2008). L'exemple de la danofloxacin est alors particulièrement marquant car cette molécule est figure dans la liste nationale en tant que représentant de la famille des fluoroquinolones (molécules critiques vis-à-vis de l'antibiorésistance). Or, sur les bassins versants étudiés ce sont la marbofloxacin et l'enrofloxacin qui sont prescrites et que l'on quantifie dans les eaux, de façon notable pour cette dernière.

D'autres molécules sont potentiellement très prescrites en contexte d'élevage bovin et porcin mais n'ont jamais été quantifiées. Il s'agit notamment de l'amoxicilline, de la benzylpénicilline, et du florfenicol. Le tableau suivant (Tableau 36) compare leurs caractéristiques physico-chimiques. Le thiméthoprime possède une solubilité et un log Kow proche de celui de l'amoxicilline. Seul le pKa est plus faible sur l'amoxicilline, ce qui signifie que la molécule sera sous forme anionique dans les gammes de pH des eaux naturelles (5 à 7) alors que le thriméthoprime pourra être sous forme cationique. A priori, le sol possédant une capacité d'échange cationique, le triméthoprime devrait être plus retenue que l'amoxicilline. Hors c'est le contraire qui est observé. Le devenir des molécules dans l'environnement est complexe et leur quantification dans les eaux dépend de leur usage dans l'élevage, de leurs propriétés physico chimiques et des facteurs influençant leur biodégradation (humidité, chaleur) ainsi que des propriétés des sols (pH, matière organique), ou des critères liés au milieu (pente, connectivité des parcelles à la rivière).

**Tableau 36 : Caractéristiques physico-chimiques de 4 molécules quantifiées et non quantifiées**

Nom	Solubilité (25°C)	pKa	Log Kow
Thriméthoprime	400 mg/l	7.12	0.91
Oxytétracycline	500 mg/l à 1000g/l pour certaines formes (chlorhydrate)	3.27, 7.32, 9.11	-1.22
Amoxicilline	3430 mg/l	2.8	0.87
Benzylpénicilline	210 mg/l	2.74	1.83

*Un Log kow négatif signifie que la molécule est hydrophile.*

Ces résultats révèlent bien que les niveaux de prescriptions des molécules sont globalement de bons indicateurs de celles à rechercher, mais qu'ils ne présument en rien de leur présence ni de leur niveau de concentration dans les eaux superficielles. De même, cet indicateur a une valeur qualitative, il peut mettre en avant une tendance d'usage préférentiel d'une molécule pour un type d'élevage par rapport à un autre mais sans comparaison quantitative possible.

Des fréquences de détection importantes des molécules lincomycine, et triméthoprime sont également observées dans des eaux superficielles aux USA (Kolpin *et al.*, 2002).

Tableau 37 : Fréquence de détection d'antibiotiques étudiés dans 139 eaux superficielles aux USA (Kolpin et al., 2002)

	Fréquence %	concentration maximale (ug/L)
Triméthoprim	27,4	0,3
Erythromycine-H	20,2	1,5–1,7
Lincomycine	21,5	1,7
Sulfaméthoxazole	19	0,52
Tylosine	13,5	0,28
Roxithromycine	4,8	0,18
Ciprofloxacine	2,6	0,03
Chlortétracycline	2,4	0,69
Oxytétracycline	1,2	0,34

## VI - CONCLUSION

L'objectif de cette étude a été de caractériser l'occurrence des résidus médicamenteux d'origine vétérinaire dans les eaux de surface en contexte d'élevage en Bretagne.

La forte présence des productions animales (2 millions de bovins, 7,6 millions de porcs, 89 millions de tête de gallus) conduites de manière intensive positionne la Bretagne comme un territoire prépondérant pour l'étude de l'occurrence des résidus médicaments d'origine vétérinaire dans les cours d'eau. Les enjeux y sont d'autant plus importants que le réseau hydrographique est dense et que 80% de l'eau utilisée pour l'alimentation en eau potable de la population provient de prises d'eaux superficielles

Les antiparasitaires et les antibiotiques sont les deux classes les plus consommées sur le territoire national et représentent respectivement 22% et 18% du chiffre d'affaire des médicaments vétérinaires (Virlovet, 2006). La plupart des molécules utilisées en médecine vétérinaire peuvent avoir un usage mixte, à la fois humain et animal. Il est donc difficile d'évaluer la contribution des médicaments utilisés en médecine humaine et vétérinaire dans le niveau de contamination des eaux superficielles drainant des bassins versants agricoles. En effet, ces derniers cumulent différentes sources de contamination humaines (station d'épuration ou assainissement non collectif) et animales (le recyclage agricole des effluents d'élevage sur les sols et le pâturage).

Cette étude a cherché à répondre à trois questions, i) quels sont les niveaux de contamination des eaux par les RMV (fréquence de détection, moyenne et max de concentrations), ii) les contaminations par les RM sont-elles mesurées en même temps que des contaminations fécales, si oui quelle est l'origine de cette contamination fécale (humaine, porcine ou bovine), iii) les transferts de RMV sont-ils favorisés lors des épisodes pluvieux ?

Des prélèvements d'eau de rivière ont été réalisés de mars 2013 à décembre 2014 i) sur l'Observatoire de Recherche en Environnement (ORE) Agrhys Kervidy-Naizin, bassin versant de ,9 km<sup>2</sup> situé dans le Morbihan et marqué par une activité d'élevage intensif, et ii) sur un bassin versant d'Ille et Vilaine de 27 km<sup>2</sup> possédant une station d'épuration. Les prélèvements sur Kervidy-Naizin sont menés manuellement sur trois points, et par le biais d'un préleveur automatique positionné à l'exutoire qui se déclenche en cas de crue. Ce site a été choisi pour étudier l'occurrence des RMV et leur transfert dans le BV en lien avec les pratiques agricoles, Sur le BV en Ille et Vilaine, les prélèvements sont manuels, répartis en différents points du bassin afin d'appréhender la variabilité spatiale de l'occurrence des RMV par le suivi de bassins versants emboîtés (de 5 à 80 km<sup>2</sup>).

Sur les premiers prélèvements, une dizaine de molécules étaient recherchées et peu de molécules détectées. Des enquêtes ont alors été réalisées auprès de vétérinaires afin d'identifier les molécules effectivement prescrites sur les territoires englobant les BV étudiés, en tenant compte de la typologie des élevages. La liste de molécules recherchées a été élargie, passant de 10 à 27. Trois molécules exclusivement à usage humain (carbamazépine et son métabolite epoxy carbamazépine diclofénac) ont été également recherchées.

Sur le BV de Kervidy-Naizin, le lisier de porc est le principal effluent d'élevage recyclé sur les sols, quelques parcelles sont également pâturées par les bovins. 14 molécules ont été quantifiées sur les 30 recherchées. Les quatre molécules les plus quantifiées (triméthoprime, oxytétracycline, enrofloxacin, lincomycine) sont fréquemment prescrites, notamment chez les porcins. D'autres

molécules sont quantifiées plus ponctuellement mais avec des niveaux de concentration beaucoup plus élevés. C'est le cas notamment des antiparasitaires dont l'éprinomectine, à usage exclusivement bovin (fréquence de quantification 31% et moyenne de 415 ng/l). Les molécules critiques, reconnues comme telles en raison de leur importance vis-à-vis de l'antibiorésistance : le ceftiofur, la marbofloxacine et l'enrofloxacin, sont quantifiées. Seule l'enrofloxacin présente un pourcentage de quantification supérieur à 40%, les concentrations restent toutefois inférieures à 60 ng/L. Aucune des trois molécules à usage exclusivement humain n'étant détectée, ces résultats semblent indiquer une contamination des eaux par des RM a priori principalement liée à un usage vétérinaire des médicaments.

Sur le BV d'Ille et Vilaine, de plus grande taille et incluant une STEP, 16 molécules ont été quantifiées au moins une fois sur les 30 molécules recherchées. Deux des trois molécules à usage spécifiquement humain sont fréquemment quantifiées. Le diclofénac est quantifié dans 77% des échantillons ce qui le place en tête des molécules quantifiées. La carbamazépine est quantifiée dans 55% des échantillons. Mais leur niveau de concentration est très comparable aux autres RMV quantifiés. Parmi les molécules utilisées en médecine vétérinaire, un anti-inflammatoire et 3 antibiotiques sont fréquemment quantifiés : la flunixin (69, %), la sulfaméthazine (67%), la lincomycine (56%), la fluméquine (55%). Toutes ces molécules sont à usage vétérinaire et humain à l'exception de la sulfaméthazine qui est exclusivement à usage vétérinaire. La station d'épuration n'est pas la source principale de contamination sur ce BV, car les contaminations sont déjà avérées et du même ordre de grandeur sur les têtes de bassins versants, en amont de la STEP. Elles sont liées à la fois à l'activité agricole et à l'assainissement non collectif.

Les molécules les plus fréquemment quantifiées (sulfaméthazine, lincomycine, flunixin, carbamazépine et diclofénac) sur le BV de 27 Km<sup>2</sup> sont également quantifiées au droit de la station du réseau national de bassin (RNB) sur le Néal à Médréac (BV dd'environ 80 km<sup>2</sup>). Mais l'étude a aussi montré la variabilité spatiale du niveau de contamination entre deux sous-bassins versants a priori proches en termes d'élevage.

Les teneurs cumulées de toutes les molécules quantifiées varient de 1 à 3178 ng/L (3,1 µg/L) sur le BV de Kervidy-Naizin et de 8 à 2500 ng/L (2,5 µg/l) sur le BV d'Ille et Vilaine. Mais sur Naizin, seulement un quart des échantillons ont des concentrations cumulées supérieures à 100 ng/L, contre plus de la moitié sur l'autre BV.

Dans tous les cas, les valeurs cumulées maximales (supérieures au µg/L) de résidus de médicaments dans les eaux correspondent au transfert préférentiel d'une ou deux molécules, souvent des antiparasitaires, et sont associées à des contaminations fécales fortes et d'origine animale (concentrations en *E. coli* supérieures à 10<sup>4</sup>) pouvant indiquer un transfert par ruissellement des eaux sur des parcelles épandues ou pâturées

Cependant, une contamination fécale des eaux élevée n'est pas systématiquement associée à une contamination des eaux par les résidus médicamenteux. Et pour des niveaux de contaminations fécales moyens, il est difficile de trouver une corrélation entre contamination fécale et contamination par les RM.

Les valeurs cumulées uniquement des molécules antibiotiques s'échelonnent entre 0 et 630 ng/l sur Kervidy- Naizin et 0 à 597 ng/l sur le site d'Ille et Vilaine pour des contaminations fécales qui peuvent être faibles.

Sur le BV de Kervidy-Naizin, les teneurs cumulées en antibiotiques les plus élevées sont associées à des contaminations fécales d'origine porcine, ce qui est cohérent avec la nature des épandages majoritaires. Sur le site d'Ille et Vilaine, *E coli* et les entérocoques sont d'origines animale et humaine. Les contributions bovines et humaines prédominent sur l'année mais au printemps, le milieu est impacté par les épandages de lisiers de porcs.

Pour un échantillon donné, il est difficile d'associer l'origine de ces contaminations fécales définie par les stanols (humaine, bovine, ou porcine) et l'usage (humain ou animal) des molécules médicamenteuses quantifiées, avec l'hypothèse sous-jacente d'un co-transport entre les deux. Cependant, on met en évidence que la quantification récurrente des molécules exclusivement humaines (carbamazépine et diclofénac) sur le BV d'Ille et Vilaine est bien en cohérence avec une origine humaine des contaminations fécales fréquemment identifiée en différents points du BV.

Le bilan des 7 crues prélevées par préleveur automatique, révèle en général au sein de la crue, une forte variabilité temporelle des concentrations et de la présence/absence de chaque molécule quantifiée. Seule une crue concomitante avec un épandage montre une récurrence des molécules et des niveaux de concentration élevés sur l'ensemble de l'épisode. Mais cette situation reste exceptionnelle. Cela laisse supposer que le ruissellement sur des surfaces récemment épandues n'est pas la principale voie de transfert. Les transferts de surface peuvent également entraîner des molécules déjà stockées dans les sols. De même, des molécules stockées dans les sédiments peuvent être remobilisées, en dehors des périodes d'épandage où les contaminations fécales sont plus faibles. Dans l'interprétation de cette variabilité, peut aussi s'ajouter des problèmes liés aux limites analytiques pour des concentrations proches des limites de quantification qui s'accompagne d'une forte incertitude sur la mesure.

De ce fait, en l'état actuel des connaissances, caractériser les surfaces contributives aux transferts des RMV vers les eaux de surface reste encore irréalisable même sur de petits bassins versant.

Cette étude permet, in fine, de proposer une démarche aux gestionnaires de la ressource en eau pour diagnostiquer les pollutions diffuses par les résidus médicamenteux vétérinaires sur leur territoire. Une liste de molécules a été établie par enquête auprès des vétérinaires. La représentativité de l'échantillon permet de proposer une liste de molécules adaptée aux élevages porcins et bovins lait situés en contexte breton. Les molécules à usage vétérinaire quantifiées sur les deux sites figurent bien dans la liste issue des enquêtes. Cela valide donc la pertinence de cette liste établie. Cependant, certaines molécules très prescrites dans les élevages ne sont pas disponibles dans les menus analytiques des laboratoires interrogés (colistine, néomycine, dihydrostreptomycine, sulfadiméthoxine, toltrazuril). Cette liste peut donc i) servir de base et être validée plus localement auprès des principaux vétérinaires intervenant sur un territoire donné et en tenant compte des spécificités d'élevage, ii) évoluer en fonction des progrès analytiques réalisés par les laboratoires.

Cette étude a permis de comparer un suivi par préleveur automatique et par prélèvements ponctuels effectués manuellement. Les résultats montrent une forte variabilité entre tous les échantillons mais il ressort de l'analyse que les principales molécules quantifiées en échantillonnage ponctuel ont des fréquences de quantification et des niveaux de concentrations comparables à celles quantifiées en crue.

Ainsi, seul un suivi d'un minimum de 10 prélèvements répartis sur l'année, en privilégiant toutefois les épisodes pluvieux et les périodes d'épandages, permettra d'intégrer la variabilité des niveaux de contamination des eaux par les RM et de refléter ainsi un niveau de contamination moyen du BV. En effet, l'occurrence des RM dans les eaux de surface est influencée par les modes d'administration des médicaments, les pratiques agricoles (pâturages et épandage), et le stockage des résidus dans les sols et les sédiments.

Les concentrations cumulées les plus élevées sont mesurées en période de crue et lors des périodes d'épandages (printemps, automne). Le pâturage y contribue également. Et les modes d'administration en pour on d'antiparasitaires (application externe sur le dos de l'animal) comme l'éprinomectine, peuvent induire un entraînement de la molécule par les pluies directement vers la rivière. Les campagnes d'échantillonnage devront donc cibler de manière privilégiée le printemps et l'automne.

En complément de ce rapport, un guide méthodologique est également disponible.

## VII - GLOSSAIRE

**AMM** : Toute spécialité thérapeutique (médicament) doit disposer d'une autorisation de mise sur le marché (AMM) avant d'être commercialisée en Europe. L'Anses, via l'Agence nationale du médicament vétérinaire (ANMV) met à disposition sur son site Internet une nouvelle version de l'index des médicaments vétérinaires autorisés en France. Celle-ci donne accès aux résumés des caractéristiques du produit (RCP), ainsi qu'aux rapports publics d'évaluation (RPE) lorsqu'ils sont disponibles.

**Med'vet** : le recueil des spécialités à usage vétérinaire

## VIII - SIGLES ET ABREVIATIONS

**AIEMV** : association interprofessionnelle d'étude du médicament vétérinaire

**AINS** : anti-inflammatoire non stéroïdien

**AMM** : autorisation de mise sur le marché

**ANSES** : agence nationale de sécurité sanitaire de l'alimentation, de l'environnement et du travail

**ATB** : antibiotique

**ATC** : anticoccidiens

**ATP** antiparasitaire

**BV** : bassin versant

**ORP** : Observatoire des résidus de pesticides

**RM** : résidus médicamenteux

**RMV** : résidus médicamenteux d'origine vétérinaire

**RPG** : registre parcellaire graphique

**SAU** : surface agricole utile

## IX - BIBLIOGRAPHIE

**AFSSA, 2008** : Hiérarchisation des résidus de médicaments d'intérêt pour l'analyse des ressources et des eaux traitées. p. 31.

**ANSES, 2010** : Exposition de la population générale aux résidus de pesticides en France Synthèse et recommandations du comité d'orientation et de prospective scientifique de l'observatoire des résidus de pesticides (ORP) - Rapport scientifique. Octobre 2010, Edition scientifique. p. 354.

**ANSES, 2011** : Campagne nationale d'occurrence des résidus de médicaments dans les eaux destinées à la consommation humaine - ressources en eaux brutes. Rapport final.

**Aga D., Goldfish R. Kulshrestha P. 2003.** Application of ELISA in determining the fate of tetracyclines in land-applied livestock wastes. Analyst 128 : 658-662.

**Akkal-Corfini N., 2010** : Description des systèmes d'exploitation du bassin versant de Naizin. Rapport NitroEurope.

**Burkhardt M., Stamm C., Waul C. Singer H., Muller S. 2005.** Surface runoff and transport of sulfonamide antibiotics and tracers on manured grassland. Journal of Environmental Quality, 34 : 1363-1371.

**Capdeville M.J., 2011** : Etude des cycles biogéochimiques des contaminants organiques dits « émergents » dans les systèmes aquatiques. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux I.

**Carrera L., 2013** : Transfert de résidus médicamenteux et contamination fécale dans les bassins versants agricoles. Mémoire de fin d'études, Master de l'Institut Supérieur des Sciences Agronomiques, Agroalimentaires, Horticoles et du Paysage, Agrocampus-Ouest , 51 pages.

**Cazeau G., Chazel M., Jarrige N., Sala C., Calavas D. et Gay E., 2010** : Utilisation des antibiotiques par les éleveurs en filière bovine en France. 17<sup>e</sup> journées Rencontre Recherche Ruminants. 71-74.

**Chauvin C., Madec F. et Sanders P., 2010** : Etude de l'usage des antibiotiques en aviculture – une approche pharmaco-épidémiologique. Bulletin épidémiologique n°37. 5-6.

**Chauvin C., Le Bouquin S. et Sanders P., 2012** : Usage des antibiotiques en filières porcine, avicole et cunicole en France. Résultats d'enquêtes. Bulletin épidémiologique santé animale – alimentation. 12-15. <hal-00751500>.

**Chevance A. et Moulin G., 2014** : Suivi des ventes de médicaments vétérinaires contenant des antibiotiques en France en 2013 – volumes et estimation de l'exposition des animaux aux antibiotiques. Rapport annuel, ANSES – Agence nationale du médicament vétérinaire, p. 73.

**Dagnac T., 2005** : analyse de polluant organiques et organométalliques dans l'environnement. Rapport final, BRGM/RP-53749-FR.

**De Lavenne A., 2013** : Modélisation hydrologique à base géomorphologique de bassins versants non jaugés par régionalisation et transposition d'hydrogramme. Thèse Agrocampus Ouest, p. 226.

**De Lavenne A., Boudhraâ H. et Cudennec C., 2015** : Streamflow prediction in ungauged basins through geomorphology-based hydrograph transposition. Hydrology Research, 46 (2) : 291-302.

**Derrien M., 2011** : Validation de l'utilisation des stéroïdes en tant qu'outil de traçage de l'origine des contaminations fécales des eaux de surface. Thèse Université de Rennes I, p. 275.

- Derrien M., Jardé E., and Gruau G., 2012** : Origin of fecal contamination in waters from contrasted areas : stanols as microbial source tracking markers. *Water Research*, 46 (13) : 4009-4016.
- Jaffrezic A, Jardé A., Pourcher A-M., Gourmelon M., Caprais M-P., Heddadj D., Cottinet P., Bilal M., Derrien M., Marti R. and Mieszkin S., 2011** : Microbial and chemical markers: runoff transfer in animal manure-amended soils. *Journal of Environmental Quality*, 40 (3) : 959-968.
- Durand F., 2014** : L'exercice de la médecine vétérinaire par des structures non vétérinaires. Les évolutions envisagées de l'article R.242-50 du Code rural et de la pêche maritime. Rapport n°14071, Conseil Général de l'Alimentation de l'Agriculture et des Espaces Ruraux, Ministère de l'Agriculture de l'Agroalimentaire et de la Forêt, p. 68.
- Forster M., Iqbal V., Lamshoft M., Groeneweg J., Zuhlke S., Spiteller M., Krauss M., Kaupenjohann M., Amelung W., 2009.** Sequestration of manure-applied sulfadiazine residues in soils. *Environmental Science and Technology*, 43 : 1824-1830.
- Gascuel-Oudoux C., Massa F., Durand P., Merot P., Troccaz O., Baudry J. et Thenail C., 2009** : Framework and tools for agricultural landscape assessment relating to water quality protection. *Environmental Management*, 43 : 921-935.
- Gay E., Cazeau G., Jarrige N. et Calavas D., 2012** : Utilisation des antibiotiques chez les ruminants domestiques en France : résultats d'enquêtes de pratiques auprès d'éleveurs et de vétérinaires. *Bulletin épidémiologique, santé animale et alimentation / spécial Antibiotiques et Antibiorésistances* , 53 : 8-11.
- Gil-Diaz M., Perez-Sanz A., Martin M. Lobo M., 2011.** Potential diffusion of Domamectin into a soil amended with female pig manure. A field experiment. *Journal of agricultural and food chemistry*, 59 : 10635-10640.
- Gonzales S. Ramon L. Cortina J., 2012.** Presence and biological effects of emerging contaminants in Llobregat River Basin: a review. *Environmental pollution*. : 83-92.
- Halling-Sorensen B., 2000.** Algal toxicity of antibacterial agents used in intensive farming. *Chemosphere*, 40 (7) : 731-739.
- Hamscher G., Sczesny S., Hoper H., and Nau H., 2002** : Determination of Persistent Tetracycline Residues in Soil Fertilized with Liquid Manure by High-Performance Liquid Chromatography with Electrospray Ionization Tandem Mass Spectrometry. *Analytical Chemistry*, 74 (7) : 1509-1518.
- Hemonic A., Chauvin C. et Corrége I., 2014** : Les utilisations d'antibiotiques en élevage de porcs : motifs et stratégies thérapeutiques associées. *Journées Recherche Porcine*, 46 : 135-140.
- Jaffrezic A., Mompelat S., Jardé E. et Le Bot B., 2013** : Quantification des résidus pharmaceutiques à usage vétérinaire sur l'ORE AGRHYS, BV de Kervidy-Naizin et pratiques vétérinaires. Rapport final, p. 33.
- Kay P., Blackwell P. Boxall A., 2004.** Fate and transport of veterinary antibiotics in drained clay soils. *Environmental Toxicology Chemistry*. 23 (5) : 1136-1144.
- Kolpin D. W., Furlong E. T., Meyer M. T., 2002** : Pharmaceuticals, Hormones, and Other Organic Wastewater Contaminants in U.S. Streams, 1999-2000: A National Reconnaissance. *Environmental Science and Technology*, 36 : 1202-1211.

**Li Y., Zhang X., Li W., Lu X., Wang J., 2013** The residues and environmental risks of multiple veterinary antibiotics in animal faeces. *Environmental Monitoring Assessment*, 185 : 2211-2220.

**Meyer B. Pailler J-Y., Guignard C., Hoffmann L. Krein A. 2011.** Concentrations of dissolved pesticides and pharmaceuticals in a small river in Luxembourg. *Environmental Monitoring Assessment*, 180 : 127-146.

**Molenat J. et Gascuel-Oudou C., 2002 :** Modelling flow and nitrate transport in groundwater for the prediction of water travel times and of consequences of land use evolution on water quality. *Hydrological Processes*, 16 (2): 479-492.

**Pailler J-Y., Guignard C., Meyer B., Iffly J-F., Pfister L., Hoffmann L., Krein A. 2009.** Behaviour and fluxes of dissolved antibiotics, analgesics and hormones during flood events in a small heterogeneous catchment in the grand duchy of Luxembourg. *Water Air Soil Pollution*. 203 : 79-98.

**Py J-S., Rosin C., Hollard C., Clavos M-C., Rimlinger N., Piat A., Garnier A., et Munoz J-F., 2009 :** Stratégie d'échantillonnage pour la campagne nationale de recherche des résidus de médicaments dans l'eau. *Bulletin épidémiologique*, 34 : 4-6.

**Rosendahl I., Siemens J., Kindler R., Groeneweg J., Zimmermann J., Czerwinski S., Lamshoff M., Laabs V., Wilke B., Vereecken H. Amelung W. , 2012.** Persistence of the fluoroquinolone antibiotic difloxacin in soil and lacking effects on nitrogen turnover. *Journal of environmental quality*, 41 : 1275-1283.

**Sarmah A., Meyer, M. Boxall A., 2006 :** A global perspective on the use, sales, exposure pathways, occurrence, fate and effects of veterinary antibiotics (Vas) in the environment. *Chemosphere*, 65: 725-759.

**Tete E., 2014 :** Dynamique intra-annuelle de la minéralisation du carbone organique dans les sols minéraux hydromorphes et à l'échelle du versant agricole. Thèse de Doctorat. AGROCAMPUS OUEST, Université Européenne de Bretagne). p. 152.

**Togola A. et Desforges M., 2009 :** Substances pharmaceutiques à usage vétérinaire dans les effluents agricoles : synthèse bibliographique., Rapport BRGM/RP-58021-FR, 62 pages, 11 illustrations, 1 annexe.

**Virlovet G., 2006 :** Résidus de médicaments dans les eaux : contribution des activités humaines et vétérinaires. *Environnement, Risques et Santé*, Vol 5, n°4. 239-241.

**Walter, C. et Curmi P., 1998 :** Les sols du bassin versant du Coet-Dan ; organisation, variabilité, spatiale et cartographie. C. Cheverry, Agriculture intensive et qualité des eaux.

**Zarfl C., Klasmeier J., Matthies M. A., 2009.** A conceptual model describing the fate of sulfadiazine and its metabolites observed in manure-amended soils. *Chemosphere*, 77, 720-726.

## X - TABLE DES ILLUSTRATIONS

### Liste des figures

Figure 1 : Evolution de la part des familles d'antibiotiques dans le poids vif traité des bovins (%) (Chevance et Moulin, 2014) .....	20
Figure 2 : Evolution de la part des familles d'antibiotiques dans le poids vif traité des porcs .....	21
Figure 3 : Evolution de la part des familles d'antibiotiques dans le poids vif traité des volailles .....	21
Figure 4 : Détail des différentes substances "pesticides" selon l'ORP ( <a href="http://observatoire-pesticides.gouv.fr/index.php?pageid=103">http://observatoire-pesticides.gouv.fr/index.php?pageid=103</a> ) .....	25
Figure 5 : Localisation des bassins versants étudiés au sein de la région Bretagne.....	32
Figure 6 : Température moyenne et pluviométrie annuelle sur le bassin versant de Kervidy-Naizin sur la période 1994-2013 (dans Tete, 2014) .....	33
Figure 7 : Ripisylve à Kervidy (photo de gauche) et vue générale d'un versant (photo de droite)..	34
Figure 8 : Station de jaugeage des débits à la sortie du bassin versant de Naizin-Kervidy (à gauche); Versant de Kerolland avec zone saturée au premier plan (au centre), (c) Versant de Guériniec avec piézomètre .....	34
Figure 9 : Carte des pentes sur le bassin versant et localisation des sols hydromorphes.....	36
Figure 10 : Localisation des bâtiments d'élevage et typologie .....	37
Figure 11 : Nature du substrat géologique et familles de sols dominantes rencontrés sur le bassin versant de Médréac (d'après le référentiel régional pédologique) .....	40
Figure 12 : Localisation des bâtiments et typologie des élevages .....	41
Figure 13 : Localisation des cliniques vétérinaires exerçant en médecine rurale aux abords du BV de la Haute Rance .....	44
Figure 14 : Dates d'échantillonnage et périodes d'épandage, sur les trois épisodes hydrologiques entre 2013 et 2014 sur le BV de Kervidy-Naizin .....	47
Figure 15 : Localisation des points de prélèvement sur le bassin versant de Médréac.....	48
Figure 16 : Dates d'échantillonnage en fonction de l'hydrogramme estimé, sur les trois épisodes hydrologiques entre 2013 et 2014 sur le bassin versant de Médréac.....	50
Figure 17 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P_date) et les prélèvements en crue (C_date) pour l'année 2014.....	79
Figure 18 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P_date) et les prélèvements en crue (C_date) pour l'année 2014 – ( <i>l'éprinomectine, l'ivermectine et l'ampicilline ont été supprimées afin d'améliorer la lisibilité du graphique</i> ) .....	79
Figure 19 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P_date) et les prélèvements en crue (C_date) pour l'année 2013.....	80

Figure 20 : Comparaison des concentrations mesurées à l'exutoire pour les prélèvements ponctuels (P_date) et les prélèvements en crue (C_date) pour l'année 2013 – ( <i>l'éprinomectine a été supprimée afin d'améliorer la lisibilité du graphique</i> ) .....	81
Figure 21 : Teneurs en <i>E. coli</i> et entérocoques dans les échantillons prélevés ponctuellement ou par préleveur automatique (crue) .....	83
Figure 22 : Teneurs en <i>E. coli</i> aux trois points de prélèvement sur le BV de Kervidy-Naizin .....	83
Figure 23 : Origine des contaminations fécales sur le BV de Kervidy-Naizin .....	84
Figure 24 : Relation entre les teneurs cumulées de tous les RM et les concentrations en <i>E. coli</i> , pour chaque échantillon prélevé ponctuellement ou par préleveur .....	86
Figure 25 : Relation entre les teneurs cumulées en résidus de médicament et les concentrations en <i>E. coli</i> a) et b), en c) et d), seule la somme des antibiotiques est présentée. Lien avec l'origine de la contamination fécale. Sur les graphes b) et d) les points extrêmes ont été supprimés pour mieux voir la distribution.....	87
Figure 26 : Pourcentage de quantification des molécules en fonction de la limite de quantification .....	91
Figure 27 : Influence de la STEP sur les teneurs cumulées en résidus de médicaments .....	97
Figure 28 : Comparaison des concentrations de huit molécules analysées à l'amont et à l'aval de la STEP .....	98
Figure 29 : Teneurs en <i>E. coli</i> comparées entre l'amont et l'aval de la STEP (a) et entre les points de prélèvement amont nord et amont sud (b).....	101
Figure 30: Relation entre les teneurs cumulées en résidus de médicament et les concentrations en <i>E. coli</i> pour les différents points de prélèvements .....	103

## Liste des tableaux

Tableau 1 : Répartition des exploitations selon leur orientation économique.....	18
Tableau 2 : Répartition des ventes 2013 entre les différentes espèces en tonnage de matière active et en quantité de matière active par kilogramme animal (Chevance et Moulin, 2014) .....	20
Tableau 3 : Répartition des ventes 2013 entre les différentes espèces en tonnage de poids vif traité et en indicateur du niveau de l'exposition ALEA).....	24
Tableau 4 : gamme des concentrations en antibiotiques dans les effluents d'élevage (Li et al., 2013) .....	29
Tableau 5 : Description de l'instrumentation et des caractéristiques des suivis hydrologique et hydrochimique .....	35
Tableau 6 : Indications concernant des dates d'épandages connues en 2014 .....	38
Tableau 7: Composition de l'échantillon de vétérinaires enquêtés .....	43
Tableau 8 : Caractéristiques des prélèvements et fréquence d'échantillonnage sur le BV de Kervidy-Naizin.....	46
Tableau 9 : Les dates de prélèvements sur le BV de Médréac.....	49
Tableau 10 : Liste des molécules recherchées dans le cadre du projet REMEDES en fonction de chaque laboratoire .....	51
Tableau 11: Indicateur du niveau de prescription des molécules antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés bovins lait .....	55
Tableau 12: Indicateurs du niveau de prescription des molécules non antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés bovins lait .....	57
Tableau 13: Indicateurs du niveau de prescription des molécules antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés porcins.....	59
Tableau 14: Indicateurs du niveau de prescription des molécules non antibiotiques d'après les cinq enquêtes réalisées auprès des vétérinaires spécialisés porcins.....	60
Tableau 15: Indicateurs du niveau de prescription des molécules antibiotiques d'après une enquête réalisée auprès d'un vétérinaire spécialisé en volaille de chair.....	62
Tableau 16: Indicateurs du niveau de prescription des molécules non antibiotiques d'après une enquête réalisée auprès d'un vétérinaire spécialisé en volaille de chair.....	63
Tableau 17 : Usage des molécules antibiotiques dans les élevages bovins lait, porcins et avicoles et identification des molécules à rechercher prioritairement dans les eaux des bassins versants étudiés en fonction des menus analytiques proposés par les laboratoires .....	68
Tableau 18 : Usage des molécules non-antibiotiques dans les élevages bovins et porcins et identification des molécules à rechercher prioritairement dans les eaux des bassins versants étudiés en fonction des menus analytiques proposés par les laboratoires. ....	70
Tableau 19 : Fréquence de quantification et niveaux de concentration pour les 14 molécules quantifiées lors des prélèvements ponctuels sur le BV de Kervidy-Naizin .....	74

Tableau 20 : Concentrations observées pour les principales molécules du bassin versant de Naizin sur les points 1, 2 et 3.....	76
Tableau 21 : Fréquence de quantification et niveau de concentration pour les 14 molécules quantifiées lors des prélèvements en crue sur le BV de Kervidy-Naizin, comparaison avec les prélèvements ponctuels .....	77
Tableau 22 : Origine des contaminations fécales aux différents points de prélèvements et sous-BV correspondants .....	85
Tableau 23 : Occurrence de l'éprinomectine et origine de la contamination fécale sur le BV de Kervidy-Naizin.....	88
Tableau 24 : Synthèse des résultats obtenus pour chaque molécule quantifiée sur le bassin versant de Kervidy-Naizin et indicateur du niveau de prescription globale .....	89
Tableau 25 : Fréquence de quantification et niveaux de concentration pour les 16 molécules quantifiées .....	90
Tableau 26 : Concentrations observées pour les principales molécules du bassin versant de Médréac sur les points 1, 2 et 3 .....	93
Tableau 27 : Teneurs cumulées (en ng/L) sur les différents points au cours des 15 campagnes de prélèvements .....	94
Tableau 28: Pourcentage du bassin versant occupé par les trois classes de pente .....	94
Tableau 29 : Concentrations observées pour les principales molécules présentes aux points 3, 4, et 5 sur plusieurs dates de prélèvement.....	95
Tableau 30 : Comparaison des points de prélèvement 1, 2 6 et 7 pour analyser l'effet "taille du bassin versant" .....	99
Tableau 31 : Origine de la contamination fécale (humaine, porcine et bovine) sur les points de prélèvements du bassin versant de Médréac.....	102
Tableau 32 : Occurrence de l'éprinomectine et origine de la contamination fécale.....	103
Tableau 33 : Synthèse des résultats obtenus pour chaque molécule quantifiée sur le bassin versant de Médréac et indicateur du niveau de prescription globale .....	104
Tableau 34 : Comparaison des molécules quantifiées sur les deux bassins-versants étudiés et des niveaux de prescriptions d'après les enquêtes.....	105
Tableau 35 : Liste des molécules jamais quantifiées dans les échantillons et comparaison avec leur niveau de prescription .....	106
Tableau 36 : Caractéristiques physico-chimiques de 4 molécules quantifiées et non quantifiées	107
Tableau 37 : Fréquence de détection d'antibiotiques étudiés dans 139 eaux superficielles aux USA (Kolpin et al., 2002).....	108

**XI - ANNEXES**

**Annexe 1 : Liste des médicaments vétérinaires prioritaires à rechercher dans les eaux (AFSSA, 2008)**

Classes thérapeutiques	Molécules	Classes thérapeutiques	Molécules
ANTIBIOTIQUES	Colistine	ANTICOCCIDIENS	Amprolium
	Dihydrostreptomycine Sulfate		Semduramicine
	Ampicilline		Narasin
	Oxytétracycline		Maduramicine
	Cefquinome Sulfate		Monensin
	oxytétracycline	ANTIPARASITAIRES	Pipérazine
	Benzylpénicilline procaine (Pénicilline G)		Levamisole
	Lincomycine		Dicyclanil
	Danofloxacin		Clorsulon
	Florfénicol		Parconazole
	Sulfadimérazine		Metrifonate
			HORMONE

## Annexe 2 : Questionnaire type - enquête auprès des vétérinaires (années 2014 et 2015)

### Enquête vétérinaire - Questionnaire

Date :

#### *Informations générales*

Vétérinaire :

Spécialité :

Coordonnées (mail) :

Zone d'intervention (cf. carte) :

Début de votre activité ? :

Sur ce secteur ? :

Taille des élevages :

Type d'élevage :

#### *Détail des molécules prescrites*

(Cf tableau)

#### *Interventions sur un élevage (par type d'élevage)*

Le troupeau entier est-il au moins traité une fois chaque année ? Quels sont les traitements/maladies récurrentes ? Y-a-t-il une période plus sensible ? Interventions du vétérinaire sur les élevages (autonomie des éleveurs) ?

#### *Evolution des pratiques*

Dynamique vers une diminution de l'usage des médicaments (et antibiotiques) ? Modification de la conduite des élevages ? ...

*Molécules utilisées (semi quantitatif)*

Classes thérapeutiques	Molécules	prescrit (0, +, ++, +++)	administration	Maladie/traitement individuel ou troupeau /saisonnalité	molécule récente/ancienne (mise sur le marché)
ATB	Chlortetracycline				
	Doxycycline				
	Tétracycline				
	Oxytetracycline				
	Sulfamethazine				
	Sulfaméthoxypyridazine				
	Sulfadiazine				
	Sulfadiméthoxine				
	Sulfadoxine				
	Sulfaguamidine				
	Trimethoprim				
	Céfalexine				
	Céfapirine				
	Cefquinome				
	Ceftiofur				
	Céfoperazone				
	Céfalonium				
	Amoxicilline				
	Ampicilline				
	Cloxacilline				
	Benzylpénicilline				
	Lincomycine				
	Spiramycine				
	Tylosine				
	Tilmicosine				
	Tulathromycine				
	Tildiprosine				
	Gamithromycine				
Tiamuline					

	Acide oxolinique			
	Fluméquine			
	Danofloxacin			
	Enrofloxacin			
	Marbofloxacin			
	Dihydrostreptomycine			
	Streptomycine			
	Apramycine			
	Erythromycine			
	Gentamicine			
	Kanamycine			
	Spectinomycine			
	Néomycine			
	Florfenicol			
	Colistine			
	Rifaximine			

ATP	Dicyclanil			
	Lévamisole			
	Doramectine			
	Ivermectine			
	<i>Eprinomectine</i>			
	Moxidectine			
	Albendazole			
	Fenbendazole			
	Flubendazole			
	Oxibendazole			
	Phoxim			
	Pipérazine			
	Amitraz			
	Deltaméthrine			
	<i>Dimpylate (diazinon)</i>			

ATC	Monensin				
	Decoquinate				
	Diclarzuril				
	Toltrazuril				

AINS	Flunixin				
	Acide acétylsalicylique				
	Paracétamol				
	Dexaméthazone				
	Meloxicam				
	Acide tolfénamique				
	Ketoprofene				

Hormones	Altrénogest				
	Dinoprost				
	Cloprostérol				
	Alphaprostol				
	PMSG				
	HCG				
	Sérotonine				
	Oxytocine				
	Buséreléline				
	Progestérone				
	Norgestomet				

## Annexe 3 : Protocole de prélèvements des échantillons pour l'analyse des résidus de médicaments et protocoles d'analyse des différents laboratoires, pour l'analyse des indicateurs et marqueurs de contamination fécale

### *Protocoles de prélèvement et d'analyses pour les résidus de médicaments - LERES*

Pour le suivi des résidus médicamenteux, un litre de solution est prélevé et stocké dans un flacon en verre brun non silanisé et conservé au froid jusqu'au retour au laboratoire. Le principe du dosage analytique mis en œuvre est une extraction sur support solide (cartouche Oasis HLB, 200mg, 6ml) et une analyse par chromatographie liquide couplée à la spectrométrie de masse en tandem (MS/MS). L'échantillon d'eau est ajusté à 500 mL et filtré à 0,7 µm. Le pH est ajusté à 6 par de l'acide formique et 25 µL de solution d'étalons internes et une micro spatule de poudre de nitrite de sodium sont ajoutés à la solution. L'extraction des échantillons, blanc et point de gamme est réalisée sur support solide et par l'utilisation d'un automate ASPEC GX-274. Les différentes étapes de cette méthode sont :

- Conditionnement des cartouches par un mélange dichlorométhane/acétonitrile 60/40 à 5 mL/min, puis 6 ml d'eau ultra pure à 6 mL/min.
- Dépôt de l'échantillon : 500 mL d'échantillon sont pompés (débit = 10 mL/min), déposés sur la cartouche.
- Rinçage de la cartouche : 10 mL d'eau ultrapure/méthanol 95 :5 (v/v) à 6 mL/min.
- Séchage des cartouches à l'azote pendant 15 minutes.
- Elution des composés : Les analytes sont élués par 5 mL de mélange dichlorométhane/acétonitrile 60/40 à 2 mL/min. L'écoulement du solvant au travers de la cartouche se fait par pressurisation.

L'extrait est évaporé à la goutte au bain-marie à 30°C et sous jet d'azote, puis repris dans 0,5 mL de la phase mobile chromatographique (85/15 eau ultra-pure/acétonitrile+ 0,01% d'acide formique). Le système utilisé est le RRLC (Agilent 1200 Series) avec passeur d'échantillons couplé à un spectromètre de masse triple quadripôle (Agilent 6460 TripleQuad) ayant une source Jet Stream

### *Protocoles de prélèvement et d'analyses pour les résidus de médicaments -LABOCEA*

Un litre de solution est prélevé et stocké dans un flacon en verre brun non silanisé. Il est ensuite filtré à 0,7 µm et conservé au congélateur avant d'être déposé au LABOCEA. Les analyses sont ainsi effectuées sur des lots d'échantillon groupés (de l'ordre d'une vingtaine). Le protocole d'analyse est résumé ci-après :

- Extraction liquide solide de 400 à 500 ml d'eau décantée sur cartouche SPE (extraction phase solide) ;

- Elution, concentration de l'extrait,
- Injection en LC MSMS sur colonne C18 ;
- Identification et Quantification avec 2 transitions MRM par molécule

L'incertitude de la mesure à la limite de quantification est évaluée à 35% pour chaque molécule

*Protocoles de prélèvement et d'analyse pour les indicateurs de contamination fécale (LERES)*

**E. coli par microplaques** : Norme NF EN ISO 9308-3 : Mars 1999. L'échantillon à analyser est dilué puis ensemencé dans une série de puits d'une microplaque contenant le milieu de culture déshydraté et les dilutions sont adaptés au niveau de contamination supposé de l'eau prélevée. La microplaque est examinée sous rayonnement ultra-violet à 366 nm à l'obscurité après au minimum 36 heures et au maximum 72 heures d'incubation à 44°C +/-0.5°C. La présence d'Escherichia coli est indiquée par une fluorescence bleue. A partir du nombre caractéristique obtenu, une analyse statistique fondée sur la loi de Poisson, permet de dénombrer les entérocoques dans l'eau analysée.

**Entérocoques par microplaques**, Norme NF EN ISO 7899-1: Mars 1999. Même principe analytique que les *E. coli*.

La limite de quantification pour les Escherichia Coli et entérocoques est fixée à 38 microplaques/100 mL.

*Protocoles de prélèvement et d'analyse pour les marqueurs de contamination fécale (les stanols) ;*

Les stanols sont filtrés à 0,7 µm puis extraits grâce une extraction sur phase solide et enfin analysés par chromatographie couplé à la spectrométrie de masse. Le protocole d'extraction et d'analyse des stanols est détaillé dans Derrien (2011). La limite de quantification des stanols est fixée à 0,05 µg/L par composé.

## Annexe 4 : Résultats des campagnes d'analyses pour les prélèvements ponctuels sur le bassin versant de Kervidy-Naizin

Les seize molécules suivantes ne figurent pas dans le tableau car elles n'ont pas été quantifiées sur ce bassin versant, lors des campagnes de prélèvements ponctuels :

- tétracycline,
- sulfadiazine
- ceftiofur,
- ampicilline,
- amoxicilline,
- benzylpénicilline,
- danofloxacin,
- florfenicol,
- dicyclanil,
- métrifonate,
- monensin,
- kétoprofène,
- altrenogest
- carbamazépine,
- époxy-carbamazépine,
- diclofénac.

### **Sigle utilisé**

B : molécule à usage bovins

P : molécule à usage porcins

V : molécule à usage volaille

H : molécule à usage humain

 : point non échantillonné lors de campagne de prélèvement à la date indiquée

« / » : molécule non analysée dans l'échantillon

Date prélèvement	Point de prélèvement	débit moy (L/s)	Oxytétracycline (B/P/V/H)	Doxycycline (B/P/V/H)	sulfaméthazine (B/P/V)	triméthoprim (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Flumequine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacine (B/P)	Levamisole (B/P/V/H)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	somme en µg/L	somme des ATB lytétrinaires en µg/L
14/03/2013	1 Kervidy exu	156	/	/	<5	/	<5	/	<5	/	/	/	<5	/	/	/	<LQ	<LQ
14/03/2013	2 Mercy		/	/	<5	/	<5	/	<5	/	/	/	<5	/	/	/	<LQ	<LQ
14/03/2013	3 Gueriniac		/	/	<5	/	<5	/	<10	/	/	/	7	/	/	/	7	<LQ
09/04/2013	1 Kervidy exu	272	170	/	/	/	/	<50	/	/	10	<10	/	<100	<50	<10	180	180
09/04/2013	2 Mercy		<50	/	/	/	/	<50	/	/	15	<10	/	<100	50	<10	65	15
09/04/2013	3 Gueriniac		<50	/	/	/	/	65	/	/	15	<10	/	<100	<50	<10	80	80
27/05/2013	1 Kervidy exu	16	<50	/	<10	/	/	<50	/	/	<10	<10	/	<100	<50	<10	<LQ	<LQ
27/05/2013	2 Mercy																	
27/05/2013	3 Gueriniac																	
12/06/2013	1 Kervidy exu	13																
12/06/2013	2 Mercy																	
12/06/2013	3 Gueriniac																	
06/11/2013	1 Kervidy exu	5	100	/	<5	/	8	<100	11	/	10	<10	<5	<500	100	<10	229	129
06/11/2013	2 Mercy		<5	/	<5	/	<5	<100	<5	/	25	<10	<5	<500	630	<10	655	25
06/11/2013	3 Gueriniac		380	/	<5	/	<5	<100	<5	/	35	<10	13	1800	950	<10	3178	415
10/12/2013	1 Kervidy exu	13	10	/	<1	/	<1	550	<1	/	50	20	/	<500	120	<10	750	630
10/12/2013	2 Mercy		6	/	<1	/	<1	<100	<1	/	<10	<10	/	<500	<100	<10	6	6
10/12/2013	3 Gueriniac		30	/	<1	/	<1	<100	<1	/	<10	<10	/	<500	<100	<10	30	30
07/01/2014	1 Kervidy exu	337	<5	/	<1	/	10	<100	<1	/	<10	<10	/	<500	<100	20	30	10
07/01/2014	2 Mercy		<5	/	<1	/	2	<100	<1	/	15	<10	/	<500	<100	<10	17	17
07/01/2014	3 Gueriniac		<5	/	<1	/	<1	<100	<1	/	<10	<10	/	<500	<100	<10	<LQ	<LQ
04/11/2014	1 Kervidy exu	36	19	<30	<1	9	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	28	28
04/11/2014	2 Mercy		<5	<30	<1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	<LQ	<LQ
04/11/2014	3 Gueriniac		<5	<30	<1	20	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	20	20
25/11/2014	1 Kervidy exu	129	11	37	<1	1	<1	<50	<1	1	<10	<10	/	<100	<50	<10	50	50
25/11/2014	2 Mercy		<5	<20	<1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	<LQ	<LQ
25/11/2014	3 Gueriniac		46	<20	1	16	<1	120	<1	<1	25	15	/	<100	300	<10	523	223
16/12/2014	1 Kervidy exu	134	<5	<20	1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	1	1
16/12/2014	2 Mercy		<5	<20	<1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	<LQ	<LQ
16/12/2014	3 Gueriniac		<5	<20	1	<1	<1	<50	<1	<1	<10	<10	/	<100	<50	<10	1	1

n (fréquence)	9/22	1/9	3/22	4/9	3/21	3/22	1/21	1/9	9/22	2/22	2/6	1/22	6/22	1/22
% de quantification	41%	11%	14%	44%	14%	14%	5%	11%	41%	9%	33%	5%	27%	5%
moyenne des concentrations	86	37	1	12	7	245	11	1	22	18	10	1800	358	20
concentration maxi	380	37	1	20	10	550	11	1	50	20	13	1800	950	20

## Annexe 5 : Résultats des campagnes d'analyses pour les prélèvements en crue (préleveur automatique) sur le bassin versant de Kervidy-Naizin

Les seize molécules suivantes ne figurent pas dans le tableau car elles n'ont pas été quantifiées sur ce bassin versant, lors des campagnes de prélèvements ponctuels :

- tétracycline,
- doxycycline,
- sulfaméthazine
- amoxicilline,
- benzylpénicilline,
- fluméquine
- danofloxacin,
- florfenicol,
- dicyclanil,
- levamisole,
- métrifonate,
- monensin,
- kétoprofène,
- altrenogest
- carbamazépine,
- époxy-carbamazépine,
- diclofénac.

### **Sigle utilisé**

B : molécule à usage bovins

P : molécule à usage porcins

V : molécule à usage volaille

H : molécule à usage humain

 : point non échantillonné lors de campagne de prélèvement à la date indiquée

« / » : molécule non analysée dans l'échantillon

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
09/04/2013	<50	<10	/	<20	<20	/	150	/	60	20	<100	100	<10	<10
09/04/2013	<50	<10	/	<20	<20	/	<50	/	<10	<10	<100	<50	<10	<10
09/04/2013														
09/04/2013	<50	<10	/	<20	<20	/	<50	/	10	<10	<100	<50	<10	<10
09/04/2013														
09/04/2013	110	<10	/	<20	<20	/	<50	/	<10	<10	<100	<50	<10	<10

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
10/04/2013														
10/04/2013	100	<10	/	<20	<20	/	<50	/	<10	<10	<100	<50	<10	<10
10/04/2013														
10/04/2013	75	<10	/	<20	<20	/	<50	/	<10	<10	<100	<50	<10	<10
10/04/2013	80	<10	/	<20	<20	/	<50	/	<10	<10	<100	<50	<10	<10
10/04/2013	50	<10	/	<20	<20	/	<50	/	<10	<10	<100	<50	<10	<10

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
18/12/2013														
18/12/2013	<5	<5	/	<20	<10	<1	<100	<1	10	<10	<500	<100	<10	<5
18/12/2013	25	<5	/	<20	<10	<1	<100	<1	25	<10	<500	490	<10	25
18/12/2013														
19/12/2013	<5	<5	/	<20	<10	<1	<100	<1	<10	<10	<500	<100	<10	<5
19/12/2013	<5	<5	/	<20	<10	<1	<100	<1	<10	<10	<500	100	<10	<5

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
07/01/2014	<5	<5	/	<20	<10	6	<100	<1	<10	<10	<500	<100	<10	<5
07/01/2014	<5	<5	/	<20	<10	20	<100	<1	10	<10	<500	<100	10	<5
07/01/2014														
07/01/2014	<5	<5	/	<20	<10	5	<100	<1	10	<10	<500	<100	<10	<5
07/01/2014	<5	<5	/	<20	<10	10	<100	10	<10	<10	<500	<100	<10	<5

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
03/04/2014	90	<5	/	<20	<10	<1	<100	<1	10	<10	<500	<100	10	<10
03/04/2014	50	30	/	<20	<10	10	<100	<1	<10	<10	<500	<100	<10	25
03/04/2014	<5	25	/	<20	<10	10	<100	<1	<10	<10	<500	<100	<10	20

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
23/04/2014	17	<5	47	<20	<10	<1	<50	<1	15	<10	1050	400	10	<5
23/04/2014	34	<5	18	<20	235	<1	<50	<1	<10	<10	520	300	<10	<5
23/04/2014	226	13	69	<20	1609	106	<50	115	15	<10	<100	430	<10	<5
23/04/2014	17	27	6	<20	<10	<1	200	9	30	<10	1400	890	<10	<5

Date prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ceftiofur (B/P)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Spiramycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Marbofloxacin (B/P)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)
23/11/2014	17	<2	<1	20	<5	<1	290	<1	40	10	1070	610	<10	<5
23/11/2014	<5	<2	<1	<20	<5	<1	<50	<1	<10	<10	<100	<50	<10	<5
23/11/2014	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/
23/11/2014	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/
23/11/2014	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/
23/11/2014	<5	<2	<1	<20	<5	<1	<50	<1	<10	<10	<100	<50	<10	<5

13/26	4/26	4/7	1/26	2/26	7/18	3/26	3/18	11/26	2/26	4/26	8/26	3/26	3/26
50%	15%	57%	4%	8%	39%	12%	17%	42%	8%	15%	31%	12%	12%
69	24	35	20	922	24	213	45	21	15	1010	415	10	23
226	30	69	20	1609	106	290	115	60	20	1400	890	10	25

## Annexe 6 : Résultats des campagnes d'analyses sur le bassin versant de Médréac

Les quatorze molécules suivantes ne figurent pas dans ce tableau car elles n'ont jamais été quantifiées sur ce bassin versant :

- doxycycline,
- tétracycline,
- ceftiofur,
- benzylpénicilline,
- spiramycine,
- danofloxacin,
- marbofloxacin,
- florfenicol,
- dicyclanil,
- levamisole,
- métrifonate,
- monensin,
- altrenogest.

### **Sigle utilisé**

B : molécule à usage bovins

P : molécule à usage porcins

V : molécule à usage volaille

H : molécule à usage humain

« / » : molécule non analysée dans l'échantillon

Date prélevement	Point de prélèvement	Oxytétracycline (B/P/V/H)	sulfaméthazine (B/P/V)	sulfadiazine (B/P/V/H)	triméthoprime (B/P/V/H)	Ampicilline (B/P/V/H)	Lincomycine (B/P/V/H)	Tylosine (B/P/V/H)	Flumequine (B/P/V/H)	Enrofloxacin (B/P/V)	Ivermectine (B/P/H)	Eprinomectine (B)	Flunixin (B/P)	Ketoprofène (B/P/H)	Carbamazépine (H)	Epoxy-carbamazépine (10,11) (H)	Diclofenac (H)	teneurs cumulées en µg/l	teneurs cumulées en µg/l (ATE réglementaire en µg/l)	
28/03/2013	1 aval STEP (Humain)	/	/	<5	/	/	29	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	29	29	
28/03/2013	2 pont (Animal)	/	/	8	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	8	8	
11/04/2013	1 aval STEP (Humain)	/	109	<5	/	/	18	<20	/	/	/	/	/	/	/	/	/	127	127	
11/04/2013	2 pont (Animal)	/	<20	<5	/	/	<20	<20	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
15/05/2013	1 aval STEP (Humain)	/	138	<5	/	/	67	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	205	205	
15/05/2013	2 pont (Animal)	/	<5	<5	/	/	<10	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
19/06/2013	2 pont (Animal)	/	<5	<20	/	/	<20	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
19/06/2013	3 amont STEP	/	122	<20	/	/	<20	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	122	122	
01/07/2013	1 aval STEP (Humain)	/	176	10	/	/	26	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	212	212	
01/07/2013	2 pont (Animal)	/	<5	<5	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
01/07/2013	3 amont STEP	/	195	374	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	569	569	
18/11/2013	1 aval STEP (Humain)	/	<5	<5	/	/	28	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	28	28	
18/11/2013	2 pont (Animal)	/	<5	<5	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
05/12/2013	1 aval STEP (Humain)	/	37	<5	/	/	177	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	214	214	
05/12/2013	2 pont (Animal)	/	<5	<5	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
05/12/2013	3 amont STEP	/	57	<5	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	57	57	
19/12/2013	1 Aval STEP (Humain)	/	28	<5	/	/	24	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	52	52	
19/12/2013	2 Pont (Animal)	/	<5	<5	/	/	<20	12	/	/	/	/	/	/	/	/	/	12	12	
19/12/2013	3 Amont STEP	/	37	26	/	/	<20	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	63	63	
15/01/2014	1 Aval STEP (Humain)	/	18	147	/	/	71	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	236	236	
15/01/2014	2 Pont (Animal)	/	11	<5	/	/	<5	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	11	11	
15/01/2014	3 Amont STEP	/	17	150	/	/	16	<5	/	/	/	/	/	/	/	/	/	183	183	
15/01/2014	amont STEP bis (nord)	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
15/01/2014	amont STEP ter (sud)	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	/	<LQ	<LQ	
13/02/2014	1 Aval STEP (Humain)	150	10	15	/	<10	410	<1	/	<10	<500	<100	20	15	/	/	/	620	585	
13/02/2014	2 Pont (Animal)	<5	15	<5	/	<10	<1	<1	/	<10	<500	<100	<10	<10	/	/	/	15	15	
13/02/2014	3 Amont STEP	350	20	35	/	<10	110	<1	/	15	<500	<100	90	<10	/	/	/	620	530	
13/02/2014	amont STEP bis (nord)	<5	5	<5	/	<10	110	<1	/	<10	<500	<100	10	<10	/	/	/	125	115	
13/02/2014	amont STEP ter (sud)	280	20	80	/	<10	35	<5	/	<10	<500	<100	90	<10	/	/	/	505	415	
03/04/2014	1 Aval STEP (Humain)	120	90	10	/	<10	<1	<1	/	<10	<500	<100	20	<10	/	/	/	240	220	
03/04/2014	2 Pont (Animal)	<5	<1	<5	/	<10	<1	<1	/	<10	<500	<100	<10	50	/	/	/	50	<LQ	
03/04/2014	3 Amont STEP	120	40	15	/	<10	<1	6	/	<10	<500	<100	15	<10	/	/	/	196	181	
03/04/2014	amont STEP bis (nord)	<5	<1	15	/	<10	<1	<1	/	<10	<500	<100	25	<10	/	/	/	40	15	
03/04/2014	amont STEP ter (sud)	125	50	15	/	<10	110	<1	/	<10	<500	<100	20	<10	/	/	/	320	300	
04/06/2014	1 Aval STEP (Humain)	<5	7	<5	<1	33	24	<1	4	<10	<100	<50	<10	12	9	<1	14	103	68	
04/06/2014	2 Pont (Animal)	<5	<1	<5	<1	<10	<1	<1	<1	<10	<100	<50	20	1	<1	<1	5	26	<LQ	
04/06/2014	3 Amont STEP	22	17	<5	<1	<10	20	<1	25	<10	<100	110	35	7	32	<1	4	272	84	
04/06/2014	amont STEP bis (nord)	<5	<1	<5	<1	<10	105	<1	<1	<10	630	240	<10	20	<1	<1	5	1000	105	
04/06/2014	amont STEP ter (sud)	<5	41	1	<1	<10	13	<1	64	<10	<100	<50	120	<5	46	2	<1	287	119	
13/10/2014	1 Aval STEP (Humain)	41	22	4	<1	<10	56	<1	24	<10	<100	<50	85	6	6	<1	89	333	147	
13/10/2014	2 Pont (Animal)	<5	<1	<5	<1	91	<1	<1	<1	<10	910	110	125	<5	<1	<1	<1	<1	1236	91
13/10/2014	6 Exu Bois Gesbert	<5	47	<5	<1	<10	72	<1	21	<10	<100	110	135	3	7	<1	34	429	140	
13/10/2014	3 Amont STEP	<5	49	15	<1	<10	38	<1	30	<10	<100	<50	300	<5	1	<1	<1	453	152	
13/10/2014	5 amont STEP ter Sud	144	181	35	23	<10	71	<1	143	<10	<500	<50	1450	1	4	<1	19	2571	597	
03/11/2014	1 Aval STEP (Humain)	<5	<1	<5	<1	<10	6	<1	4	<10	590	110	40	6	1	<1	32	789	10	
03/11/2014	2 Pont (Animal)	<5	<1	<5	<1	<10	<1	<1	<1	<10	<100	<50	100	<5	<1	<1	<1	100	<LQ	
03/11/2014	3 Amont STEP	<5	12	<5	19	<10	<1	<1	22	<10	<100	<50	95	<5	2	<1	9	159	53	
03/11/2014	4 amont STEP bis nord	<5	<1	<5	<1	<10	9	<1	<1	<10	<100	<50	45	<5	<1	<1	12	66	9	
03/11/2014	5 amont STEP ter Sud	14	7	1	<1	<10	7	<1	13	<10	<100	<50	55	<5	1	<1	14	112	42	
03/11/2014	6 Exu Bois Gesbert	<5	25	3	<1	<10	29	<1	6	<10	<100	<50	50	<5	6	<1	37	156	63	
15/12/2014	1 Aval STEP (Humain)	<5	8	<2	3	<5	373	<1	<1	10	<100	135	<10	<5	<1	<1	9	538	394	
15/12/2014	2 Pont (Animal)	<5	<1	<2	<1	<5	<1	<1	<1	10	<100	<50	<10	<5	3	<1	2	15	10	
15/12/2014	3 Amont STEP	<5	11	<2	<1	<5	19	<1	<1	<1	<100	<50	<10	<5	<1	<1	1	31	30	
15/12/2014	4 amont STEP bis nord	<5	3	<2	<1	<5	65	<1	<1	<10	<100	<50	<10	<5	<1	<1	1	69	68	
15/12/2014	5 amont STEP ter Sud	<5	14	<2	<1	<5	<1	<1	1	<10	<100	<50	<10	<5	<1	<1	<1	15	15	
15/12/2014	6 Exu Bois Gesbert	<5	3	<2	<1	<5	90	<1	<1	<10	<100	<50	<10	<5	<1	<1	7	100	93	
n (fréquence)		10/32	35/52	19/54	3/22	2/32	30/54	2/54	12/22	3/32	4/32	6/32	22/32	10/32	12/22	1/22	17/22			
% de quantification		31%	67%	35%	14%	6%	56%	4%	55%	9%	13%	19%	69%	31%	55%	5%	77%			
moyenne des concentrations		137	43	48	15	62	68	9	29	12	658	136	123	11	8	<LQ	15			
concentration maxi		350	195	374	23	91	410	12	143	15	910	240	1450	50	46	2	89			



Onema

Hall C – Le Nadar  
5, square Félix NAdard  
94300 Vincennes

01 45 14 36 00  
[www.onema.fr](http://www.onema.fr)

INRA

147 rue de l'Université 75338  
Paris Cedex 07

01 42 75 90 00  
[www.inra.fr/](http://www.inra.fr/)