



# Programme SENEUR

## Suivi des contaminants émergents dans l'environnement urbain et leur représentation sociale

Rapport final – Octobre 2020

Pour :



APPEL À PROJETS : INNOVATIONS ET CHANGEMENTS DE PRATIQUES  
LUTTE CONTRE LES MICROPOLLUANTS CHIMIQUES DES EAUX URBAINES

D.A. Devault, H. Budzinski, N. Tapie, B. Zouhri, S. Karolak, Y. Lévi

## Remerciements

---

Les équipes de recherche expriment leurs plus sincères remerciements :

- Aux acteurs ayant contribué financièrement au programme Seneur : l'Office de l'Eau, de la Martinique, l'Office Français de la Biodiversité, l'Agence Régionale de Santé de Martinique, la CACEM.
- À tous les personnels ayant apporté leur aide sur le terrain, dans les divers stades de développement du programme et sa valorisation : Odyssi (la régie municipale de Fort-de-France) et tous les gestionnaires de STEU (avec une attention spéciale à l'équipe de la STEU de la Pointe des Nègres sous la responsabilité de Julien Bonnet, équipe qui a été de toutes les expériences avec un entrain et un professionnalisme remarquables) et le soutien actif de Rudolph Dradem, directeur technique assainissement), l'ODE (Lucas Pelus et Gaëlle Hielard en particulier), l'ARS de Martinique (et surtout Gerard Thalmensi, qui a exercé un rôle majeur depuis le début des expériences en épidémiologie des eaux usées), la direction et le service technique de la centrale pénitentiaire de Ducos (Yannick Tardieu et Romain Orel notamment), la Société Martiniquaise des Eaux (pour l'accès à la prison dont elle gère les eaux usées), les équipes de direction et techniques des lycées de Central Ducos, de Bellevue (dont l'infirmière scolaire, Jamilah), du campus et du lycée professionnel Dillon.
- Au L3MA (Christophe Roos, Florent Robert, Maxime Chevalier) pour l'aide logistique,
- Au SPEB de la DEAL 972 et surtout à Hélène Mbolidi-Baron et Jean-Michel Almont de la CACEM sans qui ce programme n'aurait jamais eu lieu.

# Sommaire

|  |    |
|--|----|
| 1. Objectifs .....   | 9  |
| 1.1. Tâche 1 .....   | 10 |
| 1.2. Tâche 2 .....   | 11 |
| 2. Tâche 1 .....   | 12 |
| 2.1. Détermination du devenir des stupéfiants dans les conditions « tropicales » .....   | 12 |
| 2.1.1. Cinétique en fonction de la température .....   | 13 |
| 2.1.2. Cinétique en fonction de la température et du pH .....  | 16 |
| 2.1.2.1. Cocaïne et BZE .....  | 16 |
| 2.1.2.2. THC-COOH .....  | 18 |
| 2.1.2.3. Opiacés .....   | 18 |
| 2.1.3. Validité de la méthode d'épidémiologie des eaux usées en milieu « tropical » .....  | 20 |
| 2.2. Développement des protocoles d'échantillonnage passif pour le suivi des stupéfiants .....   | 21 |
| 2.2.1. Développements analytiques pour l'analyse des stupéfiants .....   | 23 |
| 2.2.2. Essai comparatif des analyses de stupéfiants selon les méthodes analytiques développées par les deux laboratoires partenaires ..... | 26 |
| 2.2.3. Développements pour la quantification des stupéfiants dans les matrices résiduelles liquides et solides .....                       | 28 |
| 2.2.3.1. Développement des échantillonneurs passifs pour les eaux .....  | 28 |
| 2.2.3.2. Développement du protocole d'extraction des POCIS .....   | 30 |
| 2.2.3.3. Calibrage des POCIS <i>in situ</i> dans la STEU de la PdN .....   | 31 |
| 2.2.4. Conclusion .....  | 34 |
| 2.3. Diagnostic de la contamination du biotope .....   | 35 |
| 2.3.1. Plan d'échantillonnage .....  | 35 |
| 2.3.2. Molécules analysées .....   | 35 |
| 2.3.3. Concentrations dans les boues de STEU .....   | 36 |
| 2.3.4. Concentrations dans les eaux .....  | 39 |
| 2.3.4.1. Eaux usées des sites sélectionnés .....   | 39 |
| 2.3.4.1.A Concentrations en RdM et stupéfiants .....   | 39 |
| 2.3.4.1.B Profils de contamination en RdM et stupéfiants .....   | 41 |
| 2.3.4.2. Phase dissoute des eaux des rivières .....  | 43 |
| 2.3.4.3. Le cas des eaux des STEU .....  | 48 |
| 2.3.4.4. Le cas des eaux usées issues d'établissements de soin .....   | 53 |
| 2.3.4.5. Le cas des eaux usées issues du centre de détention .....   | 55 |
| 2.3.4.6. Le cas des eaux usées issues d'établissements d'enseignement .....  | 56 |
| 2.3.5. Bilan de masse et interprétations .....   | 57 |
| 2.3.5.1. Flux de Flux de résidus de médicaments et de stupéfiants .....  | 58 |
| 2.3.5.2. Impact des micropolluants analysés .....  | 60 |
| 2.3.6. Conclusions .....   | 61 |
| 3. Tâche 2 .....   | 63 |

|  |    |
|--|----|
| 3.1. Détermination des représentations sociales relatives aux médicaments.....                       | 63 |
| 3.1.1. Méthode de l'enquête psychosociale.....   | 63 |
| 3.1.1.1. Le cadre de la recherche.....   | 63 |
| 3.1.1.2. Méthode de l'enquête psychosociale.....   | 66 |
| 3.1.1.3. La population du territoire de la CACEM.....  | 67 |
| 3.1.1.4. Attitudes des sujets face aux médicaments.....  | 68 |
| 3.1.1.5. Comportement de recyclage des médicaments.....  | 69 |
| 3.1.2. Résultats de la représentation sociale des médicaments.....                                   | 70 |
| 3.1.2.1. Analyse de similitude.....  | 70 |
| 3.1.2.2. Analyse des traitements graphiques issus de l'ADS à la question libre «médicament»<br>..... | 71 |
| 3.1.2.3. Représentation des médicaments : Analyse prototypique.....                                  | 73 |
| 3.1.3. Discussion de l'analyse prototypique et diagnostic de centralité.....                         | 76 |
| 3.1.4 Conclusions.....   | 77 |
| 3.2. Analyse du cycle de vie des médicaments.....  | 81 |
| 3.2.1. Cycle de vie des médicaments.....   | 81 |
| 3.2.2. Acceptation du retour en officine de médicaments usagers.....                                 | 81 |
| Principales conclusions.....   | 82 |
| Bibliographie.....   | 85 |
| Annexes.....   | 98 |

## Liste des tableaux

|  |    |
|--|----|
| <i>Tableau I : Liste de traceurs moléculaires choisis pour étudier l'usage des stupéfiants en Martinique</i>   | 5  |
| <i>Tableau II : Paramètres de spectrométrie de masse et de chromatographie suivis pour l'analyse des traceurs moléculaires et de leurs étalons internes permettant de tracer la contamination en stupéfiants de la Martinique.</i> | 25 |
| <i>Tableau III : Concentrations en stupéfiants obtenues après analyse au laboratoire LPTC des eaux brutes de la STEU de la pointe des Nègres prélevées du jeudi 28 mai 2015 au samedi 6 juin 2015.</i>                             | 27 |
| <i>Tableau IV : Concentrations en stupéfiants et métabolites calculées après analyse des POCIS immergés dans les affluents de la STEU de la pointe des Nègres en juin 2015</i>   | 32 |
| <i>Tableau V : Valeurs de <math>K_u</math> et des <math>R_s</math> calculés pour les composés détectés dans les eaux brutes de la STEU de la Pointe des Nègres</i>   | 33 |
| <i>Tableau VI : Valeurs de <math>k_e</math> calculé pour la DIA D5 pour les POCIS immergés dans les eaux brutes de la STEU de la Pointe des Nègres</i>   | 33 |
| <i>Tableau VII : Valeurs de taux d'échantillonnage issu de la bibliographie (a) in situ, (b) en laboratoire sous agitation</i>   | 33 |
| <i>Tableau VIII : Synthèse des <math>R_s</math> obtenus dans le cadre des calibrages réalisées à la STEU PDN et sur la rivière Jambette</i>  | 34 |
| <i>Tableau IX : Concentration en stupéfiants mesurées dans les 4 boues de STEU analysées</i>   | 37 |
| <i>Tableau X : Concentration en résidus de médicaments mesurées dans les 4 boues de STEU analysées</i>   | 38 |
| <i>Tableau XI : Masses totales transférées vers la baie des micropolluants analysés pour chaque source</i>   | 59 |

## Liste des figures

|  |    |
|--|----|
| <i>Figure 1 : Cinétique de la concentration en cocaïne dans une eau usée en fonction de la température.</i>                                | 13 |
| <i>Figure 2 : Cinétique de la concentration en benzoylecgonine dans une eau usée en fonction de la température. (protocole en ligne).</i>  | 14 |
| <i>Figure 3 : Cinétique du ratio cocaïne/benzoylecgonine.</i>  | 15 |
| <i>Figure 4 : Cinétique de la concentration en THC-COOH dans une eau usée en fonction de la température (protocole en ligne).</i>          | 16 |
| <i>Figure 5 : Cinétique de la concentration en cocaïne dans une eau usée en fonction de la température et du pH</i>                        | 17 |
| <i>Figure 6 : Cinétique de la concentration en benzoylecgonine dans une eau usée en fonction de la température et du pH.</i>               | 17 |
| <i>Figure 7 : Cinétique de la concentration en THC-COOH dans une eau usée en fonction de la température et du pH (protocole en ligne).</i> | 18 |

|  |    |
|--|----|
| Figure 8 : Cinétique de la concentration en héroïne dans une eau usée en fonction de la température et du pH (protocole en ligne).   | 19 |
| Figure 9 : Cinétique de la concentration en 6-MAM dans une eau usée en fonction de la température et du pH (protocole en ligne).   | 19 |
| Figure 10 : Cinétique de la concentration en morphine dans une eau usée en fonction de la température et du pH. (protocole en ligne).  | 20 |
| Figure 11 : Cartes simplifiées de la Baie de Fort-de-France et des relations entre sites suivis  | 22 |
| Figure 12 : Exemple de chromatogrammes obtenus après analyse par U <sub>H</sub> PLC-SM <sup>2</sup> de la cocaïne  | 23 |
| Figure 13 : Comparaison des concentrations moyennes obtenues après analyse des échantillons de la STEU de la pointe des Nègres à l'université de Bordeaux et à l'Université de Paris Saclay. | 26 |
| Figure 14 : Principe général accumulation des micropolluants dans les échantillonneurs passifs.  | 29 |
| Figure 15 : Schéma d'un POCIS (Polar Organic Compound Integrative Sampler).  | 29 |
| Figure 16 : Principe de quantification par les PRC   | 30 |
| Figure 17 : Pourcentage de récupération des traceurs moléculaires après extraction des POCIS.  | 31 |
| Figure 18 : Empreintes en traceurs de drogues illicites dans les boues de 4 STEU (Échelle de droite pour le THC-COOH sur-représenté) (ng/g matières sèche).                                  | 37 |
| Figure 19 : Empreintes en RdM dans les boues de 4 STEU (ng/g matières sèche).  | 39 |
| Figure 20 : Variations des concentrations totales en stupéfiants mesurées pendant la période d'échantillonnage dans les eaux de différents sites   | 40 |
| Figure 21 : Variations des concentrations totales en résidus de médicaments dans les eaux des différents sites échantillonnés  | 41 |
| Figure 22 : Empreintes de contamination en stupéfiants dans les eaux des différents sites échantillonnés   | 42 |
| Figure 23 : Empreintes de contamination en résidus de médicaments dans les eaux des différents sites échantillonnés  | 43 |
| Figure 24 : Concentration totale en stupéfiants trouvées dans les eaux des différents sites de rivières  | 44 |
| Figure 25 : Concentration totale en résidus de médicaments dans les eaux des différents sites de rivières  | 44 |
| Figure 26 : Profils de contamination en stupéfiants pour les différents sites de rivières échantillonnés.  | 45 |
| Figure 27 : Profils de contamination en résidus de médicaments pour les différents sites de rivières échantillonnés.   | 45 |
| Figure 28 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux de surface du bassin versant de la Baie de Fort-de-France.  | 47 |
| Figure 29 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux de surface de plusieurs pays d'après la littérature internationale.   | 47 |
| Figure 30 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux usées brutes des STEU du bassin versant de Fort-de-France   | 49 |
| Figure 31 : Concentrations de résidus de médicaments des eaux usées traitées d'après la littérature internationale   | 49 |
| Figure 32 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux usées brutes des STEU d'après la littérature internationale   | 51 |
| Figure 33 : Concentrations de résidus de médicaments des eaux usées traitées dans les effluents de STEU de la baie de Fort-de-France   | 51 |
| Figure 34 : Abattements moyens des RdM dans les STEU de la baie de Fort-de-France  | 53 |
| Figure 35 : Concentrations en RdM dans les eaux usées issues des hôpitaux du bassin versant de la Baie de Fort-de-France   | 54 |
| Figure 36 : Concentrations en RdM dans les eaux usées issues des hôpitaux d'après la littérature   | 55 |

|   |    |
|---|----|
| <i>Figure 37 : Concentrations en RdM dans les eaux usées issues de la prison de Martinique</i>  | 56 |
| <i>Figure 38 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux usées issues des lycées et du campus du bassin versant de la baie de Fort-de-France</i> | 57 |
| <i>Figure 39 : Parts respectives des différentes sources de rejets vers la baie dans les émissions de micropolluants analysés.</i>                            | 58 |
| <i>Figure 40 : Score d'implication dans les questions de santé</i>  | 68 |
| <i>Figure 41 : Score concernant les personnes ressources</i>  | 68 |
| <i>Figure 42 : Attitude vis à vis de la prise de médicaments lors de l'apparition d'un symptôme</i>   | 69 |
| <i>Figure 43 : Attitude face à la prise de médicament en général</i>  | 69 |
| <i>Figure 44 : Intention de comportement de retour des médicaments</i>  | 70 |
| <i>Figure 45 : Ensemble de l'échantillon CACEM. Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences</i>   | 71 |
| <i>Figure 46 : Groupe « 18-30 ans » (N : 49). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences</i>   | 72 |
| <i>Figure 47 : Groupe « 30-60 ans » (N : 79). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences</i>   | 72 |
| <i>Figure 48 : Groupe «60 ans et plus » (N : 50). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences</i>   | 73 |
| <i>Figure 49 : Représentation des médicaments pour le groupe « territoire de la CACEM ».</i>  | 74 |
| <i>Figure 50 : Représentation des médicaments pour le groupe « 18-30 ans »</i>  | 74 |
| <i>Figure 49 : Représentation des médicaments pour le groupe « 30-60 ans »</i>  | 75 |
| <i>Figure 50 : Représentation des médicaments pour le groupe « 60 ans et plus »</i>   | 75 |

## Liste des annexes

|   |     |
|---|-----|
| <i>Annexe 1 : Copie de l'article publié dans Sc. Tot. Environ, 2017</i>   | 98  |
| <i>Annexe 2 : Copie de l'affiche présentée au congrès « Testing Waters II » à Ascona (Suisse, 2015)</i>           | 105 |
| <i>Annexe 3 :</i>   | 106 |
| <i>Tableau A3-1 : Concentrations en stupéfiants mesurées dans les eaux de réseaux</i>                             | 106 |
| <i>Tableau A3-2 : Concentrations en stupéfiants mesurées dans les eaux des STEU échantillonnées</i>               | 107 |
| <i>Tableau A3-3 : Concentration en résidus de médicaments mesurées dans eaux de réseaux</i>                       | 109 |
| <i>Tableau A3-4 : Concentration en résidus de médicaments mesurées dans les eaux des STEU</i>                     | 110 |
| <i>Tableau A3-5 : Concentration en stupéfiants mesurées dans les eaux des rivières échantillonnées</i>            | 111 |
| <i>Tableau A3-6 : Concentration en résidus de médicaments mesurées dans les eaux des rivières échantillonnées</i> | 112 |
| <i>Annexe 4 : Questionnaire employé par l'équipe de l'Université Aix Marseille</i>                                | 113 |
| <i>Annexe 5 : Carte des bassins de collecte liés aux STEU</i>   | 115 |
| <i>Annexe 6 : Carte des STEU de Martinique</i>  | 116 |

## Liste des abréviations

---

ACV : Analyse du cycle de vie

AfB : Agence Française de la Biodiversité

ADS : Analyse de similitudes

ARS : Agence Régionale de Santé

BZE : Benzoylécgonine

BZE D8 : Benzoylécgonine deutérée

CACEM : Communauté d'Agglomération du Centre de la Martinique

CHU : Centre Hospitalier Universitaire

CME0 : Concentration induisant des premiers effets observables

CNRS : Centre National de la Recherche Scientifique

EME : Ecgonine méthyl ester

EPOC : Environnements et Paléoenvironnements Océaniques et Côtiers

$K_{ow}$  : Coefficient de partage octanol-eau

LQ (ou loq) : Limite de quantification

6-MAM : 6-monoacétylmorphine

MES : Matières en suspensions

ODE : Office de l'Eau (de la Martinique)

ONEMA : Office National de l'Eau et des Milieux Aquatiques

PdN : Pointe des Nègres (STEU)

PNEC : Predicted No Effect Concentration - Concentration prédite sans effets nocifs

POCIS : Polar Organic Chemical Integrative Samplers

PPCP : Pharmaceutical and Personal Care Products (produits pharmaceutiques et de soins corporels)

PRC : Performance Reference Compound (composé référence de performance)

QR : Coefficient de risque (concentration/PNEC)

RdM : Résidus de Médicaments

SPMD : Échantillonneur selon le principe « Semi-permeable membrane device »

STEU : Station d'assainissement des eaux usées

THC-COOH : 11-nor-9-carboxy- $\Delta^9$ -tétrahydrocannabinol

UMR : Unité Mixte de Recherche

$U_H$ PLC-SM<sup>2</sup> : couplage de la chromatographie en phase liquide avec la spectrométrie de masse en tandem

VIH : Virus de l'immunodéficience humaine

## 1. OBJECTIFS

---

Le programme de recherche SENEUR (Suivi des contaminants émergents dans l'environnement urbain et leur représentation sociale), proposé par la Communauté d'Agglomération du Centre de la Martinique (CACEM), a été sélectionné par l'appel à projets de l'Office National de l'Eau et des Milieux Aquatiques (ONEMA) (devenu depuis Office Française de la biodiversité – OFB) « Innovation et changements de pratiques : lutte contre les micropolluants chimiques des eaux urbaines ». Les soutiens financiers sont apportés par l'OFB, l'Office de l'Eau de Martinique (ODE), l'Agence Régionale de Santé de la Martinique (ARS) et la CACEM.

La CACEM réalise le programme grâce à une collaboration scientifique avec l'Université Paris-Sud (devenue Université Paris-Saclay) (UMR 8079 Écologie, Systématique et Évolution (ESE) CNRS-AgroParisTech, groupe Santé Publique – Environnement) et l'Université Bordeaux 1 (UMR CNRS 5805 Environnements et Paléoenvironnements Océaniques et Continentaux - EPOC). Le volet sociologique a été délégué au Laboratoire de psychologie sociale de l'Université Aix-Marseille.

L'objectif du programme SENEUR est d'étudier la situation des flux de certains micropolluants émergents dans une zone urbaine d'un territoire caractérisé par son insularité et sa localisation ultramarine en zone subtropicale.

Il propose :

- d'apporter des réponses aux interrogations des acteurs de l'assainissement des eaux usées en Martinique sur les flux de pression de pollution par des familles de micropolluants émergents, à travers l'exemple des résidus de médicaments et de stupéfiants. Ces derniers ont été détectés à des concentrations significatives dans les eaux usées du territoire de la CACEM, lors des programmes SENAU 1, 2 et 3 réalisés respectivement en 2013, 2014 et 2015 par la Régie Communautaire de l'Eau et de l'Assainissement dénommée « ODYSSEI » et l'Université des Antilles et de la Guyane (UAG) en collaboration avec l'Université Paris-Sud UMR 8079 (Devault *et al.*, 2014 et 2015 ; González-Mariño *et al.*, 2019). Cette inquiétude envers les risques environnementaux et sanitaires liés à ces micropolluants est encore plus prégnante dans un contexte de début de valorisation agricole des boues de station d'épuration des eaux usées (STEU).

Il s'agit d'évaluer, sur le territoire du Contrat de la Baie de Fort-de-France porté par la CACEM, les expositions et la contamination du biotope aquatique par des résidus de médicaments (RdM) et de stupéfiants, en développant l'application des outils d'échantillonnage passif et le protocole d'analyse des boues et sédiments et en identifiant les principales sources de ces contaminants urbains (hôpitaux, lycées, campus universitaire, maison d'arrêt) et leur voie d'entrée dans le milieu naturel (STEU...). Ce travail correspond à la tâche 1 de SENEUR ;

La place des micropolluants émergents dans le mélange des xénobiotiques menaçant la biodiversité à l'échelle mondiale est aujourd'hui bien documentée : depuis la première détection de résidus de médicaments dans les eaux usées traitées de Kansas City en 1976 (d'après la recherche bibliographique de Fent *et al.* (2006), l'ubiquité des contaminants domestiques est soulignée par de nombreux articles dont Halling-Sørensen *et al.* (1998) ; Stangroom *et al.* (1998) ; Daughton et Ternes (1999) ; Jones *et al.* (2001) et Kolpin *et al.* (2002), eux-mêmes précédés par des précurseurs comme Richardson et Bowron (1985).

Longtemps minorée face à des sources bien identifiées (drains agricoles, rejets industriels...), la part des eaux usées urbaines dans l'ensemble des contaminants dans les eaux de surface n'a vraiment été estimée qu'en 2003 (Baronti *et al.*, 2003) bien que l'intuition de leur présence soit évoquée dans les articles précédents.

Cette même année (2003), les rejets de l'industrie pharmaceutique ont aussi été isolés dans les eaux de surface (Snyder *et al.*, 2003) et la faiblesse des STEU pour abattre certains RdM ne sera publiée dans la littérature internationale qu'à partir de Larsen *et al.* (2004). Sous l'influence de de rivières contaminées, la vulnérabilité des estuaires et des environnements côtiers à ces RdM s'impose (Bayona *et al.* (1991) ; Jones-Lepp *et al.* (2001))

Le manque d'un terme générique pour l'ensemble de ces molécules de familles chimiques et d'usages différents induisit l'apparition d'un terme qui fit consensus : l'acronyme PPCP, pour Pharmaceutical and Personal Care Products (produits pharmaceutiques et de soins corporels). Ces PPCP peuvent être excrétés par les êtres humains et les animaux pour les médicaments vétérinaires et leurs résidus peuvent avoir des effets non létaux en mésocosme mais qui peuvent néanmoins condamner les spécimens en nature : la cocaïne altère ainsi la vision des poissons aux concentrations retrouvées dans les eaux de rivière (Kirla *et al.*, 2016), ce qui a des conséquences évidentes sur la survie des individus en milieu concurrentiel et prédateur.

Peu de données sont actuellement disponibles concernant la contamination de l'environnement caribéen, notamment la Martinique et sa baie patrimoniale (Hernandez-Padilla *et al.*, 2017 ; Fekadu *et al.*, 2019 ; Villarin et Merel, 2020). **Le projet SENEUR vise donc à combler un manque de connaissances afin d'aider à la gestion environnementale et l'adaptation des procédés de traitement par la compréhension des processus résiduels locaux.**

Des études récentes pour évaluer les efficacités des traitements tertiaires des eaux usées ont eu des résultats contrastés (Miege *et al.*, 2009 ; Kosma *et al.*, 2010 ; Choubert *et al.*, 2011 ; Soulier *et al.*, 2011 ; Baalbaki *et al.*, 2017 ; Krzeminski *et al.*, 2019 ; Kim *et al.*, 2018...) selon les molécules. En Martinique, il importe de considérer la part du rejet direct, sans traitement, des eaux domestiques dans les eaux de surface. En effet, il a été estimé que 16,5 % des habitants de l'île ne sont pas connectés aux réseaux de collecte et déversent leurs eaux usées non traitées vers le milieu récepteur. Cependant, ce pourcentage est calculé sur l'ensemble du département et l'étude SENEUR vise à évaluer la contamination de la Baie de Fort-de-France, zone la plus peuplée de l'île et mieux équipée pour l'évacuation des eaux usées. L'éventuel intérêt pour des équipements particuliers des sites à rejets spécifiques (hôpitaux, prisons, campus, lycées...) nécessite des études spécifiques.

- de déterminer les leviers et les freins psychosociologiques pour l'accompagnement au changement des consommations de médicaments dans un objectif de réduction des émissions vers l'environnement. Ce travail correspond à la tâche 2 de SENEUR.

## 1.1 Tâche 1

La tâche 1 se consacre à :

- Un diagnostic territorial (matrices solides et liquides) de la contamination du biotope de la Baie de Fort-de-France par des RdM et résidus de stupéfiants. Il doit aussi déterminer les contributeurs principaux du bassin versant (usages domestiques, hospitaliers, secteurs spécifiques tels les milieux pédagogique et pénitentiaire) et l'apport au milieu aquatique dû au réseau d'assainissement.
- Approfondir l'évaluation des flux et de la consommation de stupéfiants à partir des concentrations de résidus dans les eaux usées (« épidémiologie des eaux usées »), ce qui implique de déterminer la fiabilité de cette technique de rétro calcul de la consommation dans le contexte martiniquais.

Pour cela, elle procède à :

➤ L'adaptation de la technique d'échantillonnage passif avec des dispositifs POCIS (*Polar Organic Chemical Integrative Samplers*) pour l'analyse des résidus de stupéfiants. Les données de mesure directe (échantillonnage conventionnel par préleveur automatique) visent à calibrer puis valider les protocoles d'échantillonnage passif par POCIS sur le terrain. L'échantillonnage passif est moins onéreux et moins consommateur de temps que le protocole mettant en jeu des préleveurs automatiques mais reste encore en développement. Pour cela, un calibrage *in situ* est indispensable pour définir les constantes d'échantillonnage (Rs) de chaque molécule analysée dans les milieux échantillonnés.

Cette phase de calibrage a été programmée pendant une semaine de prélèvements journaliers par échantillonnage moyenné automatisé dans la STEU de la Pointe des Nègres.

➤ La réalisation de cinétiques de dégradation de résidus de stupéfiants dans les eaux usées. La vérification de la fiabilité des calculs de consommations de stupéfiants en Martinique nécessite de connaître la dégradation des traceurs utilisés dans des eaux usées à un pH plus acide qu'en métropole et à une température élevée. (Devault *et al.*, 2015). À cette fin, une méthode d'analyse par couplage de chromatographie liquide haute performance avec la spectrométrie de masse en tandem (U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup>) avec pré-concentration en ligne a été utilisée.

➤ La réalisation de trois campagnes d'échantillonnage dans les sites sélectionnés : eaux brutes et traitées des STEU principales du secteur sous administration CACEM, eaux brutes des lycées-pilotes, campus, hôpitaux et prison sis sur le territoire du Contrat de la Baie de Fort-de-France. Les molécules suivies sont des stupéfiants, des anti-inflammatoires, un antipyrétique (antalgique), des psychotropes, des bêtabloquants, des antiarythmiques, un anti-hypertenseur, des hypolipémiants, un antiépileptique, un antihistaminique, un anti-agrégant plaquettaire, des agents de prévention et du traitement du SIDA, des soins contre l'asthme, un traitement des dysfonctions érectiles, et la caféine (détaillés en §2.3.2.)

## 1.2. Tâche 2

La tâche 2 comporte deux sous-tâches :

- L'analyse d'une partie du Cycle de Vie (ACV) des médicaments, depuis la distribution par les grossistes répartiteurs jusqu'aux rejets des résidus au contact du biotope aquatique. L'établissement de cette ACV partielle pourrait être un peu plus aisé en Martinique en raison du marché « clos » lié à l'insularité. Les données de consommation sont ainsi complétées par des données d'élimination avec ou sans recyclage, suite à des enquêtes de terrain.
- La compréhension des représentations sociales autour de l'usage des médicaments de façon à assurer la pénétration des campagnes de sensibilisation ultérieures, campagnes visant à réduire à la source les émissions de résidus de médicaments par les ménages et les activités de soins.

## 2. TÂCHE 1

### 2.1. Détermination du devenir des stupéfiants dans les eaux usées en conditions « tropicales »

La détermination du devenir des stupéfiants dans les eaux usées en conditions « tropicales », c'est-à-dire un pH acide et une température de 28°C au niveau de la mer, a été réalisée en juin 2015 et valorisée par :

- L'article intitulé « *Applying sewage epidemiology approach to estimate illicit drug consumption in a tropical context: Bias related to sewage temperature and pH* » publié dans la revue *Science of the Total Environment*, 584–585 (2017) 252–258 (Annexe 1).
- L'affiche présentée lors du congrès « Testing Waters II » à Ascona (Suisse, 2015), récompensée par le prix de la meilleure affiche du congrès (Annexe 2).

Afin de suivre l'usage et le devenir des drogues illicites en Martinique et l'usage de traitements substitutifs, une liste de traceurs moléculaires pertinents a été définie conjointement avec les différents acteurs du projet SENEUR (Tableau I).

Tableau I : Liste des traceurs moléculaires choisis pour étudier l'usage des stupéfiants en Martinique.

| Stupéfiant consommé    | Molécules analysées en tant que « traceurs moléculaire »                 | Abréviation | pKa     | log K <sub>ow</sub> |
|------------------------|--|-------------|---------|---------------------|
| Cocaïne                | cocaïne  | COC         | 8,6     | 2,3                 |
|                        | benzoylecgonine (métabolite cocaïne)                                     | BZE         | 2,9-9,2 | 2,7                 |
|                        | cocaéthylène (métabolite cocaïne)  | CET         | 8,6     | 3,6                 |
|                        | ecgonine methyl ester (métabolite cocaïne)                               | EME         | 3,5-9,7 | -0,6                |
|                        | norcocaïne (métabolite cocaïne)  | NOR         |         | 2,8                 |
| Héroïne                | héroïne  | HER         | 7,85    | 1,5                 |
|                        | 6-monoacétylmorphine (métabolite héroïne)                                | 6-MAM       |         | 0,4                 |
|                        | morphine (métabolite héroïne et 6-MAM)                                   | MOR         | 8,2-9,7 | 0,4                 |
| Amphétamine            | amphétamine  | AMP         | 10      | 1,8                 |
|                        | méthamphétamine  | META        | 9,87    | 1,9                 |
|                        | méthylène-dioxy-métamphétamine (ecstasy)                                 | MDMA        | 9,9     | 1,8                 |
|                        | méthylène dioxy-amphetamine  | MDA         | 9,5     | 1,7                 |
|                        | 3,4-methylenedioxy-N-ethylamphetamine                                    | MDEA        |         | 2,3                 |
| Cannabis               | 11-nor-9-Carboxy-THC (métabolite du THC)                                 | THC-COOH    |         | 6,6                 |
| Traitement substitutif | buprénorphine (Subutex®)   | BUP         | 8,31    | 3,4                 |
|                        | méthadone  | MET         | 8,7     | 4,2                 |
|                        | 2-éthylidène-1,5-diméthyl-3,3-diphénylpyrrolidine (métabolite méthadone) | EDDP        |         | 5,5                 |

Concernant le devenir des résidus de stupéfiants dans les eaux résiduaires de Martinique, deux facteurs combinés majeurs ont été identifiés comme pouvant induire une dégradation : la température et le pH. En effet, les eaux usées en milieu tropical de plaine présentent une température constante au cours de l'année comprise entre 25 et 30°C (28°C en Martinique). Le pH est paradoxalement acide, du fait du lent écoulement d'eaux chaudes riches en nutriments induisant une anaérobiose dominée par la flore sulfato-réductrice.

La première expérience d'incubation a été mise en place pour déterminer la dégradation et l'adsorption des molécules principalement retrouvées en Martinique (cocaïne, benzoylecgonine, THC-COOH) en fonction de la température, après filtration ou non de l'échantillon.

### 2.1.1. Cinétique en fonction de la température

Un prélèvement d'eaux usées en entrée de la station d'assainissement (STEU) de Corbeil (91) a été réparti dans quatre bonbonnes en verre pour étudier les conditions suivantes :

- FA : Température de 18°C, eau usée filtrée (filtre en fibres de verre de porosité 1 µm, Whatman GF/B) ;
- FT : Température « tropicale » (31°C, thermostat), eau usée filtrée (1 µm, Whatman GF/B) ;
- NA : Température de 18°C, eau usée non filtrée ;
- NT : Température « tropicale » (31°C, thermostat), eau usée non filtrée.

La filtration n'est pas stérilisante mais réduit significativement la biomasse en suspension. Un ajout dosé de 0,5 µg/L de cocaïne, benzoylecgonine (BZE) et 11-nor-9-carboxy- $\Delta^9$ -tétrahydrocannabinol (THC-COOH) a été ajouté aux quatre bonbonnes et des prélèvements ont été réalisés après 0,17 ; 0,5 ; 1,5 ; 3 ; 4 ; 5 ; 24 ; 29 ; 33 et 48 heures. Les analyses ont été réalisées par couplage de la chromatographie en phase liquide avec la spectrométrie de masse en tandem (U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup>) après pré-concentration en ligne selon la méthode développée et validée au laboratoire SPE (Hubert *et al.*, 2017), les échantillons étant filtrés au préalable.

Les bonbonnes étaient placées à l'obscurité pendant toute la durée de l'expérience et agitées régulièrement pour éviter l'anoxie. Les concentrations initiales (de T0 à T3) ont toujours été très variables, interdisant une exploitation fine du début de cinétique. Cette hétérogénéité est attribuée au dopage en masse par l'ajout dosé d'une grande quantité d'eau. Malgré l'agitation vigoureuse pour éviter un tel phénomène, les premiers échantillons sont marqués par les conséquences d'une sorption non stabilisée. Ce résultat illustre indirectement les aléas touchant à la sorption des stupéfiants sur les matières en suspension (MES), et plus largement les micropolluants organiques dont l'adsorption est fonction de leur indice de partage octanol eau ( $K_{ow}$ ). Ceci est lié au fait que les eaux résiduaires contiennent des sites d'adsorption en grand nombre (MES, parois, biofilm, sédiment).

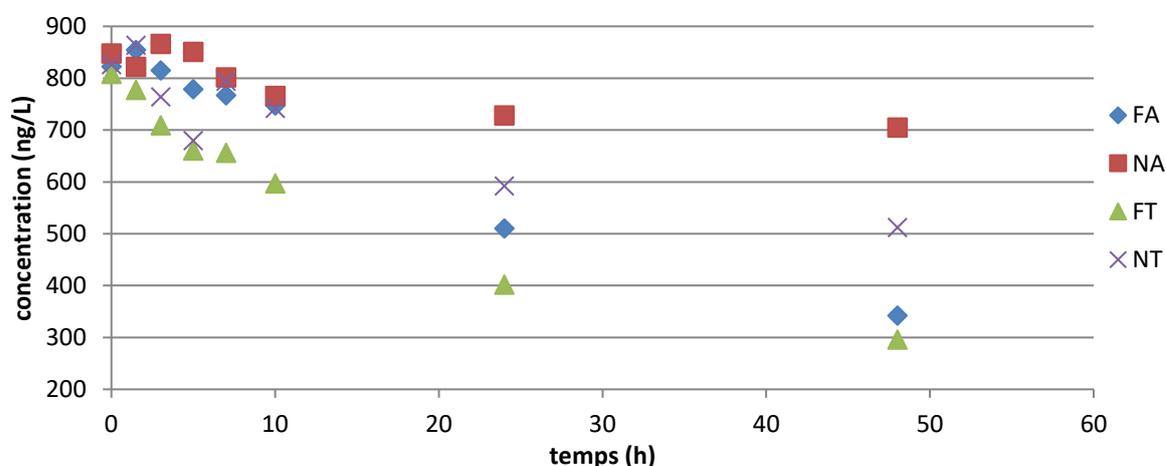


Figure 1 : Cinétique de la concentration en cocaïne (µg/L) dans une eau usée en fonction de la température. (◆) FA 18°C, eau filtrée ; (■) NA 18°C, eau non filtrée ; (×) FT 31°C, eau filtrée ; (▲) NT 31°C, eau non filtrée.

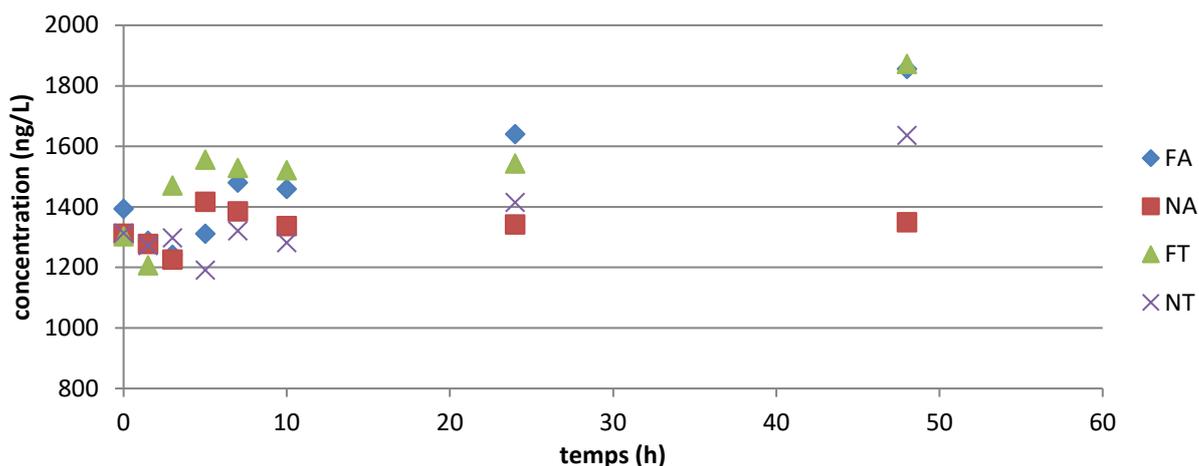


Figure 2 : Cinétique de la concentration en benzoylecgonine ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température. ( $\blacklozenge$ ) FA 18°C, eau filtrée ; ( $\blacksquare$ ) NA 18°C, eau non filtrée ; ( $\times$ ) FT 31°C, eau filtrée ; ( $\blacktriangle$ ) NT 31°C, eau non filtrée.

La figure 1 montre que la pente de réduction de la concentration en cocaïne en fonction du temps est supérieure à 31 °C par rapport à 18 °C et est atténuée en absence de filtration. La concentration initiale en cocaïne a diminué de 63 % dans la condition FT et de 17 % dans la condition NA.

La figure 2 illustre les concentrations de BZE (métabolite de la cocaïne) croissant plus fortement en milieu filtré et à 31°C.

La diminution des concentrations est un résultat composite dû à l'adsorption sur la phase particulaire (plus marquée dans le cas des eaux brutes non filtrées), éventuellement sur la paroi de l'incubateur et aux dégradations abiotiques et biotiques des molécules. Dans le cas de la cocaïne, la BZE est son produit de dégradation principal, de telle sorte qu'en complément de la BZE présente dans les eaux usées tant par la contamination de l'eau brute utilisée pour l'expérience que du fait de l'ajout dosé opéré au début de l'expérience, s'ajoute la BZE générée par dégradation de la cocaïne de l'échantillon.

Il est particulièrement intéressant de noter que la somme des concentrations en cocaïne et BZE est très stable quelles que soient les conditions et les temps d'incubation, évaluée à  $2\,117 \pm 88$  ng/L pendant toute la durée de l'expérience sur l'ensemble des conditions. Ceci est dû à la dégradation systématique de la cocaïne en BZE et à la demi-vie élevée de cette dernière. Le fait qu'il n'apparaisse pas de baisse de la somme des concentrations en cocaïne et en BZE démontre la non-significativité de phénomènes altérant ladite somme dans le temps, et particulièrement l'absence de dégradation de la cocaïne en un autre composé et, surtout, l'absence d'adsorption significative sur les parois des bonbonnes, les colloïdes ou toute autre surface.

Ainsi, les phénomènes d'adsorption ne sont pas quantitativement importants, pour la cocaïne comme pour la BZE au cours de l'expérience, quelles que soient les conditions. En complément, la stabilité du cumul des concentrations cocaïne + BZE montre l'absence de dégradation de la BZE durant l'expérience. Une incubation de 48 heures est d'une durée bien supérieure au temps de rétention des eaux usées dans un réseau classique. Toutefois, le réseau de ODYSSEI peut présenter un temps de résidence de plusieurs jours au niveau du réseau Gandillon : la basse ville de Fort-de-France est construite sur une mangrove dont la pente n'excède jamais 0,3 %. De ce fait, un réseau d'assainissement sous vide a été construit par tranches dont chacune correspond à un côté de « pâte de maisons », induisant une progression lente des eaux résiduaires et un temps de résidence jusqu'à 4 jours pour arriver à la STEU.

L'expérience, considérant comme négligeable l'adsorption lors de l'expérience démontrée ci-dessus, permet de calculer l'évolution du rapport cocaïne/ BZE en condition de terrain (Figure 3). Il peut servir à pondérer les conséquences de la dégradation accrue en comparant le ratio en condition « tropicale » et en condition « tempérée ». Après 48 heures, et en milieu non filtré, le rapport est de 0,3 à 31°C et de 0,5 à température ambiante.

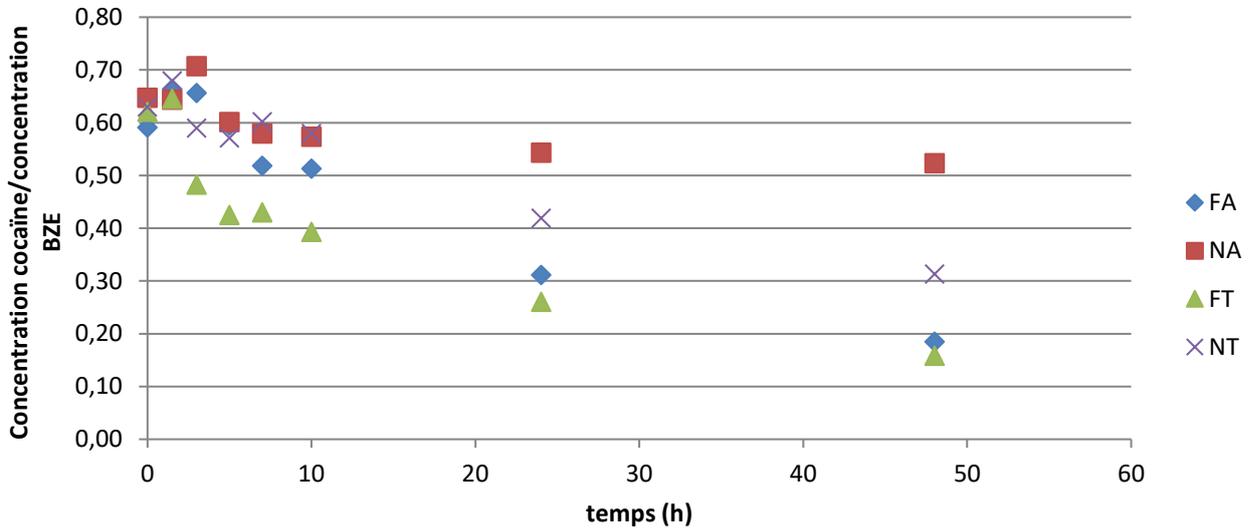


Figure 3 : Cinétique du ratio cocaïne/benzoylecgonine. FA : eau usée filtrée, 18°C ; NA : eau usée non filtrée, 18°C ; FT : eau usée filtrée, 31°C ; NT : eau usée non filtrée, 31°C.

Concernant le THC-COOH (Figure 4), les concentrations sont stables durant toute l'expérience, quelles que soient les conditions d'incubation, hormis pendant les premières minutes où une grande variabilité est observée, que nous imputons à un problème d'homogénéisation. Ce résultat met en exergue la persistance du THC-COOH dans l'environnement : Lavrieux *et al.* (2013) ont tracé l'activité artisanale de rouissage du chanvre depuis le IX<sup>e</sup> siècle au travers de la concentration en cannabinoles (molécule parente au THC-COOH et de caractéristiques physico-chimiques similaires) à partir d'une carotte sédimentaire prélevée dans un bassin de macération dédié à cette production de lin.

Les concentrations sont plus faibles dans les échantillons non filtrés (et filtrés juste avant l'analyse), montrant une adsorption du THC-COOH sur les MES, phénomène déjà décrit dans la littérature. L'absence de dissipation implique aussi une faible adsorption de la THC-COOH, même dans l'échantillon comportant les MES, ou son rapide état d'équilibre.

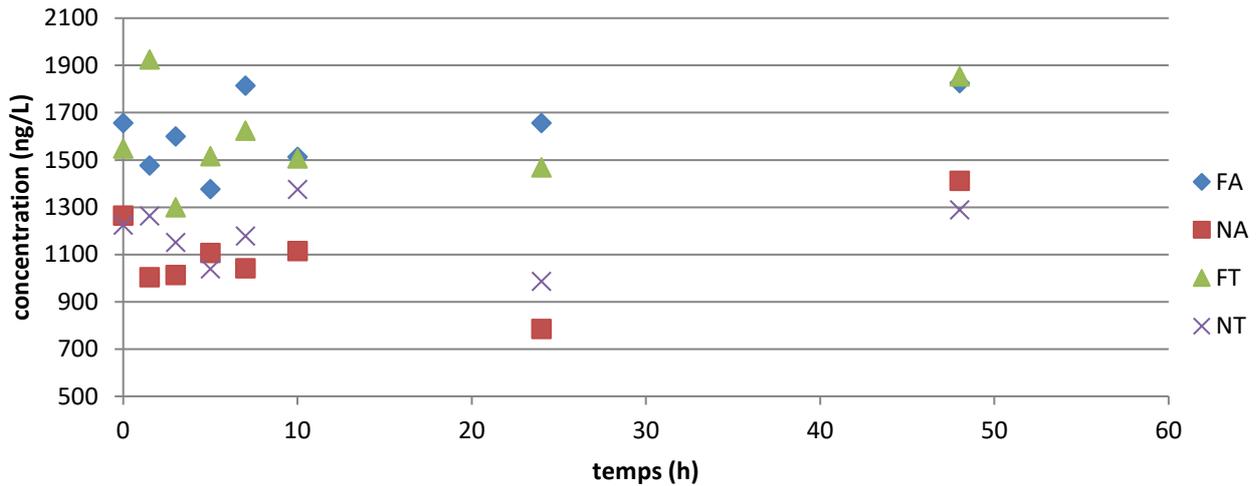


Figure 4 : Cinétique de la concentration en THC-COOH ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température (protocole en ligne). (◆) FA 18°C, eau filtrée ; (■) NA 18°C, eau non filtrée ; (×) FT 31°C, eau filtrée ; (▲) NT 31°C, eau non filtrée.

## 2.1.2. Cinétique en fonction de la température et du pH

### 2.1.2.1. Cocaïne et BZE

L'étude du devenir des stupéfiants et métabolites en fonction de la température a été réalisée sur des eaux usées filtrées et non filtrées. Cependant, l'étude de leur devenir en fonction du pH ne l'a été que sur des eaux non filtrées (eaux brutes), récupérées en entrée de la STEU de Corbeil. Les eaux usées, dont le pH initial sur le terrain est de 7,6 ont été acidifiées à pH 6,5 et 5 par addition d'acide sulfurique. Les surcharges ont été réalisées par la suite. L'utilisation d'une méthode de dosage par U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup> avec préconcentration en ligne a permis de diminuer fortement les volumes d'analyse par point de cinétique : un volume initial de 250 mL a été utilisé pour chaque condition, incubé dans un flacon en verre placé sur une plaque d'agitation, avec trois flacons par condition. Une surcharge de 1 000 ng/L de chaque molécule étudiée a été effectuée après fixation du pH.

Le pH est le paramètre qui influence le plus fortement le devenir de la concentration en cocaïne (Figure 5). Cette dernière est connue pour être plus stable en milieu acide (pH=2, Gheorghe *et al.*, 2008) mais la différence pour des pH assez proches (pH=6,5 et pH=5) est très nette : à pH=5, quelle que soit la température, la dégradation après 24 h est inférieure à 20 % alors qu'elle est comprise entre 80 et 100 % dans toutes les autres conditions.

De ce fait, considérant les conditions acides dans lesquelles se trouvent les eaux résiduares de Martinique (pH <6,5), la stabilité de la cocaïne implique son transport intact sur une plus longue distance, et un potentiel de contamination de la ressource en eau et du biote aquatique accrus, si l'épuration en station n'est pas totale.

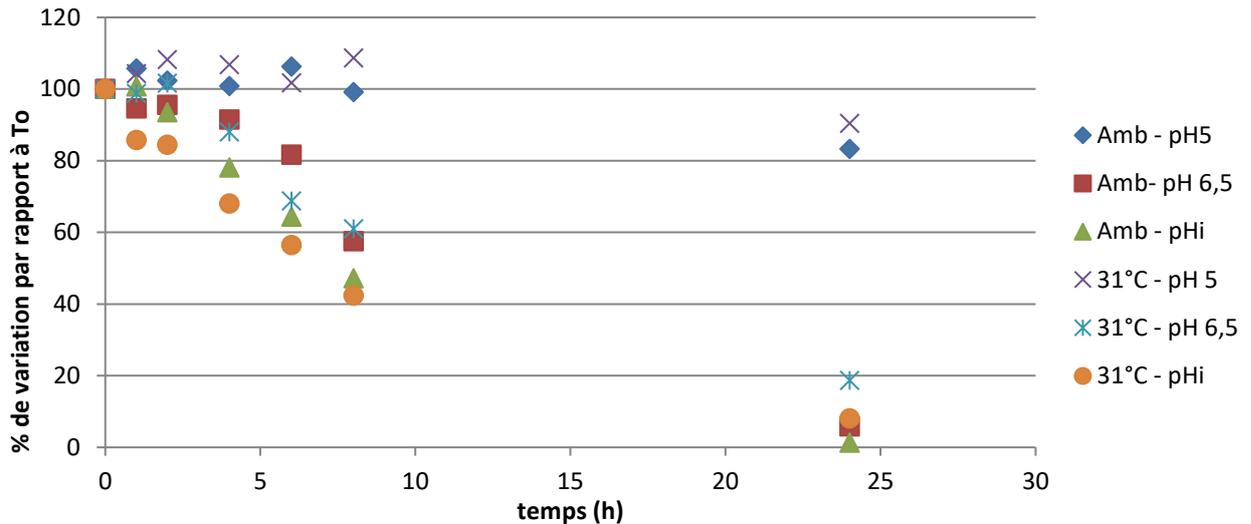


Figure 5 : Cinétique de la concentration en cocaïne ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température et du pH. ( $\blacklozenge$ ) pH=5,  $18^\circ\text{C}$  ; ( $\blacksquare$ ) pH=6,5,  $18^\circ\text{C}$  ; ( $\blacktriangle$ ) pH= 7,64 (terrain),  $18^\circ\text{C}$  ; ( $\times$ ) pH=5,  $31^\circ\text{C}$  ; ( $\ast$ ) pH=6,5,  $31^\circ\text{C}$  ; ( $\bullet$ ) pH= 7,64 (terrain),  $31^\circ\text{C}$ .

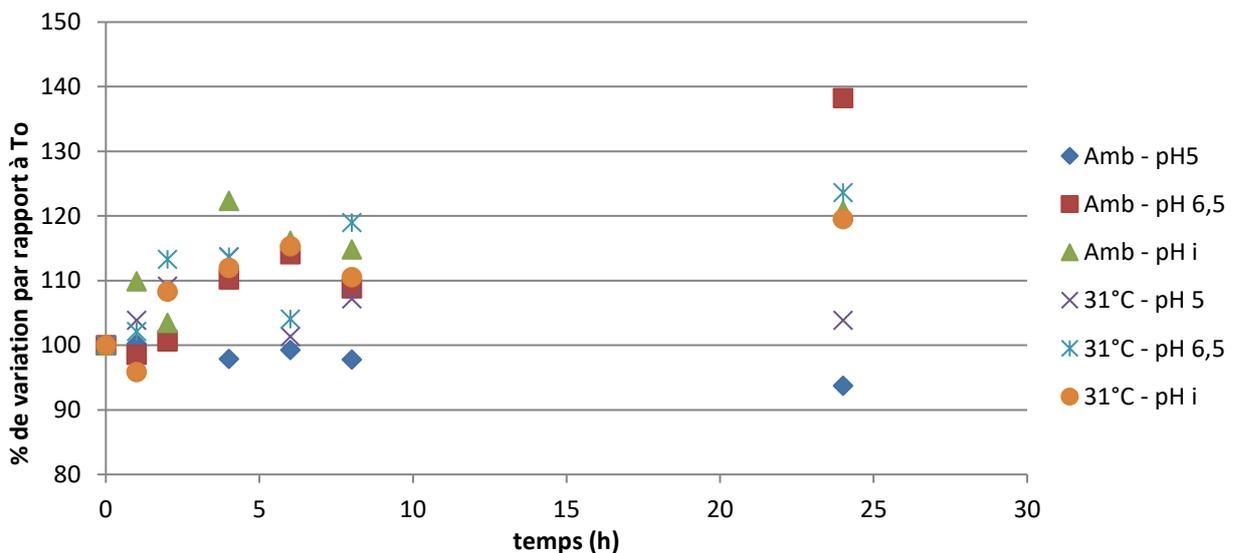


Figure 6 : Cinétique de la concentration en benzoylecgonine ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température et du pH. ( $\blacklozenge$ ) pH=5,  $18^\circ\text{C}$  ; ( $\blacksquare$ ) pH=6,5,  $18^\circ\text{C}$  ; ( $\blacktriangle$ ) pH=7,64 (initial),  $18^\circ\text{C}$  ; ( $\times$ ) pH=5,  $31^\circ\text{C}$  ; ( $\ast$ ) pH=6,5,  $31^\circ\text{C}$  ; ( $\bullet$ ) pH=7,64 (initial),  $31^\circ\text{C}$ .

Pour estimer la consommation en cocaïne dans un bassin d'usage, la benzoylecgonine est préférée à la cocaïne en raison de sa plus grande stabilité dans les eaux usées. La figure 6 illustre le fait que les teneurs en BZE sont stables à pH 5 mais augmentent aux pH 6,5 et 7,6. Cette augmentation est due à la dégradation concomitante de la cocaïne en BZE, comme détaillé en §2.1.2.1. La figure 6 montre que les teneurs en BZE sont stables à pH 5 mais augmentent aux deux autres pH, en rapport avec la dégradation de cocaïne mais pas de façon directement proportionnelle, les pourcentages d'augmentation de BZE étant inférieurs aux pourcentages de dégradation de la cocaïne. Cette absence de recouvrement des concentrations s'explique par l'expression des résultats : en effet, les cinétiques sont rapportées en pourcentage par rapport à la concentration initiale sans tenir compte de la concentration réelle dans l'échantillon.

### 2.1.2.2. THC-COOH

L'analyse du premier point de cinétique a montré une différence significative des concentrations - théoriquement équivalentes – mesurées dans les flacons soumis aux différentes conditions d'incubation : les valeurs sont 80 % plus faibles à pH 5 que pour les deux autres pH. Les résultats ont été exprimés en pourcentage par rapport à la valeur moyenne des concentrations de THC-COOH mesurées à T0 aux pH 6,5 et initial. La figure 7 illustre ainsi une stabilité des concentrations en THC-COOH sauf pour les solutions acidifiées à pH 5 pour lesquelles est observée une augmentation linéaire des concentrations en fonction du temps. Pour le dernier point de cinétique, les concentrations sont proches, mais inférieures à 100 %. Les solutions surchargées ont été préparées la veille et conservées à 4°C avant de démarrer la cinétique le lendemain matin.

Le THC-COOH présente une hydrophobie plus élevée que les autres composés étudiés ( $\log K_{ow} = 5,24$ -[www.drugbank.ca](http://www.drugbank.ca)) favorisant son adsorption en milieu acide par diminution de l'ionisation des fonctions carboxyle ( $pK = 4,21$ ). Un pH alcalin induit une moindre adsorption et une augmentation de la fraction libre.

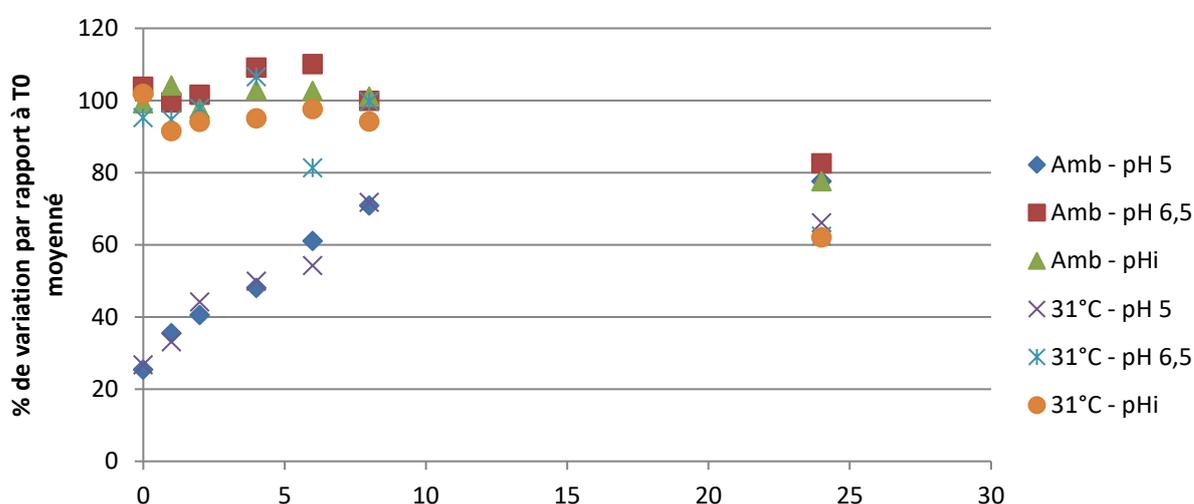


Figure 7 : Cinétique (h) de la concentration en THC-COOH ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température et du pH (protocole en ligne). ( $\blacklozenge$ ) pH=5, 18°C ; ( $\blacksquare$ ) pH=6,5, 18°C ; ( $\blacktriangle$ ) pH=7,64 (terrain), 18°C ; ( $\times$ ) pH, 31°C ; ( $*$ ) pH 6.5, 31°C ; ( $\bullet$ ) pH=7,64 (terrain), 31°C.

Ces résultats montrent que l'acidification des eaux usées peut engendrer une diminution des concentrations en THC-COOH libre des eaux usées, entraînant de ce fait une sous-estimation des estimations de quantités consommées par la méthode de l'épidémiologie des eaux usées.

### 2.1.2.3. Opiacés

La cinétique de variation des concentrations en héroïne (Figure 8) montre une chute brutale des concentrations au pH initial et pH 6,5, quelle que soit la température, l'héroïne n'étant plus détectable après 2 heures. Cependant, une diminution beaucoup plus faible est observée à pH 5 avec entre 20 et 40 % de la concentration résiduelle après 48 heures.

Les concentrations en 6-MAM baissent de façon continue jusqu'à 40 % de la concentration initiale après 48 heures, hormis pour les solutions à pH 5 pour lesquelles elles restent stables (Figure 9).

La dégradation de l'héroïne génère la 6-MAM. La diminution des concentrations en 6-MAM, conjointement à la dégradation de l'héroïne, montre que ces deux composés ne sont pas stables, un pH acide permettant de limiter

la dégradation. Compte-tenu des faibles valeurs de log Kow de ces composés (1,6 pour l'héroïne et 0,9 pour la morphine - [www.drugbank.ca](http://www.drugbank.ca)), une adsorption aux MES ne peut expliquer la diminution des concentrations. L'absence d'augmentation des concentrations de 6-MAM est donc à mettre en rapport avec sa dégradation.

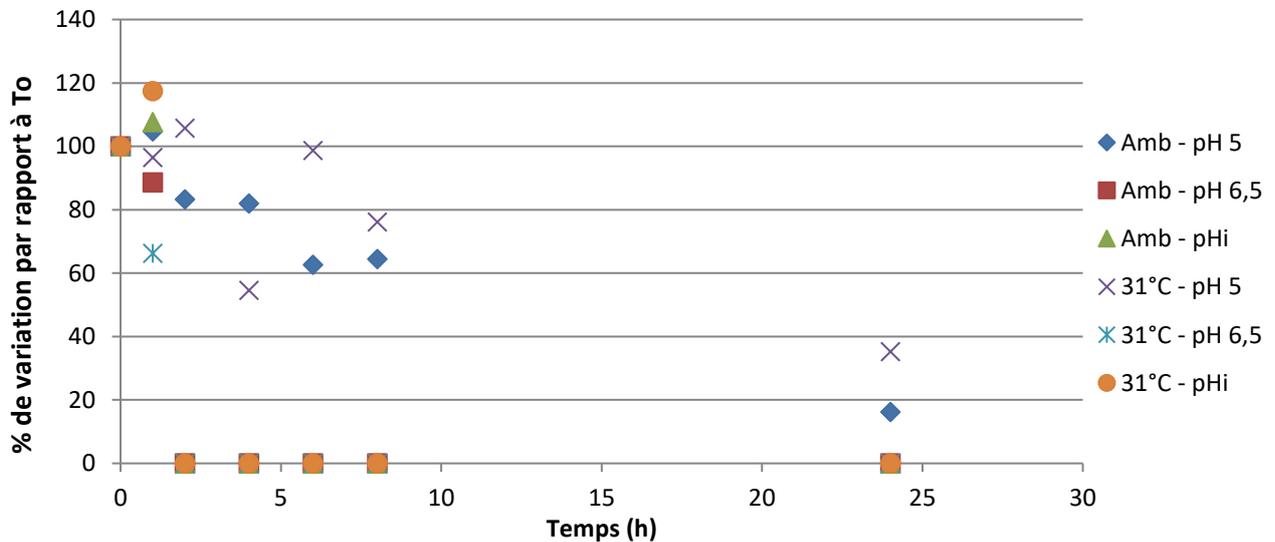


Figure 8 : Cinétique de la concentration en héroïne ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température et du pH (protocole en ligne). ( $\blacklozenge$ ) pH=5, 18°C ; ( $\blacksquare$ ) pH=6,5, 18°C ; ( $\blacktriangle$ ) pH=7,64, 18°C ; ( $\times$ ) pH=5, 31°C ; ( $\ast$ ) pH=6,5, 31°C ; ( $\bullet$ ) pH=7,64, 31°C.

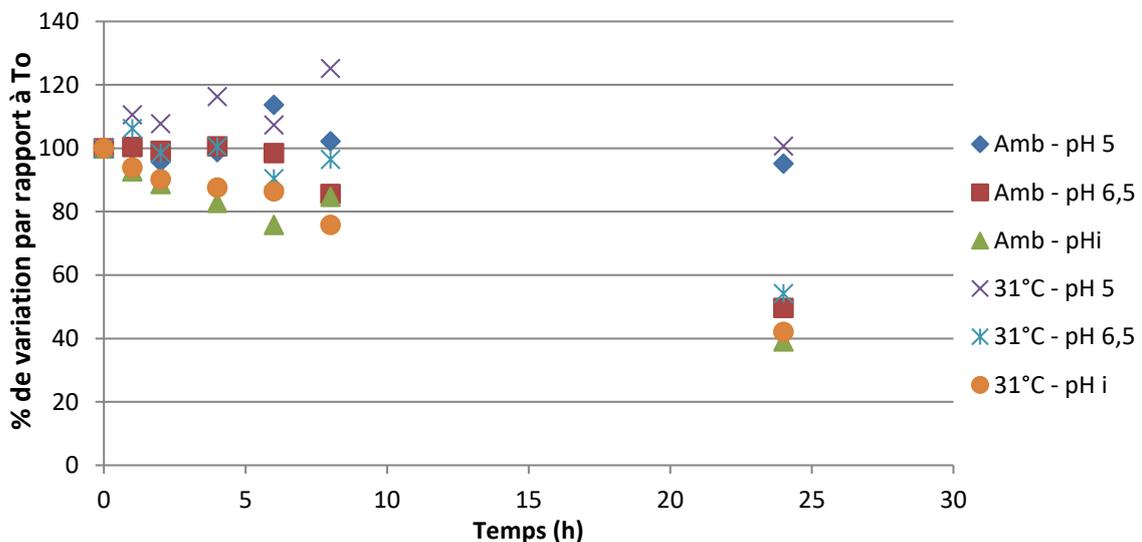


Figure 9 : Cinétique de la concentration en 6-MAM ( $\text{ng/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température et du pH (protocole en ligne). ( $\blacklozenge$ ) pH=5, 18°C ; ( $\blacksquare$ ) pH=6,5, 18°C ; ( $\blacktriangle$ ) pH=7,64, 18°C ; ( $\times$ ) pH, 31°C ; ( $\ast$ ) pH=6,5, 31°C ; ( $\bullet$ ) pH=7,64, 31°C.

La cinétique de la morphine (Figure 10) ne montre pas de différence entre les 6 conditions testées, les concentrations ayant tendance à légèrement augmenter, mais sans rapport avec la dégradation d'héroïne et de 6-MAM.

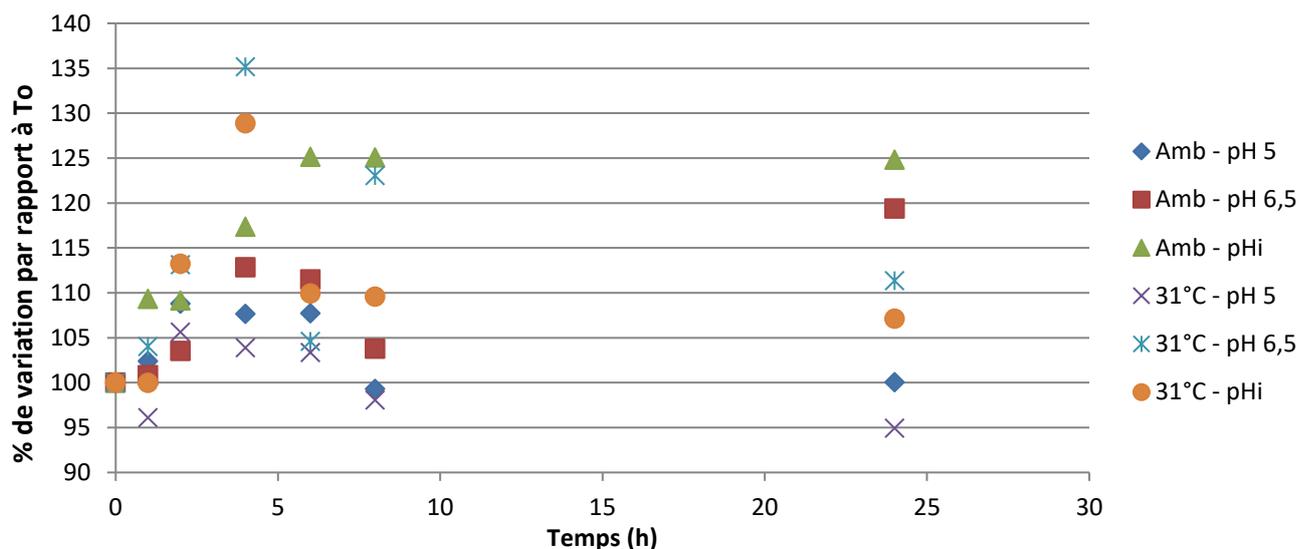


Figure 10 : Cinétique de la concentration en morphine ( $\mu\text{g/L}$ ) dans une eau usée en fonction de la température et du pH. (◆) pH=5, 18°C ; (■) pH=6,5, 18°C ; (▲) pH=7,64, 18°C ; (×) pH=5, 31°C ; (\* ) pH=6,5, 31°C ; (●) pH=7,64, 31°C.

### 2.1.3. Validité de la méthode d'épidémiologie des eaux usées en milieu « tropical »

La méthode dite « épidémiologie des eaux usées » est une technique d'estimation des consommations de drogue par une population donnée basée sur un calcul tenant compte des paramètres de métabolisme de la drogue étudiée et des concentrations du traceur identifié (molécule même ou métabolite) dans les eaux usées. La comparaison des données obtenues sur différents territoires suppose l'absence de différence entre les localisations d'étude : de ce fait, un comportement différent des traceurs métaboliques analysés dans les eaux usées en milieu tropical par rapport au climat tempéré peut induire un biais d'interprétation.

À Fort-de-France, le temps de séjour dans le réseau d'eau usée est compris entre deux heures et quatre jours, considérant la vitesse d'écoulement, les distances à parcourir et la présence de stations de relevage en amont des STEU, particulièrement dans le centre-ville de Fort-de-France qui dispose du dernier dispositif de type Gandillon fonctionnel au monde. Comme déjà précisé, les eaux usées sont plus acides qu'en métropole, le pH étant inférieur à 6,5 en entrée de la STEU de Pointe des Nègres alors qu'il est faiblement alcalin en île de France.

Les études de dégradation ont montré d'une part une augmentation de la dégradation de la cocaïne à température élevée et d'autre part une diminution de cette dégradation en milieu acide ( $\text{pH} < 5$ ). Ces effets sont contradictoires et une étude plus poussée du ratio cocaïne/BZE dans les eaux prélevées sur l'ensemble des études déjà réalisées permettra d'établir une comparaison entre région tropicale et tempérée.

L'effet de la température sur les concentrations de THC-COOH est faible. Le facteur limitant pour cette molécule est le pH qui conditionne l'adsorption aux matières en suspension. En absence d'autres métabolites suivis, l'interprétation des consommations estimées nécessite de bien prendre en compte la valeur de pH des eaux usées prélevées.

La consommation d'héroïne est tracée à partir des dosages de 6-MAM : compte-tenu de la faible stabilité de cette molécule, l'estimation de la consommation d'héroïne est généralement faite de façon semi-quantitative à partir de la quantification ou non de 6-MAM dans les eaux analysées.

D'autres facteurs peuvent biaiser l'évaluation de la consommation par cette méthode mais ceux-ci ne relèvent pas de SENEUR : une meilleure connaissance de la pharmacocinétique des stupéfiants, une détermination de l'effet de la porosité des réseaux sur les flux de stupéfiants...

- La dégradation de la cocaïne en son produit de dégradation principal la benzoylecgonine (BZE) diminue quand le pH diminue de 7,6 (demi-vie  $\approx$  7 heures) à 5 (demi-vie  $>$  60 heures). L'augmentation de la température de 18°C à 30°C diminue la demi-vie de 10 %.

- La dégradation du THC-COOH (métabolite du tétrahydrocannabinol issu de la consommation du cannabis) est peu sensible au pH mais augmente quand la température augmente de 18°C (demi-vie  $\approx$  50 heures) à 30°C (demi-vie  $\approx$  30 heures).

- pour un temps de séjour des résidus de drogues dans les eaux usées d'environ 8 heures, le calcul de la consommation de cocaïne, à partir des concentrations de BZE dans l'eau, n'est pas biaisé, l'effet du pH acide localement constaté compensant l'effet de l'augmentation de température. Par contre, la consommation de cannabis est sous-estimée de 15 %. L'estimation de la consommation de morphine n'est pas modifiée. Bien que sans objet en Martinique, la consommation en héroïne serait sous-estimée de 30 % dans ces conditions et cette durée.

## 2.2. Développement des protocoles d'échantillonnage passif pour le suivi des stupéfiants

Le programme SENEUR comporte une phase de développement de méthode pour permettre le suivi environnemental par échantillonnage passif des molécules d'intérêt dans un milieu résiduaires où l'échantillonnage passif est remarquablement pertinent mais où les contraintes sont multiples pour obtenir un résultat représentatif.

Il a, en outre, été nécessaire d'adapter des protocoles mis au point pour des matrices issues de milieux tempérés afin qu'ils puissent analyser celles issues du site d'étude.

Ce chapitre synthétise les travaux réalisés dans le cadre de la tâche 1 du projet au sein de l'UMR EPOC 5805 à l'Université de Bordeaux pour le développement de protocoles d'extraction des stupéfiants dans diverses matrices (eaux, matrices solides, échantillonneurs passifs) et pour le suivi des niveaux de contamination *in situ* en stupéfiants et en résidus de médicaments sur des sites ciblés en Martinique. Les protocoles de dosage des résidus de médicaments étant déjà maîtrisés et validés au sein de l'UMR EPOC (Aminot, 2013), ils ne seront pas détaillés.

Les protocoles ont été appliqués pour un suivi *in situ* par des échantillonneurs passifs de type POCIS (Polar Organique Chemical Integrative Sampler) exposés dans les eaux brutes d'entrée de STEU, dans des eaux du réseau dans deux Centre Hospitalier Universitaire (CHU Clarac et CHU la Meynard), des lycées (Lycée Bellevue, Lycée Place d'armes, Lycée professionnel Dillon), sur le campus de Schoelcher et sur le centre pénitentiaire de Ducos, ainsi qu'en milieu naturel sur une série de rivières de Martinique (rivière Case navire, rivière Madame, rivière Monsieur, rivière Jambette, rivière Lézarde, rivière Salée). Les sites sont illustrés sur la figure 11 et en annexes 5 et 6.



## 2.2.1. Développements analytiques pour l'analyse des stupéfiants

Pour rappel,

Afin de pouvoir quantifier les 17 traceurs moléculaires retenus dont la liste est présentée dans le tableau I p. 12., un protocole analytique a été développé au sein de l'UMR EPOC 5805 CNRS à l'Université de Bordeaux. L'analyse a été développée sur un système de chromatographie liquide couplé à un spectromètre de masse en tandem (Système U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup> Agilent Triple Quadripôle 6490). La quantification a été réalisée par étalonnage interne (dilution isotopique). Les traceurs ciblés et les étalons internes choisis pour la quantification ont été injectés individuellement dans un mélange d'eau ultrapure et d'acétonitrile (50:50, v/v) selon les deux modes d'ionisation par électrobulbation du couplage U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup> : ESI<sup>-</sup> et ESI<sup>+</sup> (Electrospray Ionization). Ces injections ont permis d'obtenir un spectre de masse et de déterminer le mode d'analyse optimal pour l'analyse de chaque molécule. Le mode d'acquisition et de quantification choisi pour l'ensemble des composés étant le mode MRM (Multiple Reaction Monitoring), les transitions de quantification et de qualification ont été optimisées pour chaque molécule (Figure 12, tableau II).

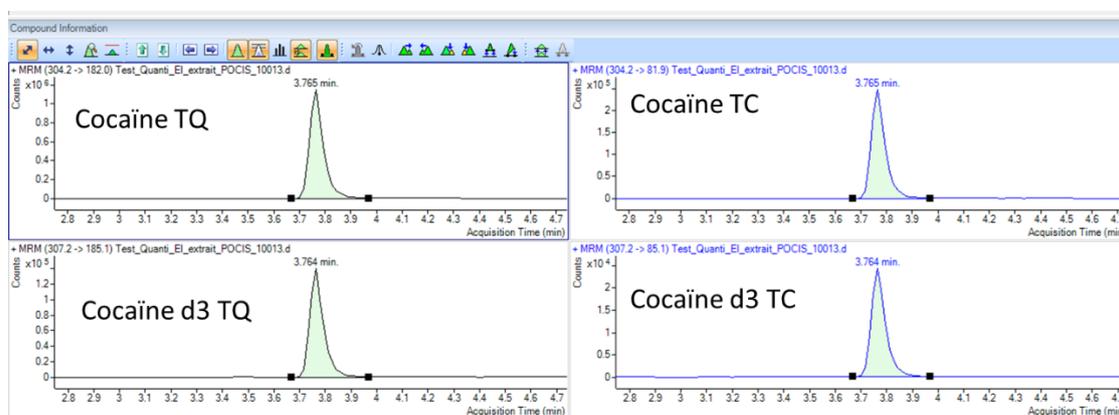


Figure 12 : Exemple de chromatogrammes obtenus après analyse par U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup> de la cocaïne. (TQ : Transition de quantification, TC : Transition de confirmation).

La séparation chromatographique a ensuite été optimisée sur une colonne C18 (Acquity UPL BEH C18 1,7  $\mu$ m, 2,1 x 100 mm) avec un gradient de phase mobile d'eau ultra pure acidifiée à 0,1 % en acide acétique et d'acétonitrile également acidifiée à 0,1 % en acide acétique. La linéarité de la réponse a été testée sur une gamme de concentration allant de 1 à 40 pg injectés ( $V_{inj}=10 \mu$ L). Chaque composé analysé est donc identifié par son temps de rétention ( $T_r$ ), une transition de quantification (TQ), une transition de confirmation (TC) et le rapport des aires des deux transitions (Aire TQ/Aire TC) (ou le ratio : Aire TC/Aire TQ x 100) selon les recommandations européennes (2002/657/CE) (Tableau II).

La quantification est réalisée par étalonnage interne et dilution isotopique avec un étalon interne par composé pour simplifier l'analyse chromatographique dans les matrices aussi chargées en matières organiques et aussi complexes que sont les eaux usées. Chaque molécule de stupéfiants possède son homologue deutéré pour la quantification par étalonnage interne à l'exception de la BZE, dont le composé marqué (benzoylecgonine D8 -BZE D8) a été reçu tardivement au laboratoire et qui n'a donc pas pu être développé sur la première partie du programme SENEUR.

La BZE D8 a été bien sûr intégrée par la suite dans la batterie d'étalon à disposition pour la quantification des stupéfiants. Les limites de quantification (LQ) pour les composés ciblés obtenues lors du développement avec les

solutions d'étalons varient entre 0,01 et 1 pg injectés. Ces LQ analytiques sont parfaitement compatibles avec une application environnementale pour tracer les usages de drogues en Martinique. Les performances analytiques pourraient encore être améliorées, si le besoin s'en fait sentir, par l'augmentation du volume d'injection ou l'optimisation de la méthode d'analyse spécifique à chaque composé. Cependant, comme les LQ obtenues avec la méthode développée à l'Université de Bordeaux sont parfaitement compatibles avec les gammes de concentrations visées, la méthodologie développée a donc été appliquée à différentes matrices : (i) eau, (ii) solide, (iii) échantillonneurs passifs de type POCIS.

Tableau II : Paramètres de spectrométrie de masse et de chromatographie suivis pour l'analyse des traceurs moléculaires et de leurs étalons internes permettant de tracer la contamination en stupéfiants de la Martinique. (TQ : Transition de quantification, TC : Transition de confirmation, CE : Énergie de collision, Tr : Temps de rétention, Ratio : Aire TC/AireTQ x100).

| Molécules analysées   | Abréviation | Mode ionisation | TQ             | CE (TQ) | TC             | CE (TC) | Ratio | Tr (min) |
|---|-------------|-----------------|----------------|---------|----------------|---------|-------|----------|
| 6-acétylmorphine  | 6-MAM       | ESI +           | 328.2 -> 165.0 | 36      | 328.2 -> 43.0  | 60      | 76    | 2,9      |
| 6-acétylmorphine D6 (ISTD)                                  | 6-MAM D6    | ESI +           | 334.2 -> 45.9  | 56      | -              | -       | -     | 2,9      |
| amphétamine   | AMP         | ESI +           | 136.1 -> 91.0  | 20      | 136.1 -> 119.1 | 4       | 48    | 2,9      |
| amphétamine D11 (ISTD)                                      | AMP D11     | ESI +           | 147.2 -> 98.1  | 20      | -              | -       | -     | 2,8      |
| benzoylecgonine   | BZE         | ESI +           | 290.1 -> 168.1 | 20      | 290.1 -> 77.1  | 48      | 34    | 3,3      |
| buprénorphine   | BUP         | ESI +           | 468.3 -> 55.0  | 56      | 468.3 -> 84.0  | 52      | 16    | 4,9      |
| buprénorphine D4 (ISTD)                                     | BUP D4      | ESI +           | 472.3 -> 59.0  | 56      | -              | -       | -     | 4,9      |
| cocaéthylène  | CET         | ESI +           | 318.2 -> 196.1 | 20      | 318.2 -> 82.1  | 40      | 28    | 4,3      |
| cocaéthylène D8 (ISTD)                                      | CET D8      | ESI +           | 326.2 -> 204.2 | 20      | -              | -       | -     | 4,3      |
| cocaïne   | COC         | ESI +           | 304.2 -> 182.0 | 20      | 304.2 -> 81.9  | 36      | 24    | 3,9      |
| cocaïne D3 (ISTD)   | COC D3      | ESI +           | 307.2 -> 185.1 | 20      | -              | -       | -     | 3,9      |
| ecgonine methyl ester                                       | EME         | ESI +           | 200.1 -> 182.1 | 12      | 200.1 -> 82.1  | 32      | 62    | 0,7      |
| ecgonine methyl ester D3 (ISTD)                             | EME D3      | ESI +           | 203.2 -> 85.0  | 20      | -              | -       | -     | 0,7      |
| 2-éthylidène-1,5-diméthyl-3,3-diphénylpyrrolidine           | EDDP        | ESI +           | 278.2 -> 234.1 | 36      | 278.2 -> 249.2 | 28      | 33    | 5,1      |
| 2-éthylidène-1,5-diméthyl-3,3-diphénylpyrrolidine D3 (ISTD) | EDDP D3     | ESI +           | 282.2 -> 235.2 | 36      | -              | -       | -     | 5,1      |
| héroïne   | HER         | ESI +           | 370.2 -> 58.0  | 32      | 370.2 -> 165.0 | 60      | 71    | 3,8      |
| héroïne D9 (ISTD)   | HER D9      | ESI +           | 379.2 -> 60.9  | 28      | -              | -       | -     | 3,8      |
| méthylène dioxy-amphétamine                                 | MDA         | ESI +           | 180.1 -> 163.0 | 4       | 180.1 -> 105.1 | 20      | 36    | 2,9      |
| méthylène dioxy-amphétamine D5 (ISTD)                       | MDA         | ESI +           | 185.1 -> 168.0 | 4       | -              | -       | -     | 2,9      |
| 3,4-méthylènedioxy-N-éthylamphétamine                       | MDEA        | ESI +           | 208.1 -> 163.0 | 12      | 208.1 -> 105.1 | 24      | 46    | 3,3      |
| 3,4-méthylènedioxy-N-éthylamphétamine D5 (ISTD)             | MDEA D5     | ESI +           | 213.2 -> 163.2 | 8       | -              | -       | -     | 3,3      |
| méthylène-dioxy-métamphétamine                              | MDMA        | ESI +           | 194.1 -> 162.9 | 8       | 194.1 -> 135.0 | 20      | 31    | 3,1      |
| méthylène-dioxy-métamphétamine D5 (ISTD)                    | MDMA D5     | ESI +           | 199.2 -> 165.0 | 8       | -              | -       | -     | 3,0      |
| méthadone   | MET         | ESI +           | 310.2 -> 265.2 | 12      | 310.2 -> 105.0 | 24      | 52    | 5,5      |
| méthadone D9 (ISTD)   | MET D9      | ESI +           | 319.3 -> 268.2 | 12      | -              | -       | -     | 5,5      |
| méthamphétamine   | META        | ESI +           | 150.1 -> 90.9  | 16      | 150.1 -> 119.0 | 8       | 27    | 3,0      |
| méthamphétamine D14 (ISTD)                                  | META D14    | ESI +           | 164.2 -> 98.1  | 16      | -              | -       | -     | 3,0      |
| morphine  | MOR         | ESI +           | 286.2 -> 151.9 | 60      | 286.2 -> 165.0 | 44      | 91    | 2,2      |
| morphine D6 (ISTD)  | MOR D6      | ESI +           | 292.2 -> 152.0 | 60      | -              | -       | -     | 2,2      |
| norcocaine  | NOR         | ESI +           | 290.1 -> 168.0 | 12      | 290.1 -> 136.1 | 20      | 44    | 4,0      |
| norcocaine D3 (ISTD)  | NOR D3      | ESI +           | 293.2 -> 171.1 | 12      | -              | -       | -     | 4,0      |
| 11-nor-9-Carboxy-THC  | TCH-COOH    | ESI -           | 343.2 -> 298.9 | 20      | 343.2 -> 245.3 | 32      | 20    | 4,8      |
| 11-nor-9-Carboxy-THC D3 (ISTD)                              | TCH-COOH D3 | ESI -           | 346.2 -> 302.3 | 20      | -              | -       | -     | 4,8      |

## 2.2.2. Essai comparatif des analyses de stupéfiants selon les méthodes analytiques développées par les deux laboratoires partenaires

La méthode d'analyse développée par le LPTC et présentée ci-dessus a été comparée à la méthode mise au point et validée par le laboratoire de Paris Saclay santé publique environnement (SPE) [Hubert *et al.*, 2017]. Une dizaine d'échantillons quotidiens d'eau brute a été prélevée en entrée de la STEU de Pointe des Nègres à Fort de France. Ils ont été prélevés en double dans des flacons en polyéthylène basse densité pour analyse au sein du laboratoire SPE (Université de Paris-Saclay) et au LPTC (Université de Bordeaux) afin de permettre un « inter-calibrage » des deux laboratoires sur l'analyse des traceurs sélectionnés, le laboratoire SPE étant lui-même inter-calibré dans le grand réseau de laboratoires européen SCORE, dédié aux stupéfiants. Les échantillons ont été congelés dans les 24 h suivant leur prélèvement en Martinique, puis envoyés congelés vers les deux laboratoires de l'hexagone.

En vue de la préparation de l'analyse, les échantillons réceptionnés à l'université de Bordeaux ont été décongelés puis filtrés sur filtre en fibre de verre GF/F de porosité moyenne 0,7  $\mu\text{m}$  préalablement calcinés afin d'éviter toute trace de contamination. La filtration a pour but d'écarter la phase particulaire des eaux brutes et de ne doser que la phase dissoute. Après filtration, les échantillons sont aliquotés dans des flacons d'injection en verre contenant chacun 1 mL d'échantillon filtré. Les extraits filtrés ont ensuite été recongelés dans l'attente d'injection.

Avant l'injection, les échantillons sont décongelés, homogénéisés par passage dans un bain à ultrason, et sur agitateur vortex. Ils sont ensuite additionnés de 20  $\mu\text{L}$  d'une solution d'étalons internes à environ 60 ng/g. Des « blancs » de protocoles (eau ultra pure additionnée avec les étalons internes) et des « blancs » d'injection (eau ultrapure seule) ont été également réalisés avec les séries d'analyses afin de garantir la qualité des résultats et de tracer toute contamination. Les résultats obtenus pour les analyses des eaux réceptionnées à Bordeaux sont présentés dans le Tableau III.

Les échantillons réceptionnés au laboratoire SPE ont été décongelés puis filtrés, dilués et additionnés de 250 ng/L des analogues marqués des traceurs analysés avant l'analyse par couplage UHPLC-SM<sup>2</sup> avec préconcentration en ligne (Hubert *et al.*, 2017).

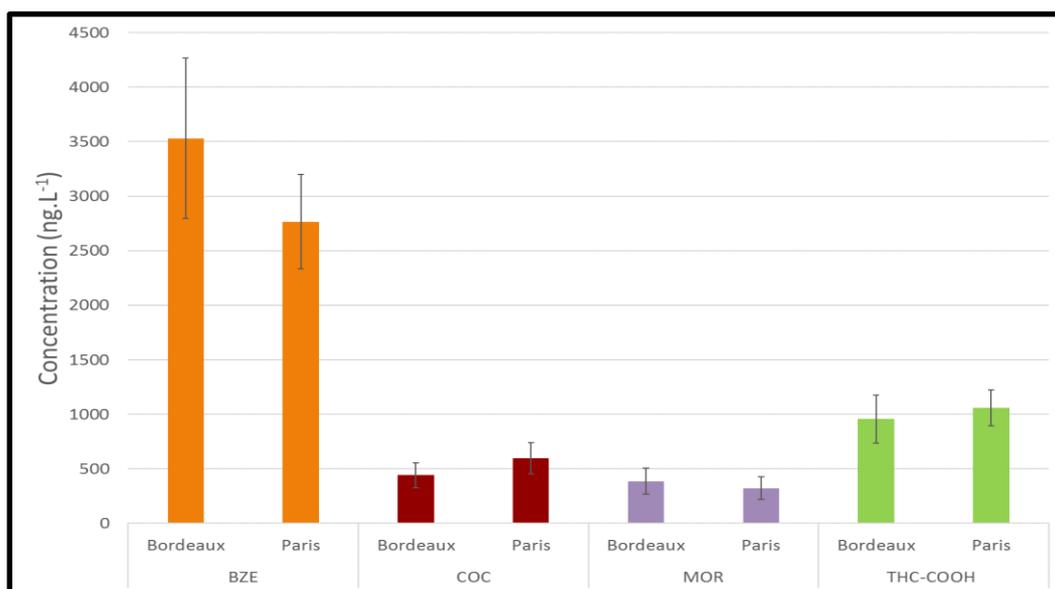


Figure 13 : Comparaison des concentrations moyennes en traceurs des résidus de drogues illicites, après analyse des échantillons de la STEU de la PdN, à l'université de Bordeaux et à l'Université de Paris Saclay.

Tableau III : Concentrations en stupéfiants obtenues après analyse au laboratoire LPTC des eaux brutes de la STEU de la Pointe des Nègres prélevées du jeudi 28 mai 2015 au samedi 6 juin 2015.

|                          |          | T1      | T2      | T3      | T4      | T5      | T6      | T7      | T8      | T9      | T10     | Moyenne     | LQ     |
|--------------------------|----------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|---------|-------------|--------|
|                          |          | (ng/L)      | (ng/L) |
| Cocaïne                  | COC      | 330,8   | 333,0   | 276,5   | 567,9   | 586,3   | 438,1   | 366,7   | 452,7   | 457,0   | 595,3   | 440 ± 115   | 0,5    |
|                          | BZE      | 4 398,7 | 4 428,3 | 3 168,6 | 4 223,4 | 4 021,0 | 2 857,9 | 2 675,1 | 2 641,6 | 2 957,6 | 3 932,1 | 3 530 ± 737 | 7      |
|                          | CET      | 4,6     | 4,6     | 7,9     | 5,8     | 10,0    | 6,2     | 3,6     | 3,7     | 3,1     | 5,3     | 6 ± 2       | 0,5    |
|                          | EME      | 448,2   | 451,2   | 321,9   | 416,5   | 519,7   | 300,9   | 225,7   | 478,8   | 237,5   | 364,2   | 377 ± 103   | 2,5    |
|                          | NOR      | <LQ         | <LQ    |
| Héroïne                  | HER      | <LQ         | 3,5    |
|                          | 6-MAM    | <LQ         | 5      |
|                          | MOR      | 562,0   | 565,8   | 268,4   | 229,0   | 482,8   | 342,5   | 390,4   | 291,1   | 435,6   | 296,7   | 387 ± 122   | 20     |
| Amphétamine              | AMP      | <LQ         | 25     |
|                          | META     | <LQ         | 25     |
|                          | MDMA     | <LQ         | 1      |
|                          | MDA      | <LQ         | 12     |
|                          | MDEA     | <LQ         | 1      |
| Cannabis                 | THC-COOH | 1 296,5 | 1 370,1 | 939,9   | 1 020,2 | 923,4   | 842,8   | 879,9   | 779,1   | 763,1   | 735,0   | 955 ± 219   | 1      |
| Traitements substitutifs | BUP      | <LQ         | 25     |
|                          | MET      | 2,3     | 2,4     | 1,7     | 1,5     | 2,2     | 2,1     | 2,3     | 0,9     | 1,1     | 1,6     | 2 ± 1       | 0,5    |
|                          | EDDP     | 9,5     | 9,6     | 6,7     | 6,9     | 16,3    | 6,4     | 8,2     | 5,5     | 5,8     | 8,2     | 8 ± 3       | 0,5    |

Les résultats obtenus par injection directe des 10 échantillons d'eau brute prélevés sur la STEU de la PdN sont cohérents entre ceux obtenus par les équipes du LPTC et du laboratoire SPE avec des écarts de l'ordre de 10 % sauf pour la BZE. Pour cette molécule, les concentrations mesurées par le LPTC sont 10 à 20 % supérieures à celles mesurées par le laboratoire SPE, cet écart restant dans les limites acceptables pour l'analyse de traces (Figure 13).

Cette bonne corrélation permet de valider le protocole développé au sein de l'Université de Bordeaux. Afin d'évaluer la variabilité pouvant être liée à l'analyse, l'échantillon d'eau brute T10 a été analysé en triplicat : le même échantillon prélevé sur le terrain a été aliquoté en 3 flacons après filtration. La variabilité observée sur ce triplicat sur l'ensemble des composés varie entre 6 et 19 %.

Les traceurs moléculaires trouvés dans les eaux brutes de l'entrée de STEU de la Pointe des Nègre confirment l'usage de différents stupéfiants :

- Cocaïne : détection de benzoylecgonine ( $3\,530 \pm 737$  ng/L), cocaïne ( $440 \pm 115$  ng/L), ecgonine méthyl ester ( $377 \pm 103$  ng/L) et de cocaéthylène ( $6 \pm 2$  ng/L).
- Héroïne : détection de morphine ( $387 \pm 122$  ng/L) mais l'absence de détection de 6-MAM laisse plutôt penser à un usage de morphine thérapeutique (ou à une métabolisation de codéine) qu'à une consommation d'héroïne.
- Cannabis : détection de THC-COOH ( $955 \pm 219$  ng/L)
- Traitement de substitution : détection de traces de méthadone ( $2 \pm 1$  ng/L) et d'EDDP ( $8 \pm 3$  ng/L)

Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus lors des études antérieures menées en Martinique (Devault *et al.*, 2014, Devault *et al.*, 2015) attestant d'une forte consommation de cocaïne et de cannabis.

### 2.2.3. Développements pour la quantification des stupéfiants dans les matrices résiduelles liquides et solides

#### 2.2.3.1. Développement des échantillonneurs passifs pour les eaux

##### **Principe de l'échantillonnage « passif »**

Cette technique est basée sur les mécanismes de diffusion des polluants du milieu aquatique vers la phase réceptrice du dispositif d'échantillonnage. Les échantillonneurs passifs sont des outils capables d'accumuler les micropolluants présents dans le milieu pendant un temps défini, en général entre 10 à 40 jours. Ils sont composés d'un adsorbant (ou d'un absorbant) qui peut-être un liquide (SPMD) ou une phase solide microporeuse, capable de piéger les contaminants chimiques du milieu à analyser sans mécanisme d'extraction actif (Alvarez, 1999, Alvarez *et al.*, 2004 ; Vrana *et al.*, 2005). Les micropolluants diffusent donc du milieu extérieur vers l'ab- (ou ad-) sorbant de manière linéaire en fonction du temps jusqu'à un plateau correspondant à une condition d'équilibre non atteinte à l'échelle du temps d'échantillonnage. L'accumulation des composés à l'intérieur de l'échantillonneur passif est supposée proportionnelle à la concentration dans l'eau pendant cette phase de régime intégratif linéaire. Durant cette période, la masse de micropolluants accumulée dans la phase de l'échantillonneur ( $M_s$ , exprimé en ng) est proportionnelle à la concentration dans l'eau ( $C_w$ , exprimée en ng/L) en fonction du taux d'échantillonnage de la molécule ( $R_s$  L/j) et du temps d'immersion ( $t$ , exprimé en jours) (Figure 14).

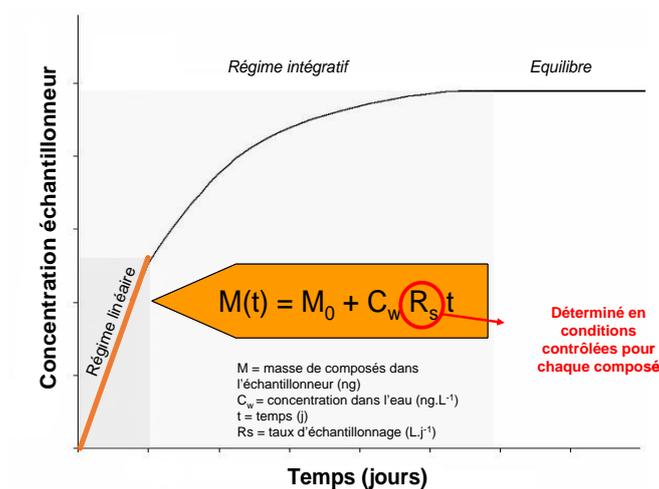


Figure 14 : Principe général accumulation des micropolluants dans les échantillonneurs passifs.

Dans le cadre de cette étude les échantillonneurs utilisés sont de type POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Sampler). Ils sont composés de deux membranes en polyéther sulfone (PES) présentant des pores de 0,1  $\mu\text{m}$  qui enrobent 200 mg de phase adsorbante Oasis HLB<sup>®</sup> Waters constituées de copolymère de divinylbenzène N vinylpyrrolidone (Waters, Guyancourt, France) (Alvarez, 1999) (Figure 15).

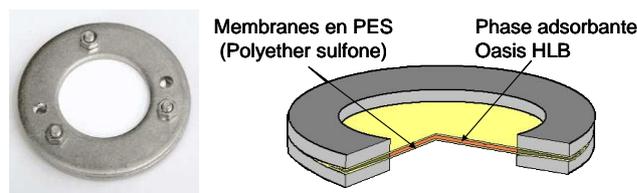


Figure 15 : Schéma d'un POCIS (Polar Organic Compound Integrative Sampler).

Les POCIS échantillonnent de façon optimale les composés organiques présentant un  $\log K_{OW}$  compris entre 1 et 4. Sur la liste des 17 traceurs moléculaires sélectionnés pour tracer l'usage des stupéfiants en Martinique, trois traceurs présentent des  $\log K_{OW}$  inférieurs à 1 (ecgonine methyl ester (-0,6), la 6-monoacétylmorphine (0,41), la morphine (0,43)), trois traceurs présentent un  $\log K_{OW}$  supérieur à 4 (méthadone (4,2), EDDP (5,51), THC-COOH (6,6)) et les 11 traceurs restants rentrent dans la gamme d'échantillonnage optimal théorique des POCIS avec une valeur de  $\log K_{OW}$  comprise entre 1 et 4.

Le choix du POCIS est également étayé par le fait qu'il a déjà démontré sa capacité à échantillonner des drogues et des métabolites comme, par exemple, le MDMA, la métamphétamine, la cocaïne, la BZE, la morphine ou le THC-COOH (Jones-Lepp *et al.*, 2004 ; Bartelt-Hunt *et al.*, 2009 ; Harman *et al.*, 2011 ; Fedorova *et al.*, 2014).

Cependant, le taux d'échantillonnage des POCIS ( $R_s$ ), spécifique à chaque molécule, varie en fonction du milieu échantillonné (température, turbidité, salinité, charge en matière organique...). Afin de corriger ces variations induites par les conditions environnementales, l'approche par les composés de performance (PRC) a été développée dans les POCIS (Mazzella *et al.*, 2010, Huckins *et al.*, 2002). Un ou plusieurs composés PRC sont introduits dans les POCIS avant leur immersion. La désorption de ces molécules durant la période d'exposition va permettre le calcul d'une constante de désorption ( $k_e$ ) qui suit une cinétique d'ordre 1 dans le cas d'échange isotrope :

$$\frac{d C_{\text{POCIS}}}{dt} = -k_e C_{\text{POCIS}}$$

L'introduction de PRC et le suivi de leurs désorptions du POCIS vers le milieu va donc permettre de calculer la constante de désorption  $k_e$  des PRC *in situ*.

$$k_{e \text{ PRC } in \text{ situ}} = - \ln \frac{[C_{\text{POCIS prc}}]}{[C_{\text{POCIS prc } t0}]} / t$$

Où  $k_e$  : constante de désorption

$[C_{\text{POCIS prc}}]$  : concentration des PRC après exposition des POCIS

$[C_{\text{POCIS prc } t0}]$  : concentration des PRC avant exposition des POCIS

$t$  : temps d'exposition

Les variations de la constante de désorption ( $k_e$ ) et du taux d'échantillonnage ( $R_s$ ) en fonction des conditions environnementales sont similaires, permettant ainsi de déterminer le taux d'échantillonnage *in situ* (Figure 16). Ainsi, la détermination de la constante  $k_e$  dans les conditions environnementales permet ensuite de déduire le taux d'échantillonnage *in situ* à partir des valeurs déterminées durant les essais de calibrage (Petty *et al.*, 2004) en laboratoire selon la formule suivante :

$$R_{s \text{ in situ}} = (k_{e \text{ in situ}} / k_{e \text{ calibrage}}) \times R_{s \text{ calibrage}}$$

où

$R_{s \text{ in situ}}$  : Taux d'échantillonnage calculé *in situ* dans les conditions environnementales.

$k_{e \text{ in situ}}$  : Constante de dépurabilité déterminé *in situ* dans les conditions environnementales.

$k_{e \text{ calibrage}}$  : Constante de dépurabilité déterminé en laboratoire en conditions contrôlées.

$R_{s \text{ calibrage}}$  : Taux d'échantillonnage déterminé en laboratoire en conditions contrôlées.

La valeur de  $R_s$  *in situ* déterminé dans les conditions d'exposition environnementales va permettre de déterminer la concentration (exprimée en ng/L) des composés ciblés dans le milieu d'immersion exprimé en  $\text{ng}\cdot\text{L}^{-1}$ . Dans le cadre de cette étude, 3 molécules ont été introduites dans les POCIS pour être utilisées en tant que PRC : la DIA D5, la caféine C13 et le salbutamol D3.

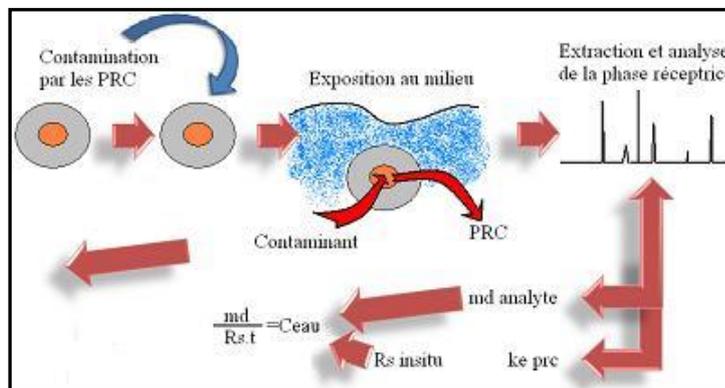


Figure 16 : Principe de quantification avec utilisation de substances PRC (Belles *com. pers.*) (PRC : Performance Reference Compounds,  $md$  : masse d'analytes après exposition,  $k_e$  : Constante de dépurabilité,  $R_s$  : Taux d'échantillonnage).

### 2.2.3.2. Développement du protocole d'extraction des POCIS

Les POCIS ont été extraits selon le protocole classiquement utilisé dans l'équipe à l'Université de Bordeaux (Tapie *et al.* 2011, Belles *et al.*, 2014). En résumé, les POCIS ont été extraits du congélateur une heure avant l'extraction pour retour à température ambiante. Ils sont ouverts et la phase (OASIS HLB®) contenue entre les deux membranes est récupérée dans des cartouches en verre par rinçage avec de faibles quantités d'eau de Vittel (moins de 5 mL).

Une fois collectée dans la cartouche, la phase est séchée sous vide pendant 30 minutes. Après ajout des étalons internes de quantification, les composés d'intérêts sont élués par un mélange de solvants (10 mL de méthanol, 10 mL d'un mélange méthanol/dichlorométhane (v/v : 50/50), 10 mL dichlorométhane).

Un deuxième protocole d'extraction utilisant moins de solvants a été également testé (5 mL de méthanol, 5 mL d'un mélange méthanol/dichlorométhane (v/v : 50/50), 5 mL dichlorométhane). Les extraits sont ensuite reconcentrés à l'aide d'un système d'évaporation à vide RapidVap® (Labconco, VWR, Fontenay sous Bois, France), puis sous flux d'azote et enfin repris dans l'acétonitrile avant l'injection en U<sub>H</sub>PLC-SM<sup>2</sup>. Les analyses sont ensuite réalisées avec la méthode décrite ci-dessus.

Les pourcentages de récupération des différents traceurs moléculaires sont en moyenne de 76 ± 11 % pour les conditions d'élution A et de 80 ± 14 % pour les conditions d'élutions B (Figure 17). Le protocole B, utilisant moins de solvant pour une efficacité équivalente, a été appliqué pour l'ensemble des échantillons de POCIS.

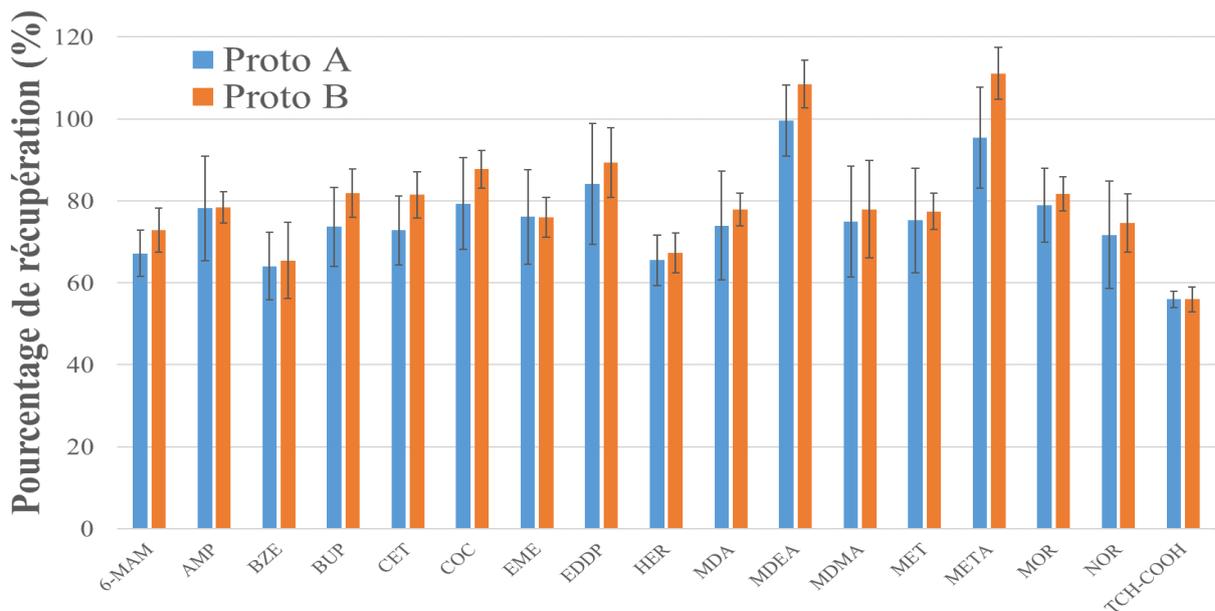


Figure 17 : Pourcentage de récupération des traceurs moléculaires après extraction des POCIS. (Protocole A : élution avec 3 x 10 mL et Protocole B avec 3 x 5 mL)

### 2.2.3.3. Calibrage des POCIS *in situ* dans la STEU de la PdN.

L'applicabilité des POCIS pour le suivi des stupéfiants a été testée directement *in situ* avec le déploiement de 7 triplicats de POCIS durant une dizaine de jours dans les eaux brutes de la STEU de la PdN (jeudi 28 mai 2015 au samedi 6 juin 2015). Des triplicats ont été conservés au temps initial comme témoins (T0) puis les autres ont été relevés aux jours J1, J2, J3, J5, J7 et J10. Après déploiement, les POCIS ont été conservés à la température de -18°C en attente de l'expédition vers l'Université de Bordeaux. En parallèle de l'exposition des POCIS, des prélèvements moyennés 24 h d'eau brute ont été réalisés afin de pouvoir calculer les taux d'échantillonnage des traceurs moléculaires retrouvés dans les échantillons. Ces échantillons d'eau brute correspondent aux échantillons d'eau brute analysés dans l'essai comparatif des équipes de Bordeaux et Paris Saclay.

La quantification dans les extraits de POCIS des traceurs moléculaires déjà détectés dans les eaux brutes après échantillonnage classique, confirme les usages de cocaïne, cannabis, morphine et des traces d'autres traitements de substitution sur le bassin d'usage de la STEU. Les résultats suggèrent également l'usage en très faible quantité d'amphétamines, des traces de MDA et MDMA ayant été détectées dans les POCIS (de l'ordre du nanogramme par litre).

Pour les traceurs moléculaires qui ont été quantifiés à la fois dans les eaux brutes de la STEU de la PdN et dans les POCIS immergés dans ces mêmes eaux (Tableau IV), un taux d'échantillonnage (Rs exprimé en L/j) a pu être calculé.

Les valeurs de Rs ainsi déterminées vont permettre un usage quantitatif des POCIS pour la réalisation de la suite du programme SENEUR. En effet, comme expliqué précédemment, le taux d'échantillonnage (Rs en L/j) peut être approché pour chaque composé par la pente de la droite

$$f(\text{CF}) = k_u \times t \text{ (ou CF (g/L) = [traceur]_{\text{POCIS}} / [\text{traceur}]_{\text{Eau}}) ; k_u (\text{L.g}^{-1}.\text{j}^{-1}) = R_s \times 5.$$

Tableau IV : Concentrations en stupéfiants et métabolites calculées après analyse des POCIS immergés dans les affluents de la STEU de la Pointe des Nègres en juin 2015 (ng/g).

| (ng/g)          | T1        | T2        | T3         | T5          | T7          | T10         |
|-----------------|-----------|-----------|------------|-------------|-------------|-------------|
| <b>6-MAM</b>    | nd        | nd        | nd         | nd          | nd          | nd          |
| <b>AMP</b>      | nd        | nd        | nd         | nd          | nd          | nd          |
| <b>BZE</b>      | 562 ± 132 | 677 ± 164 | 687 ± 110  | 579 ± 47    | 603 ± 330   | 823 ± 220   |
| <b>BUP</b>      | nd        | nd        | nd         | nd          | nd          | nd          |
| <b>CET</b>      | 8 ± 1     | 14 ± 1    | 21 ± 3     | 27 ± 5      | 32 ± 7      | 43 ± 3      |
| <b>COC</b>      | 861 ± 55  | 1 398 ±   | 1 445 ± 75 | 1 631 ± 515 | 2 030 ± 432 | 3 190 ± 194 |
| <b>EME</b>      | 14 ± 3    | 7 ± 1     | 7 ± 3      | 2 ± 1       | 3 ± 1       | 3 ± 1       |
| <b>EDDP</b>     | 7 ± 1     | 15 ± 1    | 15 ± 4     | 22 ± 6      | 26 ± 3      | 36 ± 4      |
| <b>HER</b>      | nd        | nd        | nd         | nd          | nd          | nd          |
| <b>MDA</b>      | 2 ± 0     | 2 ± 1     | 1 ± 1      | 1 ±         | 1 ± 1       | 3 ± 1       |
| <b>MDEA</b>     | nd        | nd        | nd         | nd          | nd          | nd          |
| <b>MDMA</b>     | nd        | nd        | 2 ± 3      | 9 ± 4       | 8 ± 3       | 14 ± 1      |
| <b>MET</b>      | 3 ± 1     | 6 ± 1     | 6 ± 1      | 9 ± 2       | 11 ± 1      | 16 ± 3      |
| <b>META</b>     | nd        | nd        | nd         | nd          | nd          | nd          |
| <b>MOR</b>      | 226 ± 11  | 361 ± 9   | 320 ± 30   | 319 ± 38    | 469 ± 95    | 602 ± 128   |
| <b>NOR</b>      | 6 ± 1     | 11 ± 1    | 12 ± 1     | 16 ± 4      | 17 ± 5      | 25 ± 3      |
| <b>THC-COOH</b> | 358 ± 55  | 562 ± 101 | 759 ± 23   | 981 ± 166   | 1 061±      | 1 658 ± 56  |

Dans un même temps, la désorption des composés de référence et de performance a été évaluée afin de définir de la constante de désorption ( $k_e$ ) associée à chacun de ces traceurs. L'ensemble des cinétiques d'accumulation des différents traceurs dans les POCIS immergés dans les eaux brutes de la STEU de PdN a été présenté dans le premier rapport du projet et ne sera pas détaillé de nouveau.

Le domaine de linéarité de la cinétique d'accumulation des traceurs dans les conditions d'exposition sur la STEU de PdN est très court (environ trois jours) contre 15 à 30 jours classiquement pour des POCIS exposés en milieux naturels (eau de surface). Ces cinétiques rapides sont vraisemblablement dues aux fortes concentrations en matière organique dans le milieu, à une vitesse d'écoulement élevée en entrée de STEU et à une température de 28 à 31°C.

Le pH des eaux brutes peut également jouer un rôle important sur les cinétiques d'accumulation. Les taux d'échantillonnage des différents traceurs ont été calculés par modélisation sous logiciel « Sigma plot » grâce à un modèle d'accumulation linéaire ( $C_f = k_u \times t$ ) appliqué sur les données et en ajustant à la période d'accumulation linéaire. Les valeurs de Rs obtenues grâce à un modèle linéaire appliqué sur 3 jours sont présentées dans le Tableau et permettent de déduire la concentration dans le milieu d'immersion en utilisant la formule  $C_f = K_{sw}(1 - e^{-k_{ext}t})$ .

Tableau V : Valeurs de Ku et des Rs calculés pour les composés détectés dans les eaux brutes de la STEU de PdN. (\* accumulation curvilinéaire)

|                      |                   | R      | Erreur Std | ku     | Erreur Std | t       | P       | Rs (L/j)     |
|----------------------|-------------------|--------|------------|--------|------------|---------|---------|--------------|
| Linéaire<br>10 jours | benzoylecgonine * | 0,59   | 0,0541     | 0,0117 | 0,0039     | 3,0063  | 0,0079  | <b>0,002</b> |
|                      | cocaéthylène *    | 0,95   | 0,7452     | 0,6505 | 0,0537     | 12,1158 | <0,0001 | <b>0,130</b> |
|                      | cocaïne *         | 0,82   | 1,0854     | 0,4617 | 0,0782     | 5,9035  | <0,0001 | <b>0,092</b> |
|                      | EDDP              | 0,95   | 0,40655    | 0,3685 | 0,0293     | 12,5832 | <0,0001 | <b>0,074</b> |
|                      | méthadone         | 0,96   | 0,7303     | 0,7761 | 0,0526     | 14,7499 | <0,0001 | <b>0,155</b> |
|                      | morphine          | 0,92   | 0,1782     | 0,1278 | 0,128      | 9,953   | <0,0001 | <b>0,026</b> |
|                      | norcocaïne        |        |            |        |            |         |         | <b>0,001</b> |
|                      | TCH-COOH          | 0,98   | 0,1152     | 0,1553 | 0,0083     | 18,7068 | <0,0001 | <b>0,031</b> |
| Linéaire<br>3 jours  | benzoylecgonine * | 0,76   | 0,5247     | 0,0422 | 0,0128     | 3,3071  | 0,0107  | <b>0,008</b> |
|                      | cocaéthylène      | 0,95   | 0,4005     | 1,117  | 0,1293     | 8,6417  | <0,0001 | <b>0,223</b> |
|                      | cocaïne           | 0,92   | 0,6277     | 1,3409 | 0,201      | 6,672   | 0,0002  | <b>0,268</b> |
|                      | EDDP              | 0,91   | 0,294      | 0,5819 | 0,0949     | 6,1319  | 0,0003  | <b>0,116</b> |
|                      | méthadone         | 0,94   | 0,374      | 0,9377 | 0,1207     | 7,7687  | <0,0001 | <b>0,188</b> |
|                      | morphine          | 0,91   | 0,097      | 0,1974 | 0,0313     | 6,3076  | 0,0002  | <b>0,039</b> |
|                      | norcocaïne        |        |            |        |            |         |         | <b>0,001</b> |
|                      | TCH-COOH          | 0,97   | 0,0527     | 0,1942 | 0,017      | 11,4099 | <0,0001 | <b>0,039</b> |
| Exponentiel          | benzoylecgonine * | 0,6533 | 0,0507     | 0,16   | 0,509      | 2,26    | 0,0371  | <b>0,032</b> |

Concernant l'approche PRC mise en place pour corriger les variations de Rs *in situ*, seule la DIA D5 présenté une désorption suffisante permettant de calculer une constante de désorption (ke) grâce à un modèle de désorption sous sigma plot ( $[C_{POCIS}] / [C_0] = \exp^{-ke \times t}$ ) (Tableau VI).

Tableau VI : Valeurs de ke calculé pour la DIA D5 pour les POCIS immergés dans les eaux brutes de la STEU de PdN.

|        | Équation                                    | R     | Erreur Std | ke (b) | Erreur Std | t    | P     |
|--------|---|-------|------------|--------|------------|------|-------|
| DIA D5 | $[C_{POCIS}] / [C_0] = \exp^{-ke \times t}$ | 0,816 | 0,156      | 0,154  | 0,078      | 1,96 | 0,065 |

Les Rs calculés lors du calibrage *in situ* sont cohérents avec les Rs rapportés dans la littérature (Tableau VII).

Tableau VII : Valeurs de taux d'échantillonnage issu de la bibliographie (a) *in situ*, (b) en laboratoire sous agitation.

|                                  | BZE    | CET   | COC   | EDDP  | MET   | MOR   | TCH-COOH |
|----------------------------------|--------|-------|-------|-------|-------|-------|----------|
| Harman <i>et al.</i> , 2011 (a)  | 0,083* | 0,112 | 0,150 | -     | -     | 0,035 |          |
| Yargeau <i>et al.</i> , 2013 (b) |        |       | 0,130 | 0,532 | 0,408 | 0,261 |          |
| Fedorova <i>et al.</i> , 2014    | 0,047  |       |       |       |       |       | 0,065    |
| Brieudes (2014) (b)              |        | 0,209 | 0,312 |       |       |       |          |

Ces données de Rs ont été confortées par deux autres essais de calibrage réalisés durant le suivi *in situ* à grande échelle dans les eaux brutes de la STEU PdN et dans la Rivière Jambette. Les Rs obtenus sont rassemblés dans le Tableau VIII.

Tableau VIII : Synthèse des Rs obtenus dans le cadre des calibrages réalisées à la STEU PdN et sur la rivière Jambette (\*accumulation curvilinéaire, \*\* composés non détectés dans l'eau, \*\*\* composés non détectés)

| ke associé              | DIA D5          | STEU PdN 2015 |               | STEU PdN 2018  | Riv Jambette 2018 |
|-------------------------|-----------------|---------------|---------------|----------------|-------------------|
|                         |                 | Linéaire 3 j  | Linéaire 10 j | Linéaire 3 j   | Linéaire 7 j      |
|                         |                 | 0,154 ± 0,078 | 0,154 ± 0,078 | 0,186 ± 0,232  | 0,1633 ± 0,1221   |
|                         | benzoylecgonine | 0,008 ± 0,002 | 0,002 ± 0,001 | 0,069 ± 0,004  | **                |
|                         | cocaéthylène    | 0,223 ± 0,045 | 0,130 ± 0,011 | 0,001 ± 0,000  | ***               |
|                         | cocaïne         | 0,268 ± 0,054 | 0,092 ± 0,016 | 0,134 ± 0,011  | 1,040 ± 0,085     |
| Rs (l.j <sup>-1</sup> ) | EDDP            | 0,116 ± 0,023 | 0,074 ± 0,006 | *              | ***               |
|                         | méthadone       | 0,187 ± 0,038 | 0,155 ± 0,011 | **             | ***               |
|                         | morphine        | 0,039 ± 0,008 | 0,026 ± 0,026 | 0,0204 ± 0,001 | ***               |
|                         | TCH-COOH        | 0,039 ± 0,008 | 0,031 ± 0,002 | 0,051 ± 0,003  | ***               |

#### 2.2.4. Conclusion

Le programme SENEUR a permis de développer des protocoles de dosages de traceurs moléculaires marquant l'usage des stupéfiants en Martinique dans différentes matrices : eau, solide, et échantillonneurs passifs et a permis de réaliser un suivi des concentrations en stupéfiants et en résidus de médicaments dans des eaux de sites variés, des STEU, du CHU, des lycées, du Campus, du centre pénitentiaire et des rivières débouchant sur la Baie de Fort-de-France.

Les données de concentration obtenues grâce aux POCIS vont permettre pour la suite de l'étude une compréhension des modes de consommation en stupéfiants et en RdM sur la zone étudiée. Elles permettent de calculer des flux de stupéfiants et de résidus de médicaments circulant dans le réseau et arrivant au niveau des STEU et des rivières, présentés dans le chapitre suivant.

- Détermination des taux d'échantillonnage *in situ* des stupéfiants permettant une approche quantitative des dosages à l'aide des intégrateurs passifs POCIS pour les dosages de stupéfiants.

- Mise en évidence de cinétiques d'accumulation plus rapides au sein des POCIS pour les eaux brutes en entrée de STEU que lorsqu'ils sont placés dans les milieux aquatiques naturels. Les temps d'exposition appropriés sont donc courts (3 à 5 jours maximum).

## 2.3. Diagnostic de la contamination du biotope

### 2.3.1. Plan d'échantillonnage

Des sites de différentes natures ont été sélectionnés pour évaluer les concentrations en stupéfiants et en RdM :

- Cinq STEU (Pointe des Nègres, Dillon 1, Dillon 2, Godissard et Gaigneron) ont été échantillonnées en entrée et sortie. Les valeurs de volumes entrants et sortants ont été fournies par l'opérateur Odysse. Toutes les STEU sont à boue activée moyenne charge sauf la STEU de PdN, de type *Biofor*.
- Sept sites jugés « sensibles » (Lycée Bellevue, Lycée Place d'armes, Lycée professionnel Dillon, CHU site de Clarac (notamment dédié aux soins addictologiques), CHU site de la Meynard, Campus de Schœlcher, Centre pénitentiaire de Ducos. Les volumes d'eau ont été évalués à partir des données de consommation d'eau potable concomitantes des établissements.
- Six rivières urbanisées (rivière Case Navire, rivière Madame, rivière Monsieur, rivière Jambette, rivière Lézarde, rivière Salée). Les données relatives à leur volume journalier ont été fournies par l'Office de l'Eau.

Chaque site a été échantillonné lors de 3 campagnes en 2018 (Campagne 1 du 26/02/2018 au 03/03/2018, campagne 2 du 16/03/2018 au 24/03/2018, campagne 3 du 08/04/2018 au 15/04/2018). Pour chaque campagne un duplicat de POCIS a été immergé. Les temps d'immersion moyen sont de 3 jours en STEU et sur les sites sensibles et de 7 jours en rivière. Des prélèvements de boues également été réalisés dans les STEU de Pointe des Nègres, de Gaigneron, de Godissard et de Dillon 1.

### 2.3.2. Molécules analysées

Pour les stupéfiants les molécules analysées sont les suivantes : 6-monoacétylmorphine (6-MAM), amphétamine (AMP), benzoylecgonine (BZE), buprénorphine (BUP), cocaéthylène (CET), cocaïne (COC), ecgonine methyl ester (EME), 2-ethylidene-1,5-dimethyl-3,3-diphenylpyrrolidine (EDDP), héroïne (HER), 3,4-methylenedioxyamphétamine (MDA), 3,4-methylenedioxy-N-ethylamphétamine (MDEA), 3,4-methylenedioxy-N-méthylamphétamine (MDMA), méthadone (MET), méthamphétamine (META), morphine (MOR), norcocaïne (NOR), 11-nor- $\Delta$ -9-hydroxytetrahydrocannabinol (THC-COOH). Les protocoles analytiques utilisés ont été détaillés dans la partie II.

Pour les RdM, les molécules recherchées sont les suivantes : abacavir (ABA), acebutolol (ACE), acide 4-chlorobenzoïque (AC CHLO), acide clofibrrique (AC CLO), acide fénofibrrique (AC FENO), acide salicylique (+ aspirine) (ASP), alprazolam (ALP), amitriptyline (AMI), aténolol (ATE), atorvastatine (ATO), bezafibrate (BEZ), bisoprolol (BIS), bromazepam (BRO), caféine (CAF), carbamazépine (CAR), cetirizine (CETI), ciprofloxacine (CIPRO), clenbuterol (CLEN), clonazepam (CLON), clopidogrel (CLOP), cyclophosphamide (CYCLO), diazepam (DIAZ), diclofenac (DICLO), disopyramide (DISO), doxépine (DOXE), fluoxétine (FLUOX), gabapentine (GABA), gemfibrozil (GEM), hydroxy ibuprofène (H IBU), ibuprofène (IBU), imipramine (IMI), indinavir (INDI), ketoprofène (KETO), lamivudine (LAMI), lévétiracétam (LEVE), lorazepam (LORA), losartan (LOSAR), meprobamate (MEPRO), metoprolol (METO), naproxène (NAPROX), nefinavir (NEFI), nevirapine (NEVI), nordiazepam (NORD), ofloxacine (OFLO), omeprazole (OME), oxazepam (OXA), paracétamol (PARA), pravastatine (PRAV), primidone (PRIMI), propranolol (PROP), ranitidine (RANI), ritonavir (RITO), salbutamol (SALBU), saquinavir (SAQUI), sildenafil (SILD), sotalol (SOT), terbutaline (TERBU), théophylline (THEO), timolol (TIM), zidovudine (ZID).

Les protocoles d'analyses appliqués sont extraits de la thèse de Yann Aminot (Aminot 2013) et ne seront pas détaillés.

Les molécules analysées peuvent être organisées par les groupes d'usage suivant.

- Des anti-inflammatoires : ibuprofène, acide salicylique, diclofenac, kétoprofène, naproxène.
- Un antipyrétique, antalgique : paracétamol
- Des psychotropes : alprazolam, bromazepam, clonazepam, diazepam, lorazepam, nordiazepam, oxazepam, amitriptyline, doxepine, fluoxetine, imipramine, meprobamate.
- Des bêtabloquants : acebutolol, atenolol, bisoprolol, metoprolol.
- Des antiarrhythmiques : disopyramide, sotalol.
- Un anti-hypertenseur : losartan.
- Des hypolipémiants : atorvastatine, bezafibrate, acide fenofibrique, gemfibrozil.
- Un antiépileptique : carbamazépine.
- Un antihistaminique : cétirizine.
- Un anti-aggrégant plaquettaire : clopidogrel.
- Des agents de prévention et du traitement du SIDA : abacavir, nelfinavir, nevirapine.
- Des soins contre l'asthme : clenbuterol, salbutamol, théophylline.
- Un traitement des dysfonctions érectiles : sildenafil.

La caféine est utilisée, depuis Buerge et al. (2003), comme une molécule permettant d'évaluer le nombre de personnes connectées ou pratiquant le rejet direct dans une eau de surface.

Des stupéfiants et leurs substituts et métabolites identifiés comme présents dans les eaux usées (Devault *et al.*, 2014 et 2017) : cocaïne et ses métabolites (benzoylecgonine, cocaethylene, norcocaïne), méthadone et son métabolite EDDP (2-éthylidine-1,5-diméthyl-3,3 diphénylpyrrolidine), morphine, THC-COOH.

### 2.3.3. Concentrations dans les boues de STEU

Un protocole spécifique d'extraction a été développé. La technique évaluée est une extraction solide/liquide par solvants assistée par micro-onde en réacteurs fermés sur un appareil de type Start E (Milestone, Soridole, Italie). Les meilleures performances ont été obtenues avec le protocole suivant : ajout de 14 mL d'un mélange de solvant d'extraction MeOH / DCM (v:v ; 50:50) à l'échantillon lyophilisé (0,2 g) et extraction par le Start E selon le cycle d'extraction suivant : (1) 5 min 120 W, 90°C, (2) 5 min 100 W ; 90°C et (3) 5 min de refroidissement. Ce protocole a donc été utilisé pour traiter les échantillons de boues prélevées dans les STEU du programme SENEUR avec des limites de quantification entre 0,1 et 9 ng/g et des rendements d'extractions entre 88 % et 130 %.

Quatre échantillons ont été analysés. Les concentrations obtenues en nanogramme par gramme de matière sèche (ng/g ps ; ps=poids sec) sont présentées dans les tableaux IX et X.

Concernant les RdM : les boues présentent des niveaux de concentrations totales allant de 704 à 2 789 ng/g ps. La boue de la STEU de PdN présente la plus forte concentration avec une somme 2 789 ng/g (ps).

L'empreinte de contamination en RdM est clairement dominée par l'ofloxacin qui représente 90 % de la contamination pour Gaigneron, 85 % pour Godissard, 69 % pour Dillon 1 et 27 % pour PdN.

La contamination de la boue de PdN est plus variée est présente également de fortes concentrations en clopidogrel (21 %) et en acide salicylique + aspirine (13 %).

Concernant les stupéfiants, le niveau de contamination observé dans les boues de PdN est nettement plus élevé que dans celles des autres STEU (1 356 ng/g ps pour PdN, contre 39 ng/g ps pour Dillon 1, 31 ng/g ps pour Gaigneron, 14 ng/g ps pour Godissard).

La contamination est très largement dominée par le THC-COOH, métabolite du cannabis (molécule très hydrophobe), et dans une moindre mesure par la cocaïne et ses métabolites (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.** IX).

Tableau IX : Concentration en stupéfiants mesurées dans les 4 boues de STEU analysées (ng/g ps) (LQ : limite de quantification ; nd : non détecté).

| Molécules cibles | PdN<br>29/03/2018<br>ng/g ps | GAIGNERON<br>13/04/2018<br>ng/g ps | GODISSARD<br>12/04/2018<br>ng/g ps | DILLON 1<br>01/03/2018<br>ng/g ps | LQ<br>ng/g ps |
|------------------|------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|-----------------------------------|---------------|
| 6-acétylmorphine | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,21          |
| Amphétamine      | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,18          |
| Benzoylécgonine  | 6,40                         | <LQ                                | <LQ                                | 0,36                              | 0,19          |
| Buprénorphine    | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,20          |
| Cocaéthylène     | 0,63                         | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,04          |
| Cocaïne          | 20,45                        | 0,83                               | 0,73                               | 1,44                              | 0,05          |
| Ecgonine         | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,09          |
| EDDP             | 4,25                         | 0,16                               | 0,05                               | 4,97                              | 0,05          |
| Héroïne          | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,16          |
| MDA              | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,16          |
| MDEA             | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,02          |
| MDMA             | nd                           | nd                                 | 0,28                               | nd                                | 0,30          |
| Méthadone        | 0,76                         | 0,10                               | <LQ                                | 1,40                              | 0,07          |
| Méthamphétamine  | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 0,04          |
| Morphine         | 15,93                        | nd                                 | nd                                 | nd                                | 2,87          |
| Norcocaïne       | 0,42                         | 0,13                               | 0,18                               | 0,02                              | 0,03          |
| THC-COOH         | 1306,90                      | 29,90                              | 12,50                              | 31,10                             | 8,90          |
| Somme            | 1356                         | 31                                 | 14                                 | 39                                |               |

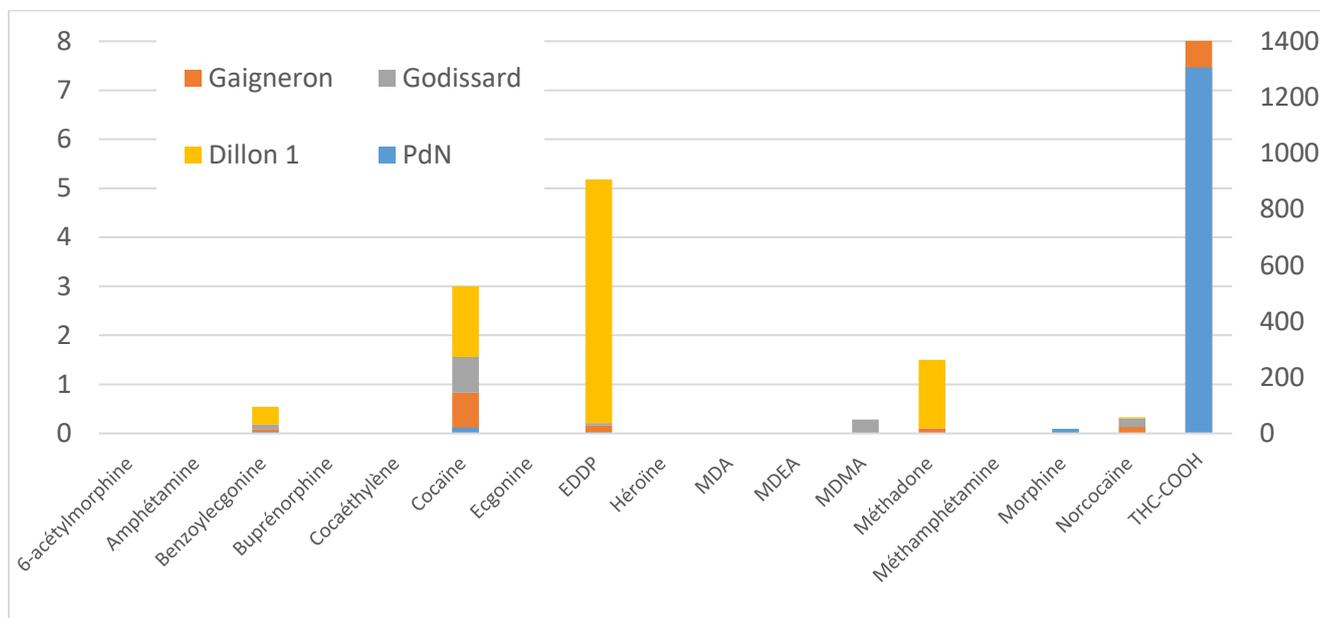


Figure 18 : Empreintes en traceurs de drogues illicites dans les boues de 4 STEU (Échelle de droite pour le THC-COOH sur-représenté) (ng/g matières sèche).

Tableau X : Concentration en résidus de médicaments mesurées dans les 4 boues de STEU analysées (ng/g ps) (LQ : limite de quantification ; nd : non détecté).

| Molécules cibles               | PdN<br>29/03/2018<br>ng/g ps | GAIGNERON<br>13/04/2018<br>ng/g ps | GODISSARD<br>12/04/2018<br>ng/g ps | DILLON 1<br>01/03/2018<br>ng/g ps | LQ<br>ng/g ps |
|--------------------------------|------------------------------|------------------------------------|------------------------------------|-----------------------------------|---------------|
| abacavir                       | 11,03                        | <LQ                                | nd                                 | 1,16                              | 1             |
| acebutolol                     | 129,36                       | 12,39                              | 8,48                               | 11,15                             | 4             |
| acide clofibrrique             | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 15            |
| acide fénofibrrique            | 63,2                         | <LQ                                | nd                                 | 1,7                               | 1             |
| acide salicylique (+ aspirine) | 366,8                        | 65,2                               | <LQ                                | 51,4                              | 45            |
| alprazolam                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 6             |
| amitryptiline                  | 94,91                        | 11,48                              | <LQ                                | 29,59                             | 6             |
| aténolol                       | nd                           | nd                                 | 8,15                               | nd                                | 3             |
| atorvastatine                  | 58,4                         | <LQ                                | <LQ                                | <LQ                               | 5             |
| bezafibrate                    | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 30            |
| bisoprolol                     | 12,03                        | 2,44                               | nd                                 | 4,94                              | 2             |
| bromazepam                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 5             |
| caféine                        | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 40            |
| carbamazépine                  | 24,71                        | <LQ                                | nd                                 | 14,34                             | 14            |
| cetirizine                     | 61,45                        | 24,20                              | 8,54                               | 25,65                             | 3             |
| clenbuterol                    | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 5             |
| clonazepam                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 10            |
| clopidogrel                    | 587,64                       | 5,45                               | <LQ                                | 3,30                              | 3             |
| diazepam                       | nd                           | <LQ                                | nd                                 | nd                                | 5             |
| diclofenac                     | 67,5                         | 33,8                               | 21,9                               | 38,7                              | 5             |
| disopyramide                   | 1,35                         | 9,63                               | <LQ                                | 2,92                              | 1             |
| doxepine                       | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 2             |
| fluoxétine                     | 104,64                       | <LQ                                | 14,20                              | 34,81                             | 14            |
| gemfibrozil                    | 1,9                          | nd                                 | nd                                 | nd                                | 1             |
| ibuprofène                     | 65,1                         | nd                                 | nd                                 | nd                                | 50            |
| imipramine                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 2             |
| indinavir                      | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 5             |
| ketoprofène                    | <LQ                          | <LQ                                | nd                                 | <LQ                               | 100           |
| lorazepam                      | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 6             |
| losartan                       | 17,80                        | <LQ                                | <LQ                                | <LQ                               | 3             |
| métoprolol                     | 8,37                         | nd                                 | nd                                 | <LQ                               | 5             |
| naproxène                      | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 50            |
| nefinavir                      | nd                           | nd                                 | nd                                 | <LQ                               | 3             |
| nevirapine                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 3             |
| nordiazepam                    | nd                           | <LQ                                | nd                                 | nd                                | 5             |
| ofloxacine                     | 754,12                       | 2426,95                            | 599,66                             | 738,68                            | 30            |
| omeprazole                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 2             |
| oxazepam                       | 48,09                        | 34,00                              | <LQ                                | 26,50                             | 15            |
| propranolol                    | 213,28                       | 37,01                              | 18,21                              | 69,09                             | 7             |
| ranitidine                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 7             |
| ritonavir                      | 97,06                        | 5,80                               | 24,33                              | 8,44                              | 5             |
| salbutamol                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 5             |
| saquinavir                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 10            |
| sildenafil                     | <LQ                          | <LQ                                | <LQ                                | <LQ                               | 12            |
| sotalol                        | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 8             |
| terbutaline                    | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 5             |
| theophylline                   | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 40            |
| timolol                        | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 2             |
| zidovudine                     | nd                           | nd                                 | nd                                 | nd                                | 100           |
| Somme RdM                      | 2 789                        | 2 668                              | 704                                | 1 063                             |               |

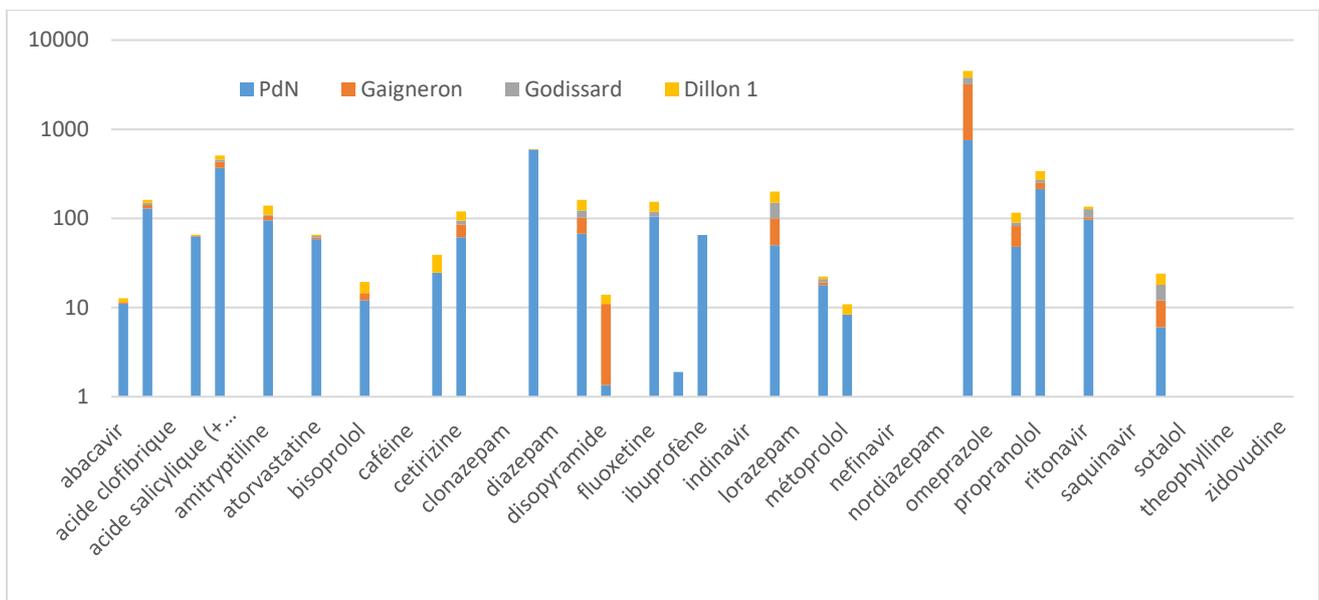


Figure 19 : Empreintes en RdM dans les boues de 4 STEU (ng/g matières sèche).

### 2.3.4. Concentrations dans les eaux

Les résultats sont représentés en globalité puis détaillés molécules par molécules pour les eaux brutes et traitées de STEU, des sites spécifiques et les eaux de surface. Les résultats bruts sont présentés en annexe 3 (tableaux A3-1 à A3-6).

#### 2.3.4.1. Eaux usées des sites sélectionnés

Les niveaux de concentrations en RdM et en stupéfiants de 5 STEU, 3 lycées, 1 campus et 2 hôpitaux ont été suivis sur 3 campagnes de prélèvement grâce à des échantillonneurs passifs de type POCIS (Polar Organic Chemical Integrative Sampler).

Les données présentées sont les concentrations obtenues grâce au Rs obtenu lors du calibrage à l'approche PRC. Il a été choisi de retenir la DIA D5 comme PRC car il présente une désorption satisfaisante entre 20 et 80 %.

##### 2.3.4.1.A Concentrations en RdM et stupéfiants

Les figures 20 et 21 illustrent la somme des concentrations en stupéfiants exprimé en ng/L après correction par les PRC. Les Tableaux XI à XIV, regroupent l'ensemble des données en ng/L pour les stupéfiants et les RdM.

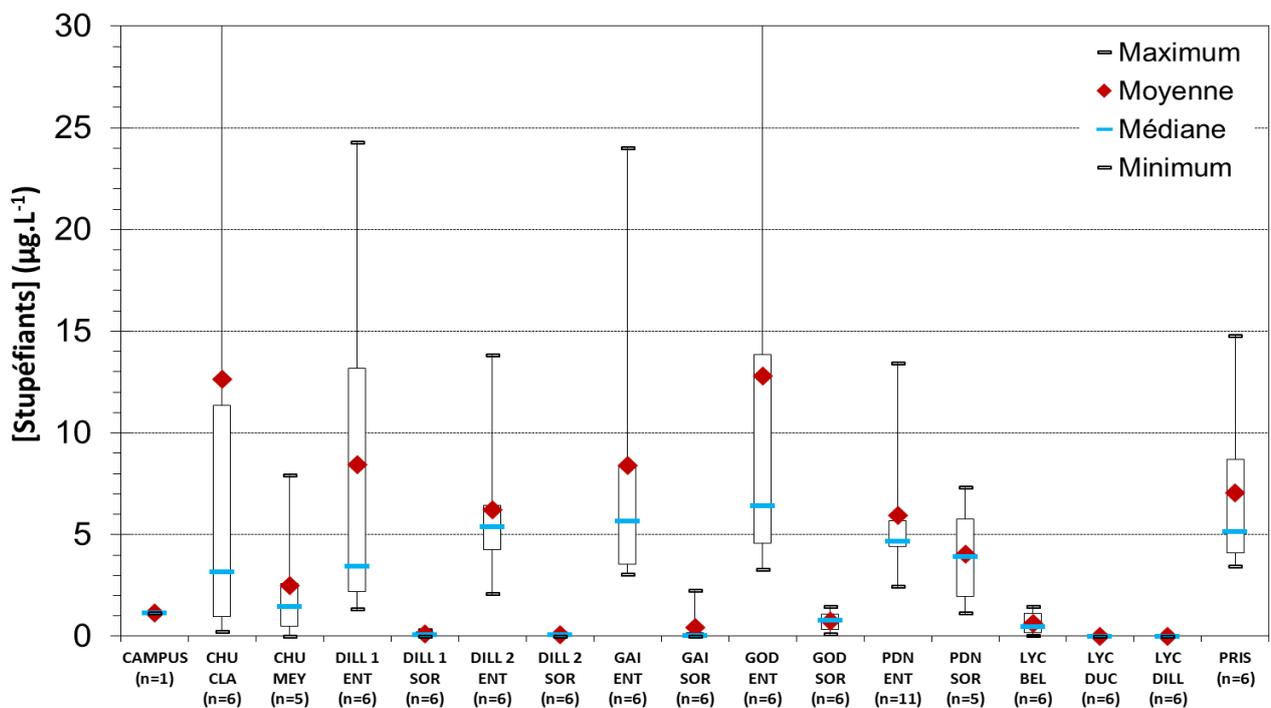


Figure 20 : Variations des concentrations totales en stupéfiants mesurées pendant la période d'échantillonnage dans les eaux de différents sites (CAMP : Campus de Schoelcher, CHU CLA : CHU Clarac ; CHU MEY : CHU de la Meynard, DILL 1 : STEU Dillon 1, DILL 2 : STEU Dillon 2, GAI : STEU Gaigneron, GOD : STEU Godissard, PDN : STEU Pointe des Nègres, LYC BEL : Lycée Bellevue ; LYC DUC : Lycée Place d'armes ; LYC DILL : Lycée professionnel Dillon, PRIS : Centre pénitentiaire de Ducos. La valeur max du CHU CLA est de 55 µg/L.

Pour les stupéfiants, les niveaux de concentrations, les plus élevés sont trouvés en sortie du CHU, en particulier le site de Clarac où est placé le pôle de gestion des addictions (55 µg/L au maximum). Les concentrations les plus élevées sont trouvées en entrée de STEU avec des concentrations médianes entre 3 et 6 µg/L.

Les concentrations en sortie de STEU sont très faibles, prouvant leur bonne efficacité dans l'élimination de ces stupéfiants dans les eaux : pour les STEU de Dillon 1, Dillon 2, Gaigneron (boue activée moyenne charge), la médiane de la somme trouvée en sortie de STEU est inférieure à 100 ng/L, et de 0,7 µg/L pour la STEU de Godissard (boue activée basse charge). Seule la STEU de PdN (dispositif *Biofor*) présente un abattement plus faible des stupéfiants (Tableau XII) avec, en sortie, une concentration médiane de l'ordre de 3,9 µg/L. Les eaux usées des lycées présentent des concentrations médianes inférieures à 1 µg/L et le campus de 1,15 µg/L.

Pour les RdM, la somme des concentrations les plus élevées est observée au niveau du site hospitalier de Clarac avec une moyenne de concentration de 131 µg/L. Cette valeur est beaucoup plus élevée que celle trouvée au niveau du site hospitalier de la Meynard (29 µg/L). Les entrées de STEU présentent des concentrations moyennes entre 19 et 26 µg/L équivalentes au CHU Meynard.

L'abattement des STEU est significatif dans les eaux car les sommes des concentrations en RdM en sortie de STEU sont quantifiées à des moyennes inférieures à 2 µg/L sauf pour PdN qui présente un taux d'abattement moindre (environ 5 µg/L en sortie de PdN).

Le lycée Bellevue présente des concentrations importantes (47 µg/L en moyenne pour la somme des RdM recherchés), le campus, le lycée central de Ducos et le centre pénitentiaire de Ducos présentent respectivement des concentrations de 17, 21 et 25 µg/L alors que le lycée professionnel de Dillon présente des concentrations plus faibles. Les faibles concentrations constatées au niveau du lycée professionnel de Dillon pourraient être dues à une mauvaise localisation des POCIS lors de l'échantillonnage, ce qui aurait amené les

POCIS à échantillonner les eaux de pluie plutôt que les eaux du réseau, mais aussi à un réseau résiduaire anastomosé limitant l'immersion des POCIS malgré le dispositif de rétention mis en place.

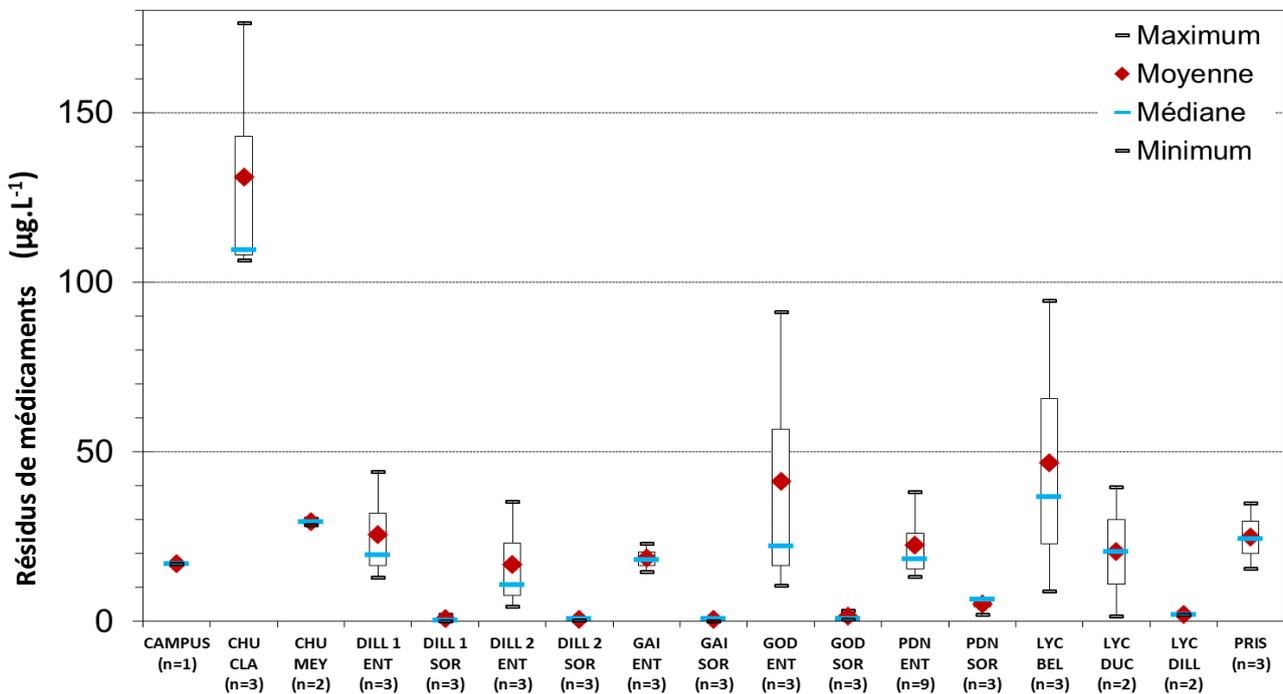


Figure 21 : Variations des concentrations totales en résidus de médicaments dans les eaux des différents sites échantillonnés (CAMP : Campus de Schoelcher, CHU CLA : CHU Clarac ; CHU MEY : CHU de la Meynard, DILL 1 : STEU Dillon 1, DILL 2 : STEU Dillon 2, GAI : STEU Gaigneron, GOD : STEU Godissard, PDN : STEU Pointe des Nègres, LYC BEL : Lycée Bellevue ; LYC DUC : Lycée Place d'armes ; LYC DILL : Lycée professionnel Dillon, PRISON : Centre pénitentiaire de Ducos.

#### 2.3.4.1.B Profils de contamination en RdM et stupéfiants

La figure 22 présente l'empreinte de contamination en stupéfiants retrouvée dans les eaux des différents sites échantillonnés. L'empreinte de contamination est largement dominée pour la majorité des sites par la benzoylécgonine. Cette molécule associée à la présence de norcocaine, de la cocaïne et de traces de cocaéthylène traduit la consommation de cocaïne (crack compris) par les habitants vivant sur ces sites.

La molécule la plus trouvée est ensuite le THC-COOH métabolite principale du cannabis, ce qui traduit également une consommation de cannabis par les populations de ces sites. Le site du campus et du Lycée Bellevue montrent un profil similaire avec une proportion plus importante de THC-COOH et une part importante de morphine sans raison médicale explicite. Le CHU de la Meynard présente également une proportion importante de morphine, qui peut être mise en rapport avec l'usage analgésique de cette molécule.

Le profil observé sur le lycée professionnel de Dillon est dû au fait que seule la cocaïne a été détectée à la concentration de 0,8 ng/L dans les échantillons prélevés, ce qui semble conforter l'erreur de positionnement des POCIS lors de l'échantillonnage et le fait que les eaux analysées ne soient pas composées essentiellement avec les eaux du réseau d'eaux usées ou que les POCIS n'ont pas pu être suffisamment mis en eau.

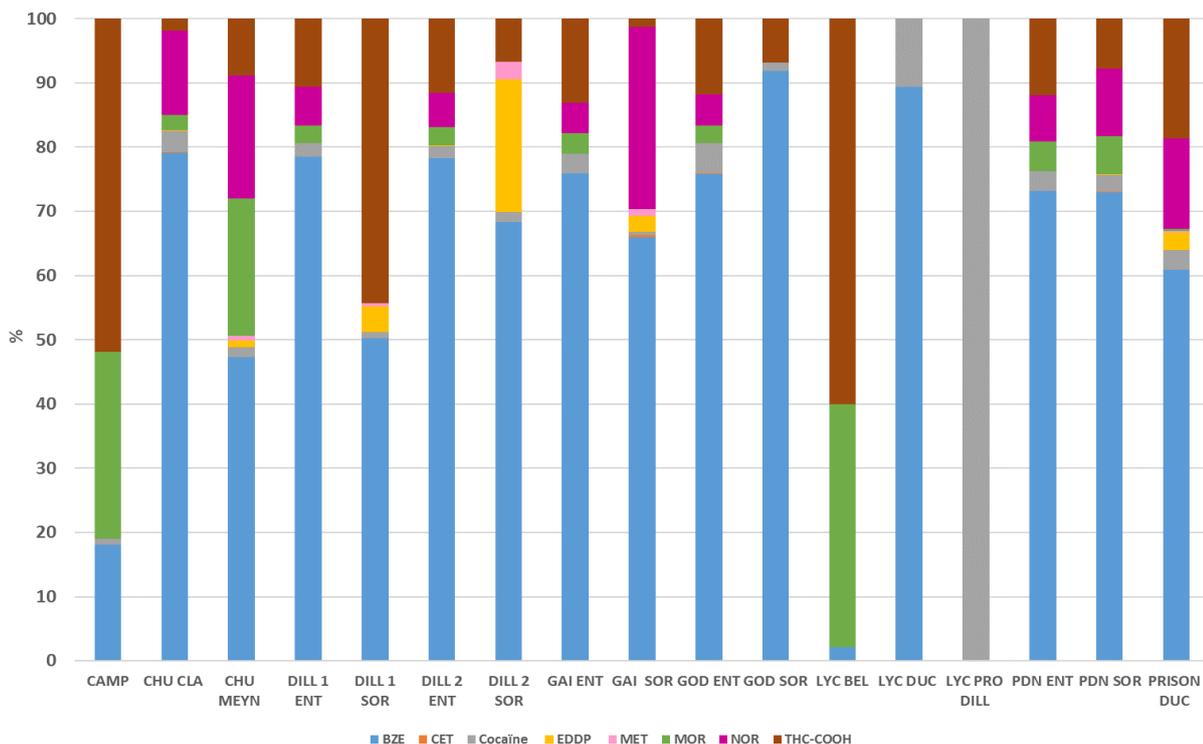


Figure 22 : Empreintes de contamination en stupéfiants dans les eaux des différents sites échantillonnés (CAMP : Campus de Schoelcher, CHU CLA : CHU Clarac ; CHU MEY : CHU de la Meynard, DILL 1 : STEU Dillon 1, DILL 2 : STEU Dillon 2, GAI : STEU Gaigneron, GOD : STEU Godissard, PDN : STEU Pointe des Nègres, LYC BEL : Lycée Bellevue ; LYC DUC : Lycée Place d'armes ; LYC DILL : Lycée professionnel Dillon, PRISON : Centre pénitentiaire de Ducos.

La **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**23 présente le profil de contamination en RdM trouvé dans les eaux des différents sites échantillonnés. Afin de faciliter la présentation graphique, les composés non détectés (alprazolam, clenbuterol, clonazepam, disopyramide, doxepine, imipramine, nefinavir) ont été supprimés ainsi que les composés présentant des concentrations inférieures à 20 ng/L (amitryptiline, diazepam, fluoxetine, gemfibrozil, lorazepam, meprobamate, nevirapine, nordiazepam, salbutamol, sildenafil)

Les empreintes de contaminations des eaux des sites du réseau et des entrées de STEU diffèrent des empreintes observées en sorties. La contamination des eaux des sites de réseau et des entrées de STEU sont largement dominés par la théophylline (entre 20 et 50 %) et la caféine (entre 11 et 38 %). Ces sites sont ensuite dominés par une forte proportion de paracétamol, puis l'acide salicylique (aspirine), ce qui confirme les résultats de Devault *et al.*, 2020.

Sur les empreintes de sortie de STEU, les molécules comme la théophylline, la caféine, l'acide salicylique étant bien abattus en STEU, le profil de contamination change et laisse apparaître dans l'empreinte les composés moins abattus comme la carbamazépine, le diclofénac, la cétirizine, le kétoprofène, le sotalol, l'oxazépam, le naproxène.

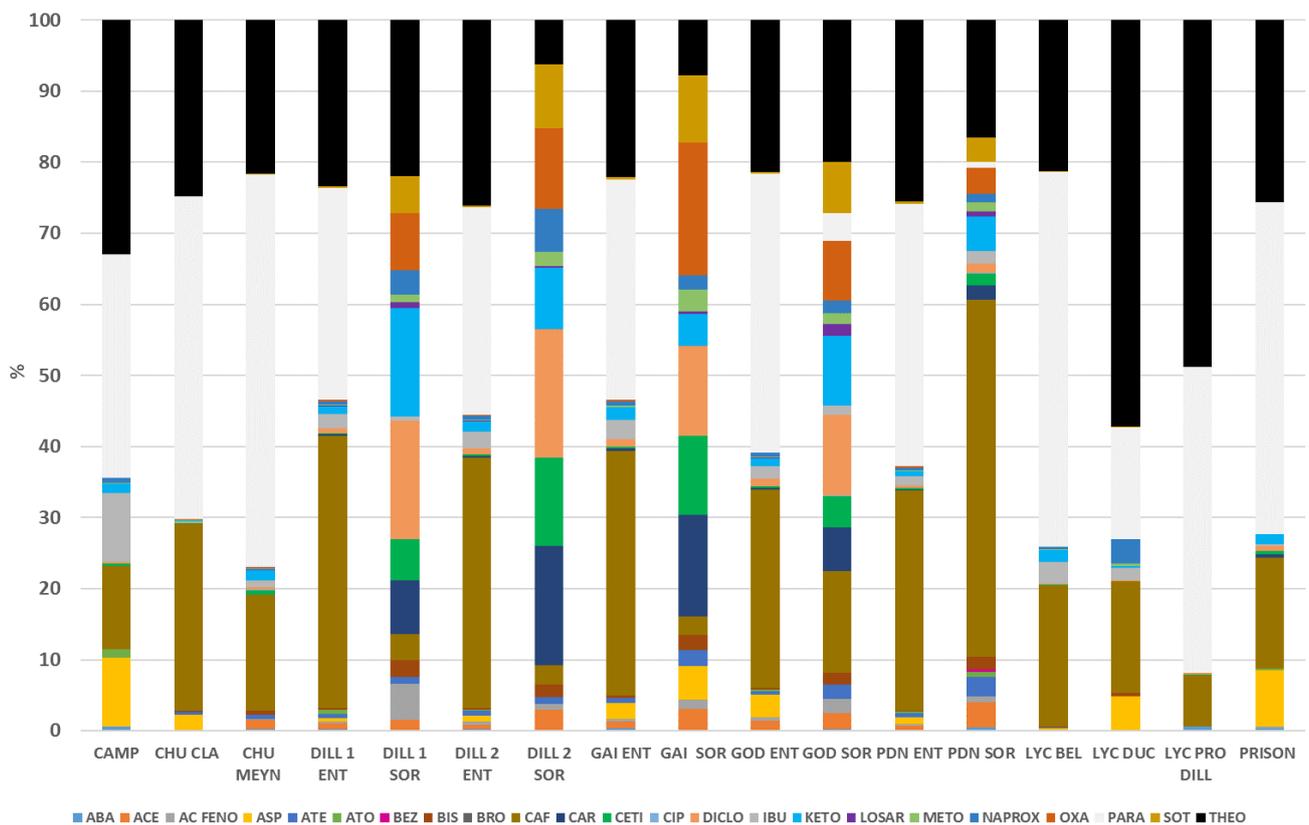


Figure 23 : Empreintes de contamination en résidus de médicaments dans les eaux des différents sites échantillonnés. (CAMP : Campus de Schoelcher, CHU CLA : CHU Clarac ; CHU MEY : CHU de la Meynard, DILL 1 : STEU Dillon 1, DILL 2 : STEU Dillon 2, GAI : STEU Gaigneron, GOD : STEU Godissard, PDN : STEU Pointe des Nègres, LYC BEL : Lycée Bellevue ; LYC DUC : Lycée Place d'armes ; LYC DILL : Lycée professionnel Dillon, PRISON : Centre pénitentiaire de Ducos.

### 2.3.4.2 Phase dissoute des eaux des rivières

Les niveaux de concentration trouvés dans les eaux des rivières sont nettement plus faibles que ceux observés pour les sites du réseau ou des STEU. Les **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** 24 et 25 illustrent les concentrations totales trouvées dans les eaux des différents sites en stupéfiants et en RdM.

Les concentrations en stupéfiants, les plus fortes sont observées pour la rivière Jambette et la rivière Case Navire avec des médianes de concentration totale à 896 et 210 ng/L. Les autres rivières présentent toutes des concentrations cumulées moyennes ou médianes inférieures à 200 ng/L.

Concernant les RdM, les rivières Lézarde, Madame, Monsieur et Salée présentent des niveaux moyens de concentration autour de 300 ng/L (Riv Lez  $234 \pm 306$  ng/L, Riv Mad :  $273 \pm 131$  ng/L, Riv Mon :  $253 \pm 228$  ng/L, Riv Sal :  $370 \pm 270$  ng/L), alors que les Rivières Jambette et Case navire présentent des concentrations plus importante (respectivement  $1\,036 \pm 406$  ng/L pour la rivière Jambette et de  $2\,549 \pm 4\,370$  ng/L pour la rivière Case Navire). Il faut noter que le prélèvement de la campagne 3 pour la Rivière Case Navire présente un fort niveau de RdM, cette tendance n'est pas constatée sur les 2 autres prélèvements, ce qui explique la grande différence entre la moyenne et la médiane sur ce site. Pour l'ensemble des trois campagnes c'est donc bien la rivière Jambette qui présente un profil de contamination plus élevé que la rivière Case Navire.

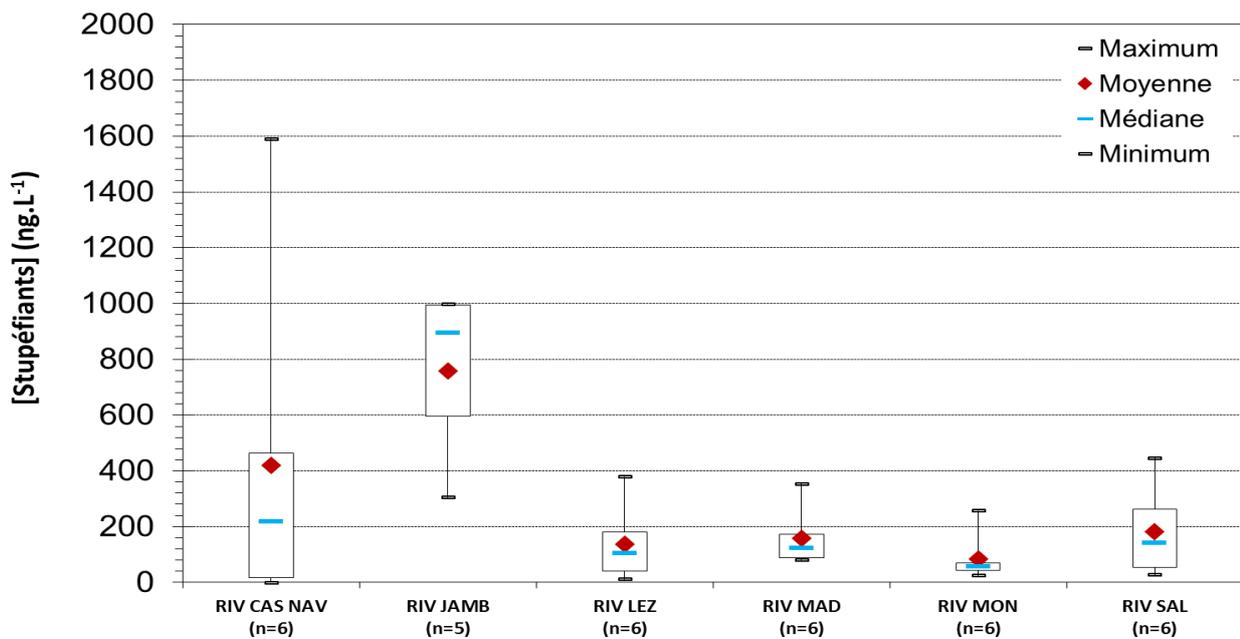


Figure 24 : Concentrations totales en stupéfiants trouvées dans les eaux des différents sites de rivières (ng/L)  
 (RIV CAS NAV : rivière Case Navire, RIV JAMB : rivière Jambette, RIV LEZ : Rivière Lézarde, RIV MAD : rivière Madame, RIV MON : rivière Monsieur, RIV SAL : rivière Salée).

Les profils de contamination en stupéfiants et en RdM dans les rivières sont présentés sur les **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** 26 et 27. Le profil en stupéfiants est dominé par la benzoylecgonine et le THC-COOH confirmant la consommation de cocaïne et de cannabis. Le profil de contamination en RdM présente un profil similaire à celui retrouvé en entrée de STEU dominé par la théophylline, la caféine, le paracétamol, l'acide salicylique et l'aspirine. Ceci illustre qu'il y a sur ces rivières des arrivées d'eaux usées non traitées. Le profil de la rivière Jambette et de la rivière Madame sont plus diversifiée que ceux des autres rivières et laisse apparaître une proportion plus importante de carbamazépine, de diclofénac, d'ibuprofène et de kétoprofène.

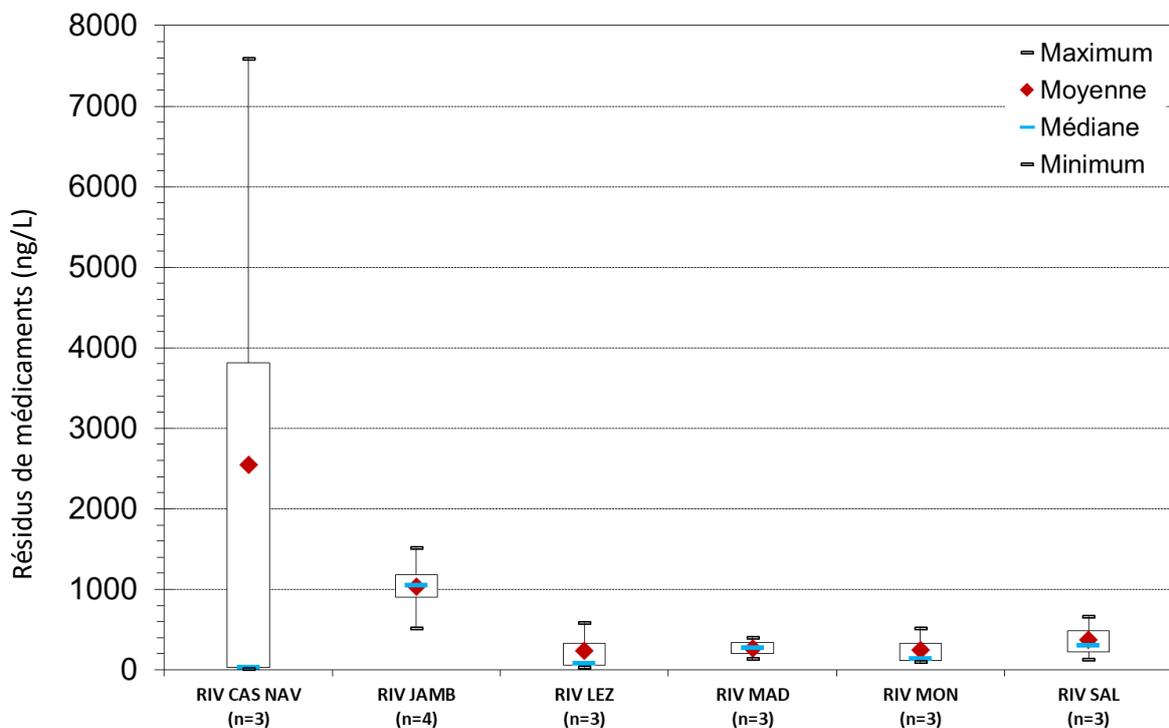


Figure 25 : Concentration totale en résidus de médicaments dans les eaux des différents sites de rivières (ng/L).  
 (RIV CAS NAV : rivière Case navire, RIV JAMB : rivière Jambette, RIV LEZ : rivière Lézarde, RIV MAD : rivière Madame, RIV MON : rivière Monsieur, RIV SAL : rivière Salée)

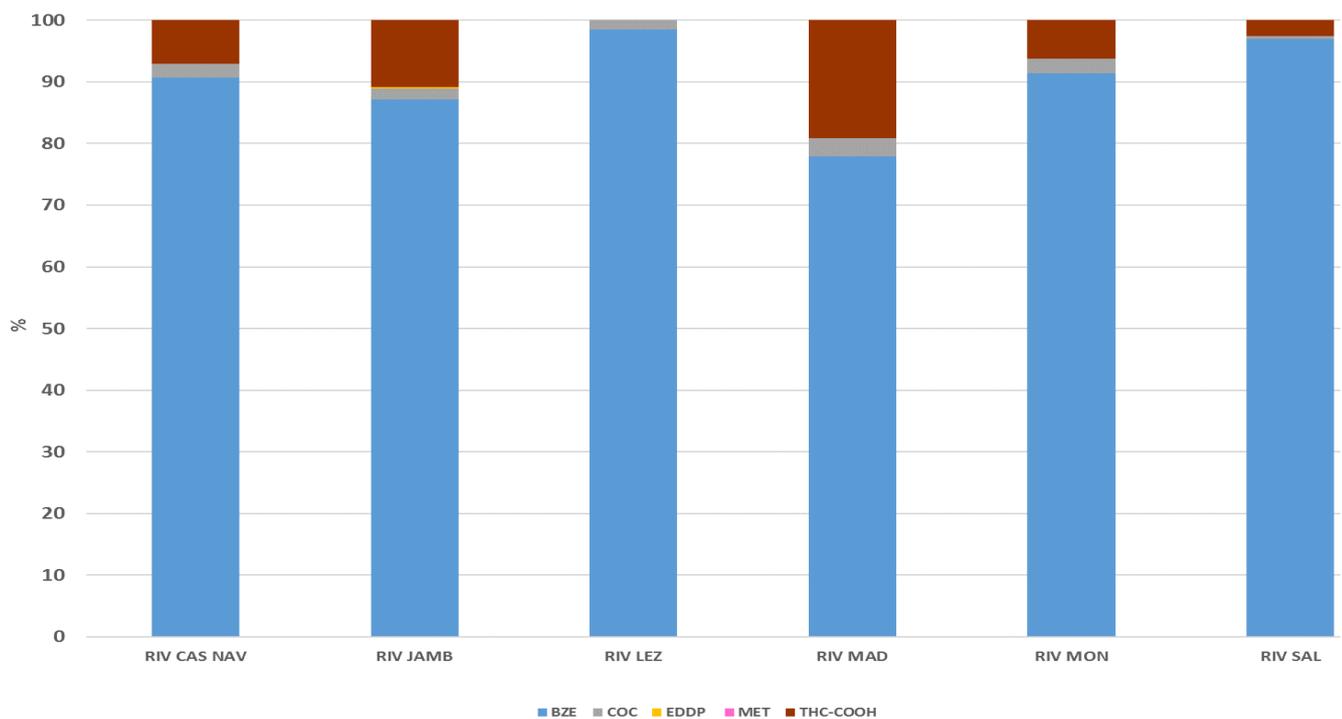


Figure 26 : Profils de contamination en stupéfiants pour les différents sites de rivières échantillonnés. (RIV CAS NAV : Case Navire, RIV JAMB : Jambette, RIV LEZ : Lézarde, RIV MAD : Madame, RIV MON : Monsieur, RIV SAL : Salée).

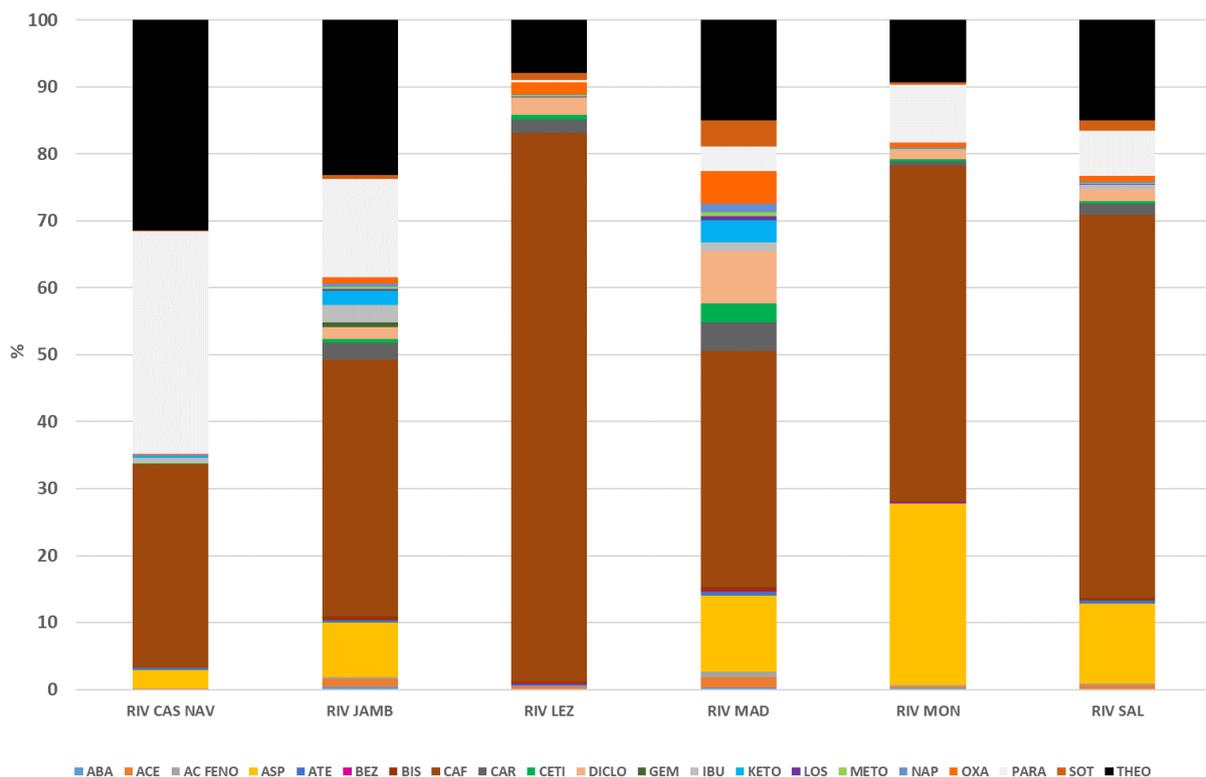


Figure 27 : Profils de contamination en résidus de médicaments pour les différents sites de rivières échantillonnés. (RIV CAS NAV : Case Navire, RIV JAMB : Jambette, RIV LEZ : Lézarde, RIV MAD : Madame, RIV MON : Monsieur, RIV SAL : Salée).

Les six rivières pré-citées ont été convenablement équipées mais seules deux ont présenté des concentrations très significatives en RdM. Ce sont les deux rivières les plus intriquées dans les zones urbaines. Les descriptions vont donc se limiter à ces deux cours d'eau.

La figure 29 illustre les niveaux de contaminations en RdM décrits dans la littérature internationale pour des eaux de surface et la figure 28 présente les résultats détaillés par molécules de la présente étude. Les molécules dont les concentrations sont comprises de 10 à 1000 µg/L dans les eaux de surface correspondent aux seuls anti-inflammatoires/antalgiques : ibuprofène, paracétamol, acide salicylique, diclofenac, kétoprofène, naproxène qui sont abondamment consommés et dont les taux d'excrétion sont élevés. La fluoxétine (un psychotrope) est également quantifiée à des concentrations élevées, pour les mêmes raisons.

La comparaison des résultats des 39 RdM analysés avec les données de la littérature pose le problème de comparaisons parfois délicates en fonction du niveau d'anthropisation des cours d'eau mais aussi du fait de grandes disparités dans le niveau d'information relative à chaque molécule : les plus recherchées sont très renseignées alors que les données sont rares voire inexistantes pour d'autres molécules.

Il est néanmoins possible de tirer quelques grandes tendances :

Parmi les *anti-inflammatoires/antalgiques*, si les concentrations observées dans les eaux de surface de la baie de Fort-de-France correspondent à celles de la littérature internationale, le paracétamol est présent dans les eaux analysées à des concentrations particulièrement élevées (parfois supérieures à 1 000 µg/L). Cette valeur est sporadiquement supérieure à celles d'eaux brutes de STEU locales et nous proposons de l'expliquer par l'importance des rejets directs et le faible taux de raccordement. Cette molécule est très bien éliminée de l'eau par les systèmes épuratoires classiques.

Les *psychotropes* présentent une concentration maximale d'environ 1 µg/L d'après la littérature et nos résultats sont en accord. La fluoxétine (un antidépresseur) est décrite à des concentrations (entre 10 et 100 µg/L) proches de la concentration induisant des premiers effets observables (CMEO) selon Stanley *et al.* (2007). L'oxazepam, bien que principe actif, est aussi le métabolite de la diazépine et de la nordiazépine, molécules qui sont trouvées à des concentrations dans les eaux brutes foyalaises autour de 1 µg/L et assez élevées par rapport à la littérature (autour de 0,01 µg/L). L'oxazepam pourrait ainsi signer une préférence locale pour la diazépine.

Les *béta-bloquants* sont observés à des concentrations proches des valeurs publiées par ailleurs, mais les autres études impliquent rarement un tel nombre de béta-bloquants ensemble. Le signal est donc inquiétant car les résidus de ces molécules ont des effets nerveux et cardiaques même à ces concentrations de l'ordre du ng/L (Owen *et al.*, 2007 ; Godoy *et al.*, 2015).

Les résidus d'*antiarythmiques*, d'*hypolipémiants* et d'*antihypertenseurs* présentent des concentrations proches de celles décrites dans la littérature, et avec des fréquences moindres.

La *carbamazépine* (antiépileptique), est fréquemment quantifiée à plus de 1 µg/L, ce qui est une concentration supérieure aux données observées par la communauté scientifique.

Les *antihistaminiques* et *anti-agrégants plaquettaires*, le sildenafil et la caféine présentent des concentrations et des fréquences proches de celles de la littérature internationale.

Parmi les *traitements de prévention et de soin du SIDA*, l'abacavir présente des concentrations supérieures à ce qui est renseigné dans le monde, ce qui peut illustrer la prégnance de cette thématique sanitaire en Martinique comme dans la Grande Caraïbe (Gessain et Cassar, 2012).

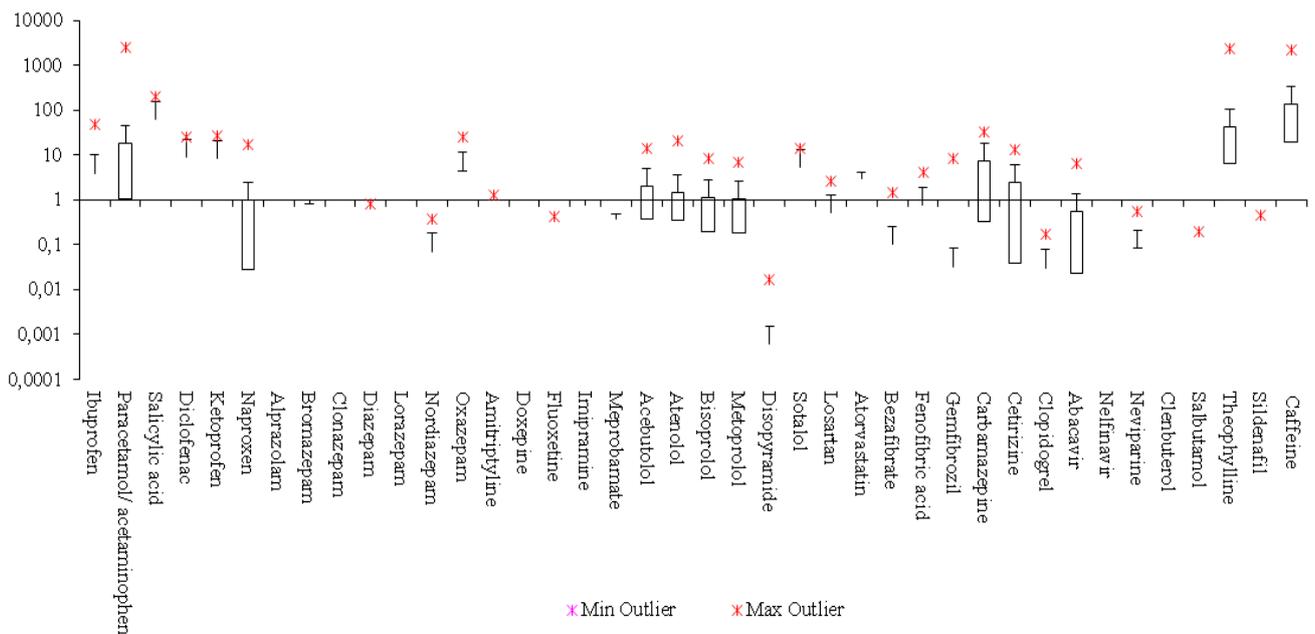


Figure 28 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux de surface du bassin versant de la Baie de Fort-de-France ( $\mu\text{g/L}$ ) ( $n=12$ ).

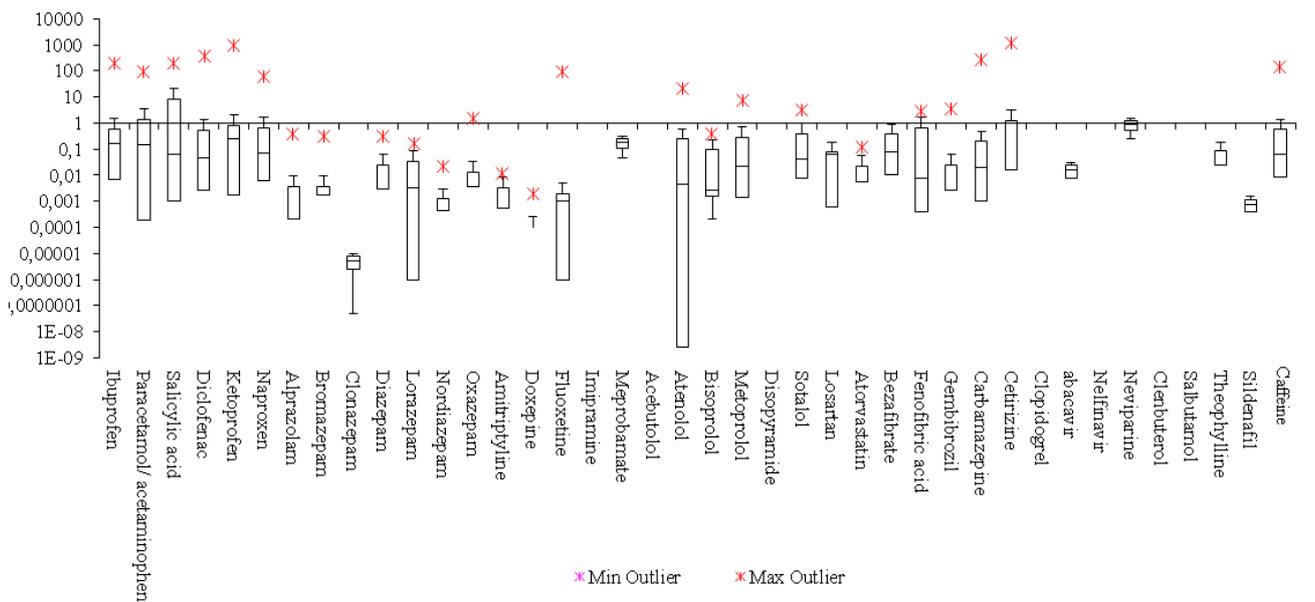


Figure 29 : Concentrations de résidus de médicaments dans des eaux de surface de plusieurs pays d'après la littérature internationale ( $\mu\text{g/L}$ ). Agunbiade et Moodley (2014, 2015, 2016), Amdany et al. (2014abcd), Aminot et al. (2017), Archer et al. (2017abc), Ashfaq et al. (2017), Battaglin et al. (2018), Bean et al. (2018), Biel-maeso et al. (2018b), Boleda et al. (2013), Bu et al. (2013), Burns et al. (2018), Buser et al. (1999), Caban et al. (2015), Carmona et al. (2014), Celle-Jeanton et al. (2014), Cesen et al. (2018), Dahane et al. (2013ab), Dalahmeh et al. (2020), Elliott et al. (2018), Ferrer et Thurman (2012), Ferrey et al. (2015), Fisch et al. (2017), Gonzalez-Alonso et al. (2017), Gonzalez-Rey et al. (2015), Guruge et al. (2019), He et al. (2018), Hin et al. (2018), Honjo et al. (2017), Hossain et al. (2018), Huerta-Fontela et al. (2011), Ibe et al. (2018), Kermia et al. (2016), Kermia et al. (2016), Kim et al. (2009), Koné et al. (2013), K'oreje et al. (2016), Kristofco et Brooks (2017), Lin et al. (2018a), Lindim et al. (2016ab, 2019), Lv et al. (2014), Mackulak et al. (2019), Madikizela et Chimuka (2016), Madikizela et al. (2014), Majumder et al. (2019), Mandaric et al. (2017), Marsik et al. (2017), Matongo et al. (2015), Matongo et al. (2015ab), Meffe et Bustamante (2014), Mendoza et al. (2014ab), Mutiyar et al. (2018), Mutiyar et al. (2018), Olarinmoye et al. (2016), Paiga et al. (2016), Peng et al. (2018), Pereira et al. (2017), Pivetta et al. (2020), Praveena et al. (2018), Racamonde et al. (2014), Rehrl et al. (2020), Ribeiro de Sousa et al. (2018),

Rivera-Jaimes et al. (2018), Sousa et al. (2018), Tixier et al. (2003), Vystavna et al. (2012), Wahlberg et al. (2011), Wood et al. (2015), Wu et al. (2015), Xiang et al. (2008), Yang et al. (2018), Yao et al. (2018), Zha et al. (2017).

L'occurrence de l'asthme est sévère en Martinique et est aggravée par l'intensité et la permanence des brumes de sables (Santé Publique France, 2012) : cela peut expliquer les hautes concentrations de théophylline, présente à des concentrations 10 à 100 fois supérieures aux informations publiées. Toutefois, des origines liées à la consommation de café et de thé sont possibles.

#### 2.3.4.3 Le cas des eaux des STEU

La comparaison des concentrations dans les eaux usées brutes et traitées permet d'approcher l'abattement des STEU pour ces produits dont certains sont connus pour leur relativement faible abattement épuratoire dans diverses installations, quelles que soient les modes de traitement et la présence ou non d'une phase tertiaire. Pour autant, les travaux précédents sur des sites martiniquais ont montré que les conditions « tropicales », dont une température d'eau affluente supérieure à celle observée en moyenne en zone tempérée, justifient la bonne efficacité des STEU martiniquaises (Dillon 1 et 2 à boues activées mais aussi PdN mettant en œuvre le principe *Biofor*) sur les stupéfiants (Devault *et al.*, 2017b). Ces évaluations avaient été réalisées en utilisant les préleveurs automatiques réfrigérés asservis au débit avec une estimation quotidienne du taux d'abattement. La présente étude implique le déploiement d'échantillonneurs passifs sur plusieurs jours et estime un taux d'abattement sur 3 jours. Les concentrations dans les eaux usées brutes et traitées seront également mises en perspective avec le taux de raccordement et la contamination des eaux de surface.

##### **Eaux brutes**

Les concentrations en anti-inflammatoires et paracétamol présentes dans la littérature (entre 0,01 et 1 000 µg/L, figure 31) comprennent les valeurs de concentrations observées dans les eaux brutes martiniquaises (0,1 à 10 µg/L, figure 30) tout comme pour les psychotropes (0,001 à 0,1 µg/L en Martinique comme à l'échelle globale) et le sotalol, seul médicament contre l'arythmie observé dans la littérature et notre étude.

Le cas de l'oxazépam a déjà été partiellement abordé pour les eaux de surface : il apparaît des concentrations élevées qui peuvent être justifiées par l'usage du nordiazepam et du diazepam, ce dernier étant aussi un substitut à la consommation de drogues. Si cet usage a été mis en évidence durant le suivi, notamment par des addictologues travaillant sur la population de mineurs, il serait prématuré d'assurer une prévalence de l'oxazépam à cause de cette usage narcotique car les eaux usées issues des lycées n'ont pas mis en évidence de présence ni d'oxazépam ni de diazepam (voir plus loin).

Le losartan, médicament contre l'hypertension, n'a jamais été décrit dans la littérature internationale mais est observé entre 0,01 et 1 µg/L, tout comme la théophylline qui est la troisième molécule la plus concentrée dans les eaux usées de notre étude. Une attention pourrait être portée à l'éventualité d'un lien avec des « brumes des sables » qui affectent particulièrement les asthmatiques localisés aux Antilles. Le sildenafil n'a, lui non plus, jamais été décrit dans la littérature mondiale mais présent, quoi qu'en très faible concentration (autour de 0,001 µg/L), dans les eaux brutes suivies.

Les hypolipémiants, antiépileptiques, antihistaminiques et anti-agrégants plaquettaires s'observent à des concentrations similaires à celles publiées par ailleurs (0,01 à 10 µg/L).

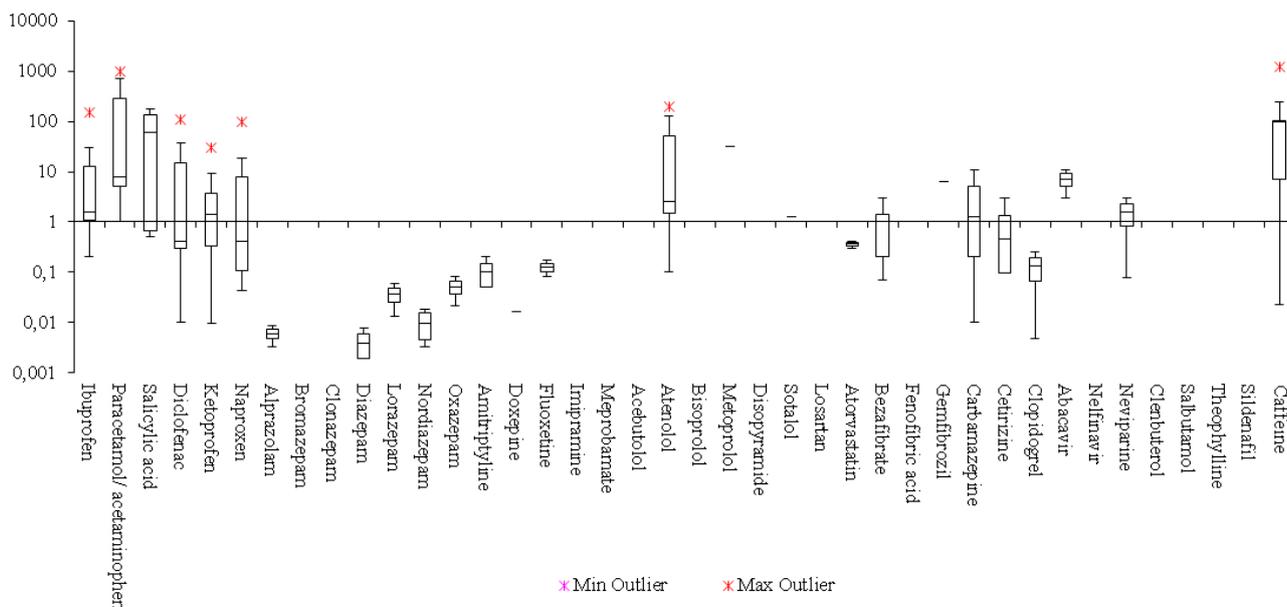


Figure 30 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux usées brutes des STEU du bassin versant de Fort-de-France (µg/L). Molécules non-détectées : Alprazolam, bromazepam, clonazepam, lorazepam, doxepine, fluoxetine, imipramine, meprobamate, disopyramide, nelfinavir, clenbuterol (n=15).

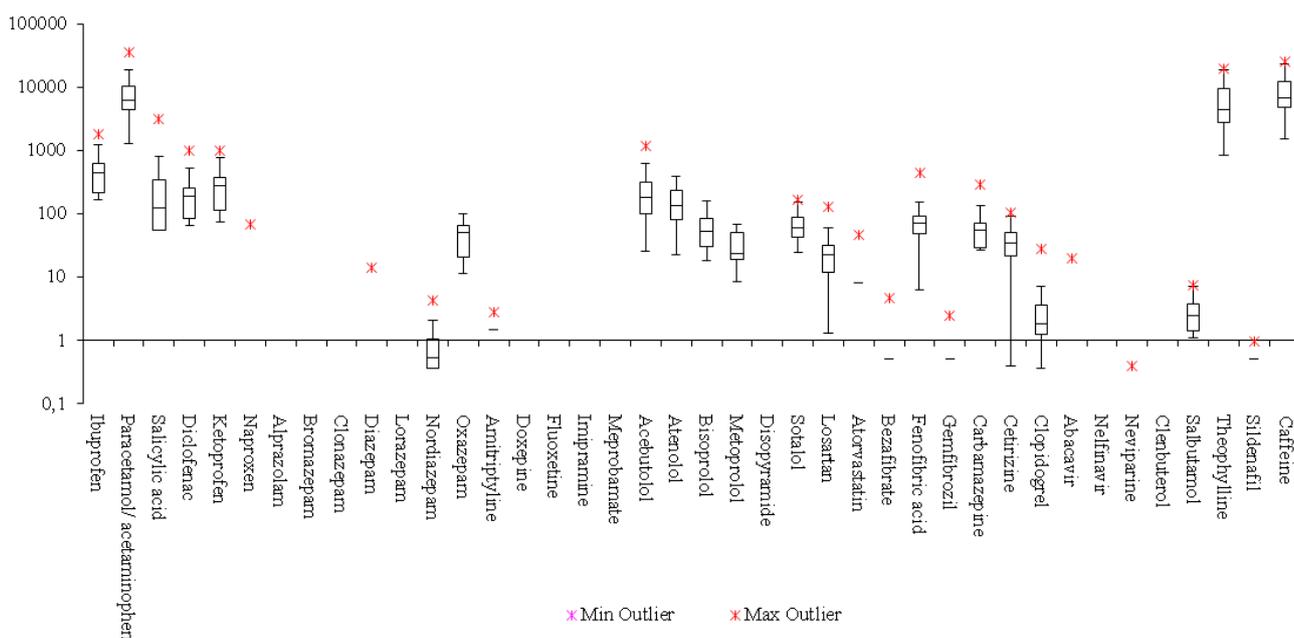


Figure 31 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux usées brutes des STEU d'après la littérature internationale (µg/L) : Afabe et al. (2018), Agunbiade et Moodley (2016), Amdany et al. (2014), Amdany et al. (2015), Aminot et al. (2015), Archer et al. (2017), Bahlmann et al. (2012), Balakrishna et al. (2017), Boulard et al. (2018), Dahane et al. (2013), Funke et al. (2016), Galletti et al. (2011), Kermia et al. (2016), K'oreje et al. (2016 et 2020), Kristofco et Brooks (2017), Madikizela et Chimuka (2016), Madizikela et al. (2014), Majumder et al. (2019), Matongo et al. (2015a, 2015b), Mosekiemang et al. (2019), Ngumba et al. (2016), Osunmakinde et al. (2013), Pivetta et al. (2020), Prasse et al. (2010), Racamonde et al. (2014), Santos et al. (2013), Schoeman et al. (2015 et 2017), Sim et al. (2011 et 2013), Verlicchi et al. (2010), Wahlberg et al. (2011), Wu et al. (2015). Pas de données trouvées pour le bromazepam, le clonazepam, l'imipramine, le meprobamate, l'acebutolol, le bisoprolol, le disopyramide, le losartan, l'acide fenofibrique, le nelfinavir, le clenbuterol, le salbutamol, le theophylline et le sildenafil.

L'abacavir et la névikiparine ont été quantifiés une seule fois et à des concentrations proches de celles décrites par la littérature internationale pour ces molécules de prévention et de traitement du VIH.

Les stupéfiants présentent des concentrations corroborant celles très élevées observées précédemment (Devault *et al.*, 2014 et 2017, Gonzalez-Marino *et al.*, 2020). Ainsi, la benzoylecgonine, métabolite principal de la cocaïne (donc du crack) atteint 16,6 µg/L (moyenne : 6,38 ± 4,1 µg/L) et la cocaïne elle-même 1 µg/L (moyenne : 0,28 ± 0,22 µg/L) mais la norcocaïne n'a jamais été observée à des concentrations supérieures à la cocaïne elle-même, de telle sorte que l'artefact analytique ne puisse pas être exclu (cf. les réserves autour de la norcocaïne en chapitre 2.1 et particulièrement le tableau V).

Le THC-COOH présente des concentrations proches de celles déjà observées localement (Devault *et al.*, 2014).

Dans ces articles précédents, les auteurs faisaient mention de l'absence de détection et, a fortiori, de quantification de cocaéthylène (issu de la co-métabolisation de l'alcool et de la cocaïne) du fait de la fréquence d'addiction croisée cocaïne/alcool. La présente étude parvient à quantifier cette molécule, à des faibles concentrations par rapport aux concentrations de cocaïne.

### **Eaux traitées**

En se basant sur les résultats présentés dans les figures 32 et 33, les anti-inflammatoires et le paracétamol sont décrits à des concentrations dans les eaux traitées comprises entre 0,01 et 10 µg/L sauf pour l'ibuprofène selon K'oreje *et al.* (2016) autour de 100 µg/L : les valeurs observées dans la présente étude corroborent les études internationales sauf cette dernière. L'alprazolam, le bromazepam et le diazepam (des psychotropes) sont décrits entre 0,001 et 0,01 µg/L alors que tous les autres (oxazepam et nordiazepam compris) sont indiqués présenter des concentrations d'un ordre au-dessus.

Pivetta *et al.* (2020) ont pu obtenir la collaboration des pharmaciens de leur secteur d'étude pour obtenir les données concernant la vente de médicaments.

Malheureusement, l'Ordre des pharmaciens de Martinique n'a pas accepté de collaborer de cette manière de telle sorte que le lien entre la consommation de psychotropes et les effluents de STEU a pu être établi par Pivetta *et al.* (2020) ce qui n'a pas été possible pour la présente étude. Dans les eaux traitées étudiées, seuls le diazepam et le nordiazepam ont pu être quantifiés à des valeurs conventionnelles au regard de la littérature internationale (0,001 à 0,01 µg/L), mais l'oxazepam, déjà fortement observé dans les eaux de surfaces et eaux usées brutes foyalaises, atteint des concentrations inédites : 0,02 à 0,3 µg/L. Tous les autres psychotropes n'ont pas été détectés.

Les bêtabloquants sont rarement signalés dans la littérature internationale et, quand ils le sont, avoisinent 1 et 4 µg/L dans les effluents de STEU (atenolol et métoprolol, respectivement Wahlberg *et al.* (2011) et Koreje *et al.* (2020) ; Fick *et al.* (2009) et Wahlberg *et al.* (2011)). Dans la présente étude, les concentrations sont comprises entre 0,003 et 1,16 µg/L, avec des valeurs plus homogènes que les études internationales.

Les concentrations en sotalol, losartan, acide fénofibrique, clopidogrel et théophylline observées dans la présente étude ne peuvent être comparées aux travaux internationaux faute de publications à leur sujet.

Si les concentrations en carbamazépine correspondent au quartile le plus bas des données internationales, ce constat est encore plus vrai pour la cétirizine, qui peut atteindre 1 000 µg/L dans les effluents d'après la littérature scientifique mais n'excéda jamais 0,5 µg/L dans nos analyses. De même, aucun produit de traitement contre le VIH n'a été observé dans les effluents.

La caféine a présenté des concentrations comparables à celles décrites à l'échelle internationale (0,01 à 10 µg/L).

Concernant les stupéfiants, les résultats internationaux sont disponibles (Postigo *et al.*, 2010 ; Pal *et al.*, 2013 ; Meffe et Bustamante, 2014) mais également des résultats locaux (Devault *et al.*, 2017b) : toutes les études, locales ou non, décrivent des concentrations plus faibles que celles de la présente étude (la benzoylecgonine atteint 5,7 µg/L pour une moyenne de 0,95 ± 1,6 µg/L) qui sont davantage de l'ordre de ce qui se constate dans les eaux brutes ailleurs. Cet écart est encore plus flagrant considérant les STEU mettant en œuvre des boues activées. Dans le même ordre d'idée, la concentration en cocaïne dans les effluents atteint 0,236 µg/L et le THC-COOH 2,73 µg/L.

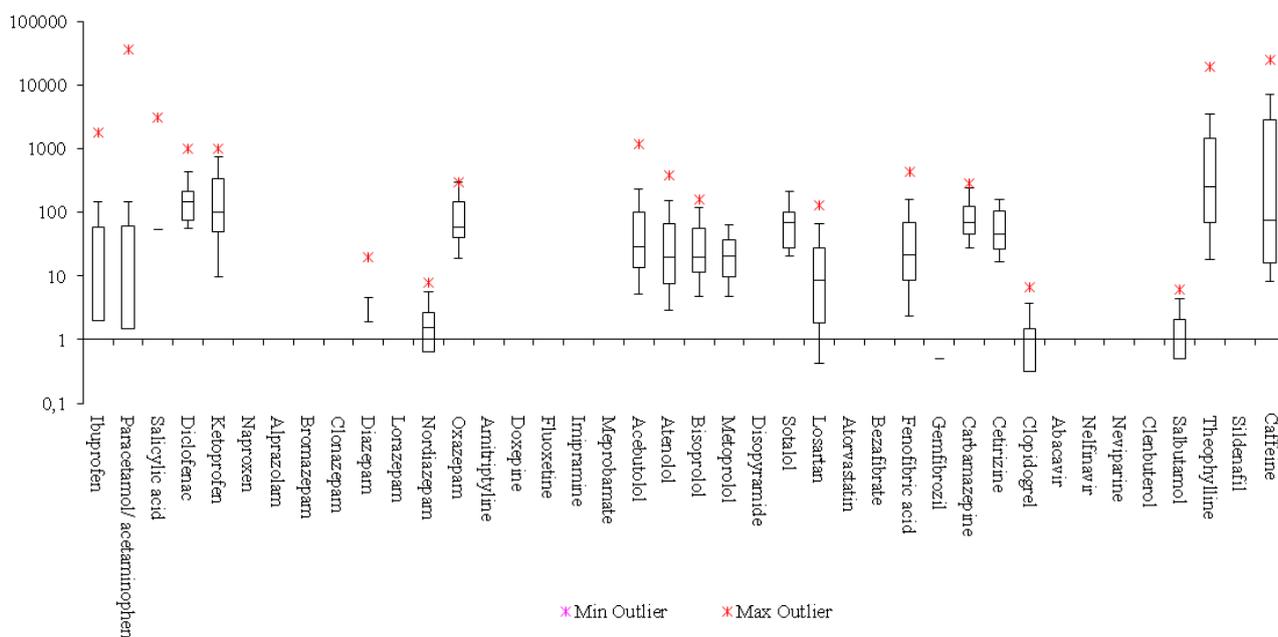


Figure 32 : Concentration en résidus de médicaments dans les effluents de STEU de la baie de Fort-de-France (µg/L). Molécules non détectées : acide salicylique, clonazepam, imipramine, meprobamate, acebutolol, bisoprolol, disopyramide, sotalol, losartan, fenofibrac acid, gemfibrozil, clopidogrel, abacavir, nelfinavir, clenbuterol, salbutamol, theophylline, sildenafil (n=15).

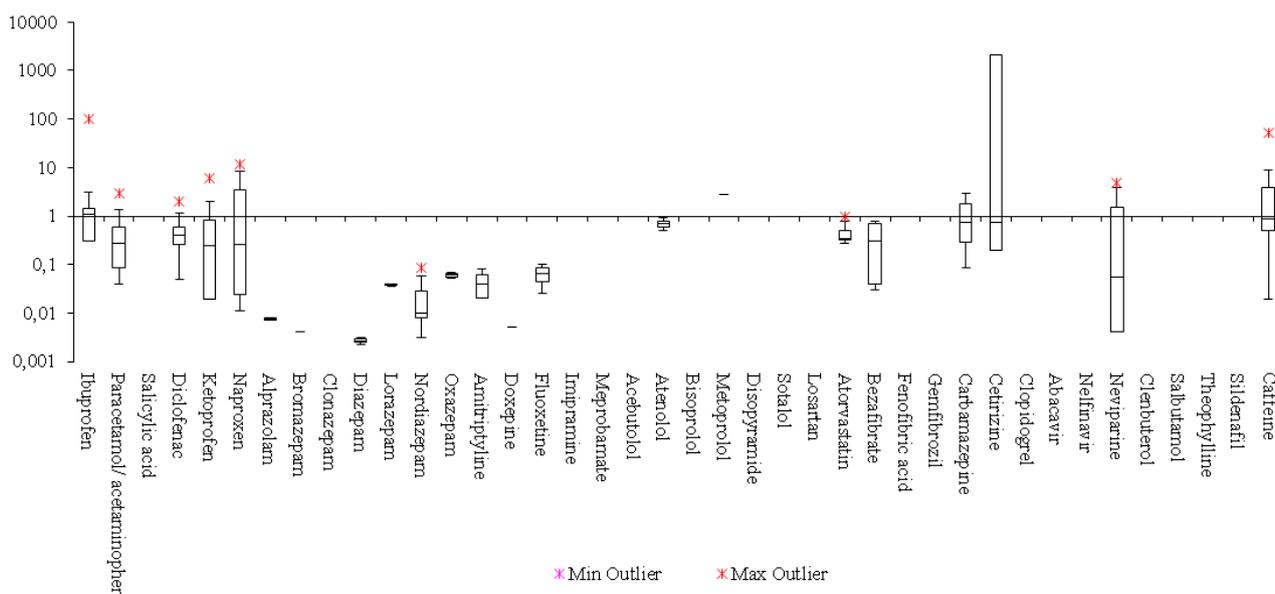


Figure 33 : Concentrations de résidus de médicaments dans des eaux usées traitées d'après la littérature internationale (µg/L) : Afabe *et al.* (2018), Agunbiade et Moodley (2016), Amdany *et al.* (2014 et 2015), Aminot *et al.* (2015), Archer *et al.* (2017), Bahlmann *et al.* (2012), Balakrishna *et al.* (2017), Boulard *et al.* (2018), Chèvre (2014), Dahane

et al. (2013), Fick et al. (2009), Funke et al. (2016), Kermia et al. (2016), Koné et al. (2013), K'oreje et al. (2016), K'oreje et al. (2020), Kristofco et Brooks (2017), Madikizela et Chimuka (2016), Madizikela et al. (2014), Matongo et al. (2015ab), Mosekiemang et al. (2019), Ngumba et al. (2016), Osunmakinde et al. (2013), Pivetta et al. (2020), Prasse et al. (2010), Racamonde et al. (2014), Schoeman et al. (2015 et 2017), Tixier et al. (2003), Wahlberg et al. (2011), Wu et al. (2015). Pas de données trouvées pour l'acide salicylique, le clonazepam, l'imipramine, le meprobamate, l'acebutolol, le bisoprolol, le disopyramide, le sotalol, le losartan, l'acide fenofibrique, le gemfibrozil, le clopidogrel, l'abacavir, le nelfinavir, le clenbuterol, le salbutamol, le theophylline, le sildenafil.

### **Efficacité des traitements épurateurs**

Comparer les eaux traitées et les eaux usées brutes donne une idée de l'abattement même si cela n'autorise pas la compréhension des mécanismes fins. Pour les cinq STEU étudiées, quatre exploitent un traitement conventionnel par boues activées et PdN intègre un biofiltre de type *Biofor* (Détails, Devault *et al.* 2020).

Les STEU exploitant les boues activées sont réputées plus efficaces selon les types de contaminants que les biofiltres dont les avantages tiennent à la discrétion de l'ensemble (Devault *et al.*, 2017b et 2020).

Dans la présente étude, les moyennes des abattements (n=3) des 21 molécules de RdM quantifiées sont détaillées dans la figure 34. L'abattement des STEU apparaît homogène, quel que soit le processus mis en œuvre à l'exception de Gaigneron lors de la première campagne dont les eaux usées traitées, pourtant olfactivement et visuellement compatibles, présentaient des concentrations proches des eaux usées brutes. Ainsi, si les meilleurs abattements sont observés pour les STEU à boue activée moyenne charge de Dillon 1 et 2, l'abattement moyen de la PdN est de  $31 \pm 51$  %, supérieur à celui de la STEU de Godissard présente un abattement moyen pour ces molécules, de  $22 \pm 89$  %. Il faut signaler que Godissard est une STEU à boues activées à charge basse contrairement aux STEU de Dillon 1 et 2 et Gaigneron, qui sont à charge moyenne à haute. L'abattement moyen, toutes STEU comprises, est de  $42 \pm 16$  % : un tel résultat est plus faible que celui observé par Devault *et al.*, 2017 pour les stupéfiants dans la STEU de Pointe-des Nègres mais assez proche de celui de Devault *et al.* (2020) pour des RdM sur le même établissement.

La littérature internationale propose un abattement moyen de 50 à 70 % (pour n'en citer que quelques-uns, Kasprzyk-Hordern *et al.*, 2009 ; Luo *et al.*, 2009 ; Verlicchi *et al.*, 2012 ; Kim *et al.*, 2018 ; Krzeminski *et al.*, 2019). Bien que cette « moyenne de moyennes » soit éminemment discutable car dépendante des conditions d'exploitation, des concentrations en entrée, de la diversité des micropolluants, des dispositifs eux-mêmes (liste non exhaustive), notre résultat s'appuie sur des échantillonneurs passifs permettant donc des limites de quantification meilleures que les approches conventionnelles par analyse de l'eau mais limite aussi les concentrations extrêmes et les pics de volumes qui sont connues pour court-circuiter les processus épuratoires, et a fortiori ceux à cycle court (comme les biofiltres et basse charge). Ces phénomènes pourraient donc artificiellement augmenter l'estimation du rendement des STEU.

Les travaux précédents sur les stupéfiants ont montré que l'abattement de la cocaïne et de ses métabolites a toujours excédé 85 % dans les STEU à boue activée, voire 95 % pour la BZE, un abattement comparable à celui observé dans notre étude (85 % minimum pour toutes les STEU), de même pour l'ensemble des stupéfiants ( $84,0 \pm 9,2$  %).

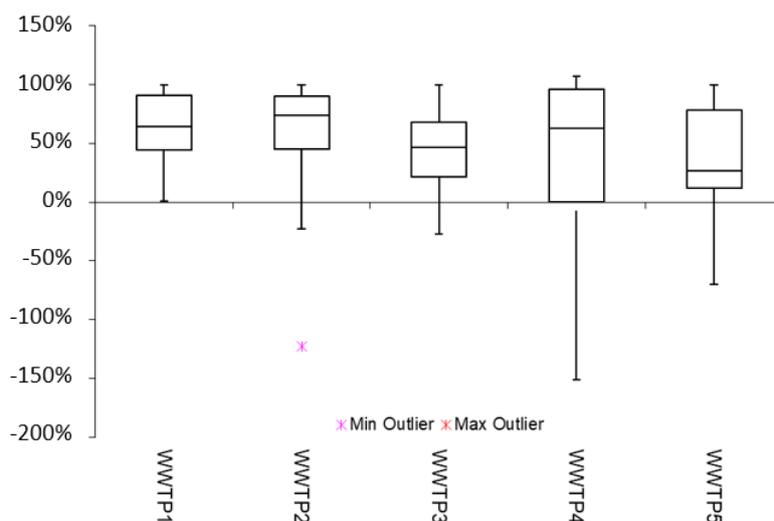


Figure 34. Abattements moyens des RdM (chaque campagne, chaque molécule) dans les STEU de la baie de Fort-de-France (%). WWTP1 : Dillon 1. WWTP2 : Dillon 2. WWTP3 : Pointe-des-Nègres. WWTP4 : Godissard. WWTP5 : Gaigneron.

### Effluents et eaux de surface

Malgré leur efficacité, la littérature mondiale tout comme les présents résultats nous indiquent que la contamination des effluents de STEU par les RdM sont de dix (anti-inflammatoires) à cent fois (les autres RdM) plus contaminés que les eaux de surface qui les reçoivent.

En Martinique, les stupéfiants sont un cas particulier : l'analyse des moyennes des concentrations est biaisée car dans les eaux de surface elles correspondent à  $36,7 \pm 20,2$  % de celles des effluents de STEU qui pourtant les éliminent notablement dans les eaux usées. Néanmoins, la plupart des cours d'eau étudiés ne reçoivent pas d'effluents de STEU. De plus, quand c'est le cas, la dilution ne peut expliquer cette proportion car les STEU ne représentent pas une fraction suffisante du volume d'eau de la rivière concernée.

Deux informations peuvent être extraites :

- La contamination des eaux de surface par les RdM se concentre sur deux rivières urbanisées, les autres présentent des concentrations de RdM indétectables.
- Aucune STEU locale n'est équipée de traitement tertiaire. Leur intérêt pour préserver la qualité de la ressource est discuté selon le niveau de polarité des molécules concernées et notamment pour les résidus de stupéfiants (Gabet-Giraud, 2010 ; Néfau, 2014). En focalisant l'effort de collecte et de traitement sur quelques STEU de forte capacité, il pourrait être plus aisément mis en place de tels procédés qui demandent, pour être pleinement efficaces, un suivi spécifique.

La diminution de la consommation de médicaments parmi ceux ayant un impact environnemental significatif et dans la mesure du possible et sans induire de risques pour la santé publique, est aussi une voie d'approche pour restaurer la qualité des eaux de surface.

#### 2.3.4.4 Le cas des eaux usées issues d'établissements de soins

Les eaux usées hospitalières font l'objet d'études nombreuses car elles correspondent à des lieux de soin, laissant supposer des concentrations élevées de RdM. Des concentrations très élevées ont été décrites, notamment pour des médicaments d'usage rare en population générale. Les résultats de la présente étude

sont légèrement inférieurs à ceux de la littérature scientifique par leurs concentrations mais aussi par leur diversité (Santos *et al.*, 2013 ; Carraro *et al.*, 2016) (Figures 35 et 36).

Les concentrations en anti-inflammatoires sont inférieures d'un ordre en Martinique par rapport aux valeurs publiées, mais l'inverse est observé pour les psychotropes et le paracétamol. Les antiarythmiques présentent des concentrations de l'ordre de 0,01 µg/L dans les eaux usées hospitalières de Martinique contre 1 à 10 µg/L ailleurs. Les traitements de l'asthme, et singulièrement la théophylline déjà évoquée, les agents limitant l'agrégation plaquettaire et les soins de la dysfonction érectile et contre le HIV ne sont pas quantifiés dans la littérature mondiale mais le sont dans notre étude. Les concentrations en caféine sont comparables aux valeurs de la littérature mondiale.

Les concentrations de résidus de stupéfiants dans les eaux usées hospitalières sont très comparables à celles des eaux usées des STEU correspondantes. Par contre, les concentrations de méthadone sont jusqu'à 30 fois plus élevées dans les eaux hospitalières ( $7,9 \pm 10,9$  ng/L) sans équivalent dans les autres sites sauf la prison.

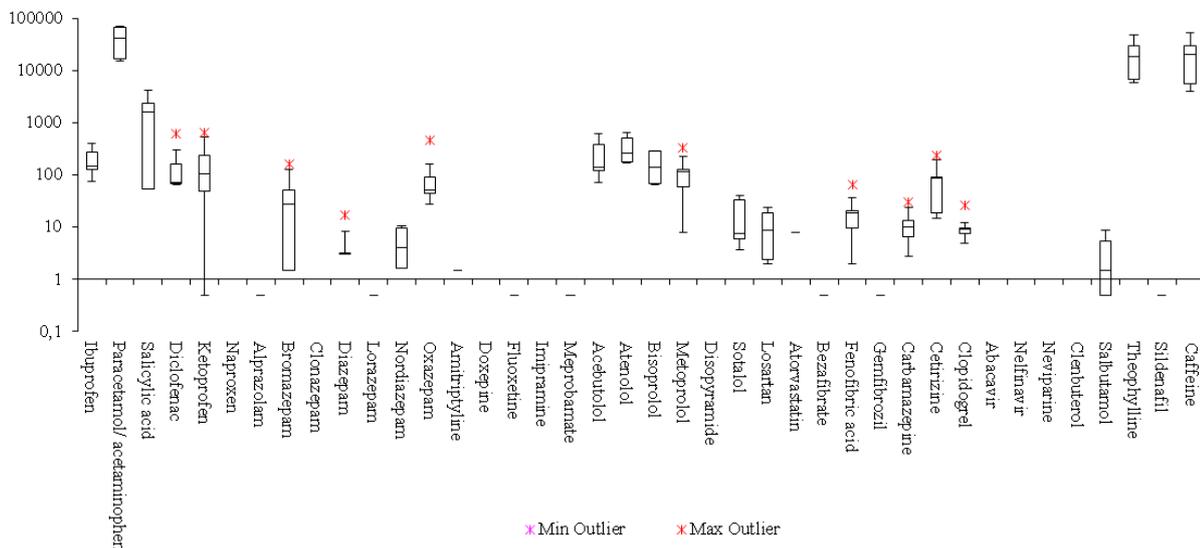


Figure 35. Concentrations de RdM dans les eaux usées issues des hôpitaux du bassin versant de la Baie de Fort-de-France (µg/L). Molécules non détectées : naproxen, clonazepam, doxepine, imipramine, disopyramide, abacavir, nelfinavir, clenbuterol (n=6).

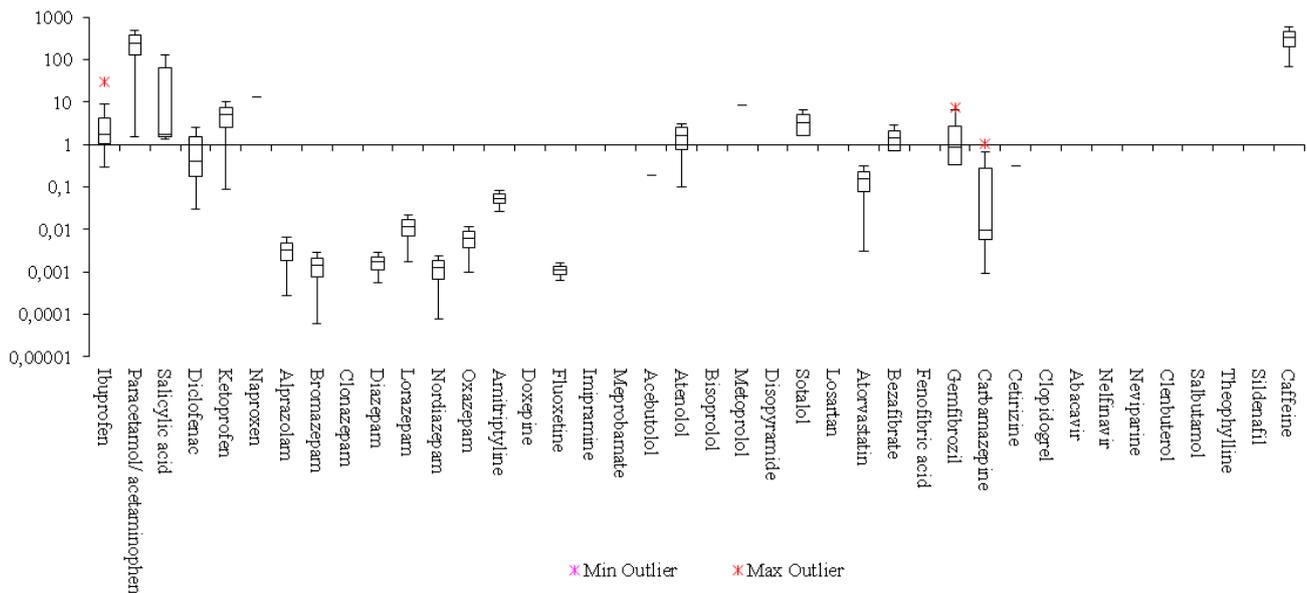


Figure 36 : Concentrations de RdM dans les eaux usées issues des hôpitaux d'après la littérature (µg/L). Afonso-Olivares et al. (2017), Ashfaq et al. (2017), Bailly et al. (2013), Biel-maeso et al. (2018), Cesen et al. (2018), Galletti et al. (2011), Kovalova et al. (2013), Lin et al. (2018), Majumder et al. (2019), Orias et Pierrocin (2013), Santos et al. (2013), Sim et al. (2011 et 2013), Verlicchi et al. (2010), Wahlberg et al. (2011), Wang et al. (2018). Pas de données trouvées pour le clonazepam, le doxepine, l'imipramine, le meprobamate, le bisoprolol, le disopyramide, le losartan, l'acide fénofibrique, le clopidogrel, l'abacavir, le nelfinavir, le clenbuterol, le salbutamol, le theophylline, le sildenafil.

### 2.3.4.5 Le cas des eaux usées issues du centre de détention

Les suivis des eaux usées des lieux de détention sont plus rarement publiés que ceux des populations libres mais certaines études ont déjà fourni quelques données illustrant la consommation très élevée de stupéfiants en milieu carcéral (Postigo *et al.*, 2011 ; Bramness *et al.*, 2015 ; Brewer *et al.*, 2016 ; van Wel *et al.*, 2016 ; Kinani *et al.*, 2017 ; Esseiva *et al.*, 2017). L'expression par unité de concentration (µg/L) est néanmoins rare dans ces articles, où des données exprimées par dose consommée par détenu sont d'usage. Pour autant, les concentrations quantifiées dans la présente étude (Figure 37) sont en accord avec celles décrites par Postigo *et al.* (2011) et Kinani *et al.* (2017). Cela met en avant que la consommation de stupéfiants en prison est assez homogène, quels que soient les sites. Il existe plus de similitude entre les prisons qu'entre une d'entre elle et les données pour les populations générales vivant dans le même territoire. Cela est en partie dû à l'éviction de stupéfiants aux effets trop évidents sur le comportement (crack...) mais aussi à la prise régulière de méthadone dans ce cadre.

Il n'existe malheureusement pas d'étude sur les flux de RdM dans les eaux usées des lieux de détention. Certains médicaments peuvent être mésusés à des fins narcotiques (oxazepam...).

Dans les eaux usées de la centrale pénitentiaire de Ducos, la concentration des RdM était similaire à celle de la STEU associée (Gaigneron).

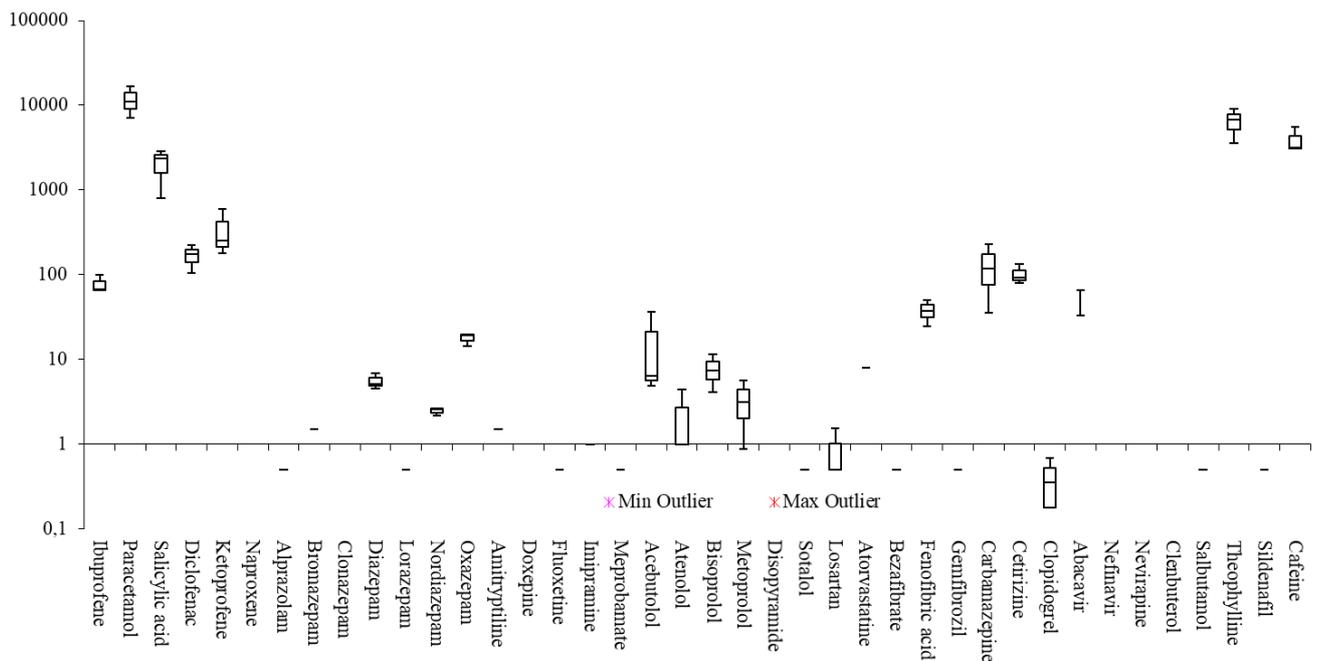


Figure 37 : Concentration en résidus de médicaments dans les eaux usées issues de la prison de Martinique ( $\mu\text{g/L}$ ) ( $n=3$ ).

#### 2.3.4.6 Le cas des eaux usées issues d'établissements d'enseignement

Si les données sont rares pour les eaux usées carcérales, elles le sont encore plus pour les établissements scolaires. L'Australian Criminal Intelligence Commission (2018) n'y trouva pas trace d'amphétamines et de méthamphétamines, des addictions qui sont par ailleurs très importantes en Australie. Godfrey *et al.* (2007), étudiant le contenu de fosses septiques recevant les eaux usées de lycées, estima la concentration en paracétamol entre 1 et 5 000  $\mu\text{g/L}$ , celle de la carbamazépine entre 0,2 et 0,5  $\mu\text{g/L}$  et la caféine entre 500 et 900  $\mu\text{g/L}$ . Cependant, comparer les eaux usées et le contenu de fosses septiques est critiquable.

Dans la présente étude, les campagnes de prélèvement dans les lycées ont été handicapées par l'impossibilité des services techniques correspondants à isoler les eaux usées des eaux d'orage, ce qui a eu pour conséquence des difficultés d'analyse et d'interprétation. De même, les réseaux vétustes, hors normes ou interconnectés avec les eaux pluviales ont eu des répercussions importantes voire paradoxales sur notre travail (Figure 38).

Quels que soient les établissements d'enseignement étudiés, les anti-inflammatoires ont pu être quantifiés, même si la diversité des molécules différait. Par exemple, le paracétamol, la théophylline et la caféine sont les seules molécules quantifiées dans les eaux usées scolaires et universitaires, ce qui nous amène à suspecter une dilution forte bien que, par manque de références, il soit difficile de statuer.

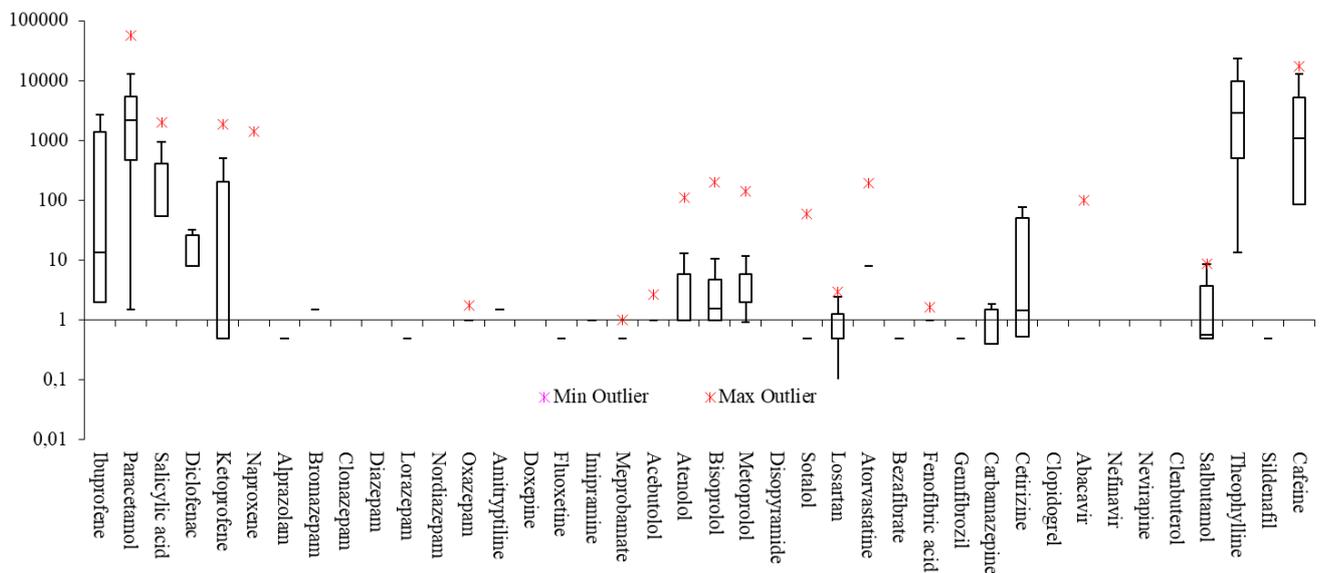


Figure 38 : Concentrations de résidus de médicaments dans les eaux usées issues des lycées et du campus du bassin versant de la baie de Fort-de-France ( $\mu\text{g/L}$ ).

Inversement, les concentrations de RdM des eaux usées du Campus furent très proches de celle de la STEU réceptrice, PdN. Par exemple, l'atorvastatine, le plus vendu des hypolipémiants dans le monde mais absent des eaux usées et de surface de la présente étude, a été quantifié en aval du Campus (192 ng/L) et en entrée de la STEU de PdN. Une éventuelle consommation d'hypolipémiants par de jeunes adultes en plus de salariés du Campus, est un signal à étudier.

De même, l'abacavir, molécule contre le HIV, n'a pas été observé dans les eaux usées des lycées mais l'a été dans celles du Campus (102 ng/L). Les bêtabloquants sont tous et fréquemment observés (jusqu'à 203 ng/L pour le bisoprolol, 344 ng/L pour la somme des bêta-bloquants).

Les concentrations en THC-COOH sont similaires à celles des eaux brutes des STEU : cela peut être interprété comme à la fois le fait qu'une population jeune et plus volontiers consommatrice y est rassemblée. La durée de métabolisation étant de plusieurs heures, il n'est pas certain que la consommation se soit faite sur le Campus. Le nombre de lits en résidence universitaire interne est assez réduit.

La morphine observée dans les eaux usées de Bellevue peut correspondre, après enquête auprès de l'infirmier scolaire, à des cas d'élèves relevant de convalescence –sans oublier que la morphine peut être elle-même due à la métabolisation de la codéine légalement administrée. Ainsi, les lycées et le Campus n'apparaissent pas comme des sites de consommation privilégiée de stupéfiants, et encore moins de drogues dures, contrairement à la prison de Ducos, où les jeunes adultes prévalent également.

### 2.3.5. Bilan de masse et interprétation

Nous précisons que le bilan de masse est réalisé pour les molécules analysées : l'extrapolation des conclusions à d'autres polluants, y compris domestiques, industriels ou hospitaliers, ne serait pas rigoureuse.

Le bilan de masse est fondé sur les résultats fournis par l'échantillonnage passif croisé avec les volumes d'eau fournis par les services dédiés, partenaires de la présente étude et parfois non homogène à des valeurs présentées sur des rapports accessibles sur internet.

### 2.3.5.1. Flux de résidus de médicaments et de stupéfiants

Les moyennes géométriques des concentrations totales en RdM et en stupéfiants dans les eaux de surface variaient de 200 à 1700 ng/L avec l'ordre suivant : JAMB >> CAS NAV=SAL>MAD>MON=LEZ

En fonction des volumes des rivières et du niveau d'anthropisation des bassins versants, les rivières déversent une moyenne totale des micropolluants analysés par jour à la Baie (fonction bien entendu des variations de débits saisonniers), par ordre décroissant d'environ :

- 48,7 g/j du total des micropolluants analysés pour la Rivière Lézarde (faible concentration et fort débit),
- 24,1 grammes par jour pour la rivière Case-Navire (forte concentration et faible débit),
- 12,5 g/j pour la rivière Salée (faible concentration et fort débit)
- Approximativement les mêmes valeurs entre la rivière Madame et la rivière Monsieur (8,8 et 6 g/j)
- 7,4 g/j pour la rivière Jambette (forte concentration et très faible débit)

En comparant les apports estimatifs journaliers en micropolluants analysés vers la baie, les rivières non influencées par des rejets de STEU apportent environ 36 % des masses, les STEU déversant en direct environ 23 % et les rivières ayant recueilli les rejets de STEU environ 41 % (Figure 39) tout en considérant que la part des rejets des STEU dans ces rivières est faible (4,8 %).

Ces chiffres globaux sont bien entendu à compléter et affiner mais orientent clairement vers une nécessité de mieux réduire les apports, par les bassins versants, de rejets directs d'eaux usées non collectées dans un réseau d'assainissement et non traitées dans une STEU.

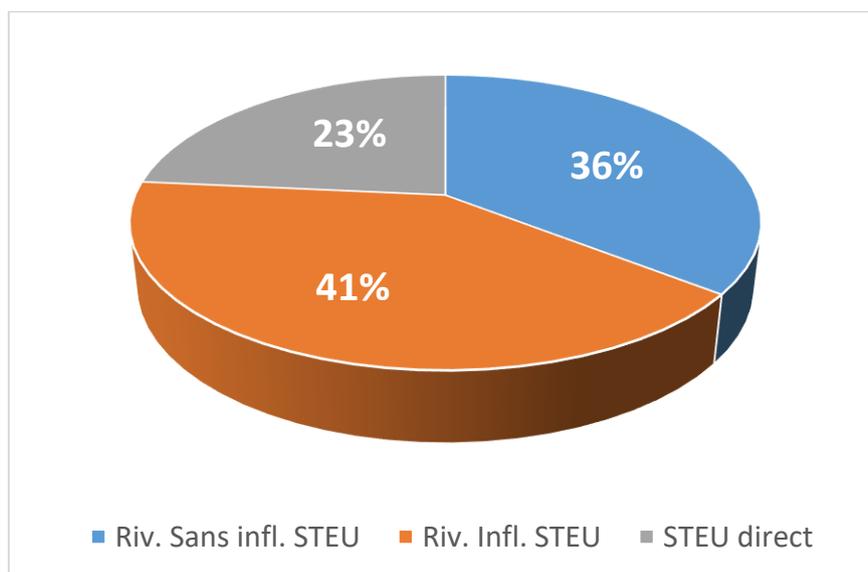


Figure 39 : Parts respectives des différentes sources de rejets vers la baie dans les émissions de micropolluants analysés (Rivières sans influence STEU, rivières avec influence STEU, déversements directs des STEU).

Tableau XI : Masses totales transférées vers la baie des micropolluants analysés pour chaque source.

| Site                   | Débits moyens (m <sup>3</sup> /j) | Concentrations moyennes tous micropolluants analysés (ng/L) | Masses déversées par jour g/j |
|------------------------|-----------------------------------|---|-------------------------------|
| Lézarde                | 189895                            | 256   | 48,7                          |
| <i>Rejet Gaigneron</i> |                                   |   | 2,3                           |
| Madame                 | 21600                             | 407   | 8,8                           |
| <i>Rejet Godissard</i> |                                   |   | 2,5                           |
| Monsieur               | 21600                             | 280   | 6,0                           |
| Salée                  | 25920                             | 484   | 12,5                          |
| Jambette               | 4320                              | 1705  | 7,4                           |
| Case navire            | 41225                             | 585   | 24,1                          |
| CHUM Clarac            | 46                                | 147208  | 6,6                           |
| Dillon 1 Entrée        | 2832                              | 33372   | 96,7                          |
| Dillon 1 Sortie        | 3110                              | 1201  | 3,4                           |
| Dillon 2 Entrée        | 5306                              | 33065   | 122,7                         |
| Dillon 2 Sortie        | 6119                              | 980   | 3,0                           |
| Gaigneron Entrée       | 2232                              | 26681   | 60,5                          |
| Gaigneron Sortie       | 1902                              | 8327  | 2,3                           |
| Godissard Entrée       | 971                               | 53198   | 52,6                          |
| Godissard Sortie       | 1056                              | 2289  | 2,5                           |
| Lycée Bellevue         | Non disponible                    | 47334   | Non calculable                |
| Lycée Ducos            | 10                                | 13890   | 0,1                           |
| Lycée pro Dillon       | Non disponible                    | 167   | Non calculable                |
| PDN Entrée             | 3963                              | 36883   | 112,8                         |
| PDN Sortie             | 2872                              | 9651  | 26,6                          |
| Pénitencier            | 231                               | 31842   | 7,4                           |
| CHUM Meynard           | 568                               | 32242   | 18,5                          |
| Campus                 | 18                                | 217   | 0,1                           |

Les quantifications de tous ces contaminants en mélange n'informent pas de l'impact écotoxique de ces apports à la baie au regard des nombreux organismes exposés.

L'échantillonnage pour la rivière Lézarde a été réalisé sur un segment relativement préservé (secteur agricole cannier, à l'orée de la mangrove, bien que le prélèvement ait eu lieu à l'aval de la STEU de Gaigneron et que le bassin versant de la Lézarde soit également sujet à l'étalement urbain dans sa partie amont et médiane. Ce cas illustre combien le bassin versant peut affecter son cours d'eau même sans problème majeur : le secteur de Schoelcher, où coule la Case-Navire, est habité par une classe moyenne ayant démontré son observance des conseils environnementaux et aux consignes sanitaires (Devault *et al.*, 2018).

La masse totale des RdM et des stupéfiants analysés vers la Baie au sortir des STEU en direct est environ 30 % de celle apportée par les rivières. Ce résultat confirme l'importance de l'abattement par les STEU mais aussi les conséquences de leurs potentiels dysfonctionnements ou de leur absence : leur fonctionnement épargne à la baie environ 407,5 g/j. Il existe une marge de progression significative en optimisant les STEU pour qu'elles réduisent encore ce flux.

En complément, il convient d'accroître le taux de raccordement dans des circonstances de démographie étale que connaît la Martinique. L'abattement global de 92 % dans les eaux par les STEU, pondéré par les volumes traités, est dans la norme des résultats mondiaux (Devault *et al.*, 2020) mais ce résultat occulte une grande disparité dans l'abattement molécule par molécule (détaillé plus avant) et entre les STEU.

Celle de la PdN (biofiltre) présente un abattement moyen de 76,5 %. Située en zone urbaine, elle est aussi contrainte à être discrète (sans odeur et compacte), ce qui a justifié le choix de la technologie de biofiltre au service de laquelle œuvre une équipe dont les auteurs souhaitent souligner le professionnalisme, l'esprit d'initiative et l'investissement. Cette STEU traite le tiers des eaux usées de la conurbation foyalaïse et son émissaire est situé en mer, par - 80 m à quelques kilomètres au large.

Les concentrations observées durant les trois jours de suivi, sont similaires à celles d'une expérience précédente (Devault *et al.*, 2020) basée sur des échantillons d'eaux prélevés par préleveur automatique réfrigéré (protocole Directive Cadre sur l'Eau). En absence de d'exploitation durant les deux périodes d'échantillonnage, cette comparaison corrobore l'usage des échantillonneurs passifs POCIS.

Les filières à traitements par bassins biologiques présentent des abattements moyens de 96,7 % dans les eaux rejetées.

Quelles que soient les sources ponctuelles (lycées, campus, prison, hôpitaux), toutes les eaux usées se trouvent dans les mêmes gammes de concentrations de RdM et confortent l'analyse de Santos *et al.* (2013) quant à la relation entre le nombre de lits et le flux de RdM. Le total émis par les sites mesurés représente environ 7 % du flux total mesuré en entrée des STEU. Un traitement localisé incluant des procédés oxydatifs (ozonation...), de l'adsorption voire des membranes (Caupos *et al.*, 2015 ; Yasmine *et al.*, 2017ab et 2018 ; Nassar *et al.*, 2017 et 2018) ne peut être utilisé que sur des eaux issues de traitements secondaires. Ainsi, l'hypothèse d'installations locales de « mini-STEU » ne correspond pas au besoin observé dans cette étude comme cela a également été conclu à l'issue d'autres expériences sur des rejets d'hôpitaux en Allemagne (Programme No-pills), en France métropolitaine (Programme Sipibel) ou en Suisse (CHU de Lausanne).

Néanmoins, cette évaluation repose sur l'attribution d'un niveau identique de toxicité pour toutes les molécules recherchées, ce que les valeurs de concentrations prédites sans effets nocifs (Predicted no effect concentrations -PNEC) connues contredit et donc si une ou plusieurs molécules étaient identifiées localement comme toxique majeur, des solutions locales de prévention pourraient être imaginées. Cela n'existe pas encore en sortie des hôpitaux excepté pour les produits radioactifs et les effluents des analyseurs des laboratoires de biochimie ou des salles d'autopsie.

### **2.3.5.2. Impact des micropolluants analysés**

La PNEC est une estimation, au mieux une observation, d'une concentration maximale sans effet. Elle est organisme dépendant car la PNEC ne peut être la même pour une bactérie ou un poisson. Nous avons estimé les risques toxiques pour les milieux par le rapport entre les concentrations observées et les PNEC de chaque molécule pour une source donnée. Les PNEC ne sont pas disponibles pour toutes les molécules et en particulier les métabolites et plusieurs sont exclues de l'évaluation faute d'une valeur chiffrée dans la littérature internationale. Nos résultats sont donc à lire à l'aune de cette réserve.

Un quotient de risque (QR) peut être calculé en divisant arbitrairement la concentration moyenne d'exposition du biote par la PNEC la plus faible (donc la plus protectrice). Les molécules dont le QR est supérieur à 1 expriment un potentiel effet toxique sur le biote.

- Eaux usées : Calculer un QR dans les eaux usées brutes n'est pas très logique dans la mesure où le biote n'est pas exposé directement à ces eaux mais l'exercice est toutefois réalisé pour illustrer la charge toxique de ces eaux et en raison de la fréquence relativement élevée de rejet direct dans le milieu récepteur où l'eau brute sera bien entendu plus ou moins diluée.

Dans l'ensemble des eaux usées (brutes ou traitées), l'ibuprofène (QR :  $2,5 \pm 3,1$ ), le paracétamol ( $2,0 \pm 2,6$ ), le diclofénac ( $9,0 \pm 10,3$ ) et, surtout, l'oxazepam ( $40,9 \pm 47,8$ ) présentent des QR remarquables. Le sildenafil, même si la molécule n'a été quantifiée que deux fois, atteint aussi un QR  $>1$  :  $2,8 \pm 1,9$ . Son impact ne doit pas être minimisé malgré la basse fréquence de détection. Pour la caféine des oppositions existent pour la valeur de PNEC et Orias et Perrodin (2014) proposent une PNEC très basse (6 ng/L).

Concernant les eaux usées traitées et tout en prenant en compte ce « pire cas » excessif car les organismes sont peu en contact direct avec ces eaux puisqu'une dilution se produit dans la rivière, le diclofenac présente toujours un QR remarquable ( $6,9 \pm 4,45$ ), de même que le diazepam proche de 1 ( $0,9 \pm 0,7$ ) et, surtout, l'oxazepam ( $60,9 \pm 48,1$ ). Le sildenafil reste préoccupant avec un QR de 4,1 (quantifié dans un seul échantillon).

- Rivières : Les eaux de surface présentent une charge toxique (RdM et stupéfiants) moindre que les eaux usées : toutes les rivières ont un QR inférieur à 1 (sauf la Case Navire : autour de 7,3), une valeur similaire aux eaux usées issues des établissements d'enseignement avec des valeurs moyennes n'excédant jamais 0,7.

Néanmoins, le calcul de QR met en évidence que les métabolites issus du traitement par les STEU peuvent être plus toxiques que les molécules-mère, de telle sorte que, paradoxalement, les eaux usées traitées n'ont pas, en se basant sur les RdM, une charge écotoxique moindre que les eaux brutes. Les eaux usées traitées peuvent présenter des QR pour certains polluants égaux ou supérieurs à ceux des eaux brutes. Ce constat est justifié par les concentrations atteintes par l'oxazepam. Cette molécule est à la fois une molécule mère à usage de médicament mais aussi un métabolite de benzodiazépines (diazepam, kétazolam, témazepam, chlordiazepoxide, demoxazepam, halazepam, médazepam, prazepam, pinazepam et chlorazepate (Dinis-Oliveira, 2017), l'oxazepam est aussi la plus stable des benzodiazépines et tend à s'adsorber sur les matières en suspension (Baker *et al.*, 2012), de telle sorte qu'elle persiste mieux que les autres membres de sa famille chimique dans les eaux usées et face aux techniques de dégradation de court terme comme un biofiltre. Elle est aussi émise dans les urines sous une forme glucuronide (Klotz, 1978) qui peut donc être clivée plus tard, et notamment dans les installations épuratoires (égouts et STEU) (Evans *et al.*, 2020).

La question de la contamination des boues de STEU et des usages agricoles en aval est très importante. Elles sont utilisées comme composantes des composts et peuvent contaminer secondairement les ressources en eaux de surface et de profondeur (Ghirardini et Verlicchi, 2019) voire les plantes cultivées. Des RdM peuvent ne pas être dégradés par le compostage (30 à 50 %).

La présente étude ne peut permettre, à elle seule, d'attribuer à l'usage de compost issus des STEU martiniquaises le fait que la contamination de la rivière Lézarde comporte nombre de molécules retrouvées dans les boues de STEU ou identifiées comme métabolites de RdM, mais la basse vallée de la Lézarde est un lieu d'épandage privilégié d'amendement par des boues issues desdites STEU.

### 2.3.6. Conclusions

Concernant les flux de RdM et de stupéfiants, le principal contributeur au milieu marin est l'eau de surface en raison des volumes et des niveaux de pollution domestique (par lessivage, ruissellement mais aussi décharge directe). Ceci doit inciter les personnes en charge de la protection de la ressource en eau à accroître leurs efforts de réduction des émissions à l'échelle des bassins versants.

Les STEU, pour diversement efficaces qu'elles soient en fonction des molécules et des procédés d'abattement, sont une contribution significative à la contamination des rivières.

La connexion des foyers au réseau de collecte des eaux usées est une action prioritaire pour réduire les apports de micropolluants à l'environnement marin. Néanmoins, les performances de traitement des STEU sont contrastées, selon les molécules, les niveaux d'optimisation et de maintenance. Il apparaît donc nécessaire d'une part d'étudier une optimisation des efficacités d'abattement des stations en l'état, au préalable d'une étude de l'implantation de traitements complémentaires pour abattre les micropolluants réfractaires et les métabolites. Pour évident qu'elle apparaisse, cette dernière remarque peut avoir des conséquences majeures sur l'efficacité d'une politique environnementale.

Multiplier des petites STEU voire des STEU dédiées à des sources ponctuelles, dans un environnement comme la Martinique où lesdites sources restent de petit gabarit, n'est pas pertinent comme cela n'a pas été jugé pertinent en métropole ou en Suisse.

La présente étude invite également à réduire les fuites des réseaux d'assainissement, tant autour des domiciles (en proscrivant les rejets directs aux eaux de surface et en contrôlant mieux la mise aux normes de l'assainissement non collectif) qu'entre les résidences et les STEU dans un milieu connu pour être remarquablement agressif pour les matériaux.

Ainsi, un nombre réduit de STEU optimisées alimentées par des réseaux à faible taux de fuites et avec un raccordement le plus développé possible est préférable à de petites stations. Les STEU pourraient être équipées de traitements tertiaires adaptés afin de mieux protéger le milieu récepteur.

En parallèle, il importe de veiller à la politique visant à récolter les médicaments non utilisés pour les incinérer et veiller aux évolutions des politiques de réductions des excès de prescriptions pouvant se développer via les institutions nationales. Une éventuelle adaptation des politiques nationales à la population locale implique une étude spécifique qui fait l'objet de la tâche 2 suivante.

## 3. TÂCHE 2

---

L'objectif local du programme SENEUR est aussi de déterminer les leviers et les freins psychosociologiques pour l'accompagnement au changement des consommations de médicaments.

### 3.1. Détermination des représentations sociales relatives aux médicaments

#### 3.1.1. Méthode de l'enquête psychosociale

La tâche 2 du programme SENEUR est composée de trois étapes de recherche. La dernière étape, a consisté à faire passer, à un nombre réduit de consommateurs (N= 50), un test d'indépendance au contexte (TIC).

##### 3.1.1.1. Le cadre de la recherche

###### Problème

Dans une perspective d'actions pour maîtriser les apports de RdM qui pourrait être menée *pour et avec* les consommateurs de médicaments, il apparaît primordial d'interroger **les usages sociaux** des médicaments. Il convient également d'appréhender les représentations sociales des médicaments auprès de la population martiniquaise afin de mieux saisir les pratiques qui y sont associées et, *a fortiori*, d'engager des campagnes de communication plus adéquates en fonction de la perception que cette population micro-insulaire a des médicaments.

Les représentations sociales des médicaments du point de vue des experts n'ont en effet pas la même finalité pratique que celles issues des savoirs profanes. Dès lors, mettre en perspective les savoirs profanes des consommateurs permet de mieux saisir les postures d'usages de ces derniers. Le but de la présente étude n'est pas de hiérarchiser les « savoirs » et de dichotomiser les « experts » et les « naïfs » mais bien de mettre en exergue ce savoir social qui en détermine les pratiques sociales (Abric, 1994 ; Zouhri *et al.*, 2016). Ainsi, notre approche est de fait une démarche compréhensive. L'objectif est de s'intéresser à la manière dont les consommateurs pensent l'objet « médicament » dans sa globalité.

**Les questions que nous nous posons dans cette recherche sont les suivantes : Comment les médicaments sont caractérisés ? Quelles sont les représentations sociales des médicaments ? Existe-t-il une différence en fonction des âges des consommateurs ?**

Pour mettre à l'épreuve ces questions, nous avons élaboré un dispositif de recherche constitué de trois phases :

- La première vise à mener des entretiens semi-directifs afin d'observer s'il y a un discours social sur les médicaments en général, pour mettre en exergue les usages liés aux médicaments en fonction des âges des personnes interrogées. Cette phase est primordiale pour définir les caractéristiques qui guideront la sélection de l'échantillon retenu pour l'administration du questionnaire de la phase suivante ;

-La seconde et principale étape consiste en la passation d'un questionnaire d'évocation hiérarchisée ;

- La dernière s'attache à faire passer un test d'indépendance au contexte.

## La théorie des représentations sociales : mode d'emploi de la réalité sociale

L'originalité du projet de recherche SENEUR réside dans sa volonté d'intégrer les consommateurs de médicaments au cœur de la réflexion concernant leurs usages. Envisager un changement des pratiques et d'usages lié aux médicaments n'est pas une démarche évidente. Ainsi, il est nécessaire de passer par l'étude des représentations sociales des médicaments. La notion de représentation trouve son origine, dans un premier temps, chez le sociologue Durkheim (Durkheim, 1898) qui définit le concept comme une représentation collective traduisant « la façon dont le groupe se pense dans ses relations avec l'objet qui l'affecte » (*Phase 1 de notre protocole de recherche*). La principale idée est que la conscience collective et représentations collectives dominent les éléments individuels. Dès lors, c'est dans cette perspective que Moscovici (Moscovici, 1961) se saisit du terme *collectif* pour lui substituer le terme de *social* car pour ce psychosociologue « les représentations sociales ne peuvent être comprises qu'à partir de leurs articulations avec les processus de communication et avec les formes de sociabilité, tout particulièrement les relations intergroupes » (*Phase 2 de notre protocole de recherche*). Moscovici met l'accent sur le groupe et plus particulièrement sur le groupe d'appartenance dans l'étude des représentations sociales (RS) car « il n'y a pas de coupure entre l'univers extérieur et l'univers intérieur de l'individu ou du groupe. Le sujet et l'objet ne sont pas foncièrement distincts » (Moscovici, 1961). Les RS sont alors définies comme un ensemble de connaissances et de croyances à propos d'un objet. Les RS favorisent l'interprétation de la réalité en lui donnant sens. Ces dernières sont ainsi assimilées à une forme de connaissance sociale de « sens commun » construit par des sujets « naïfs » qui se pose en parallèle d'un « savoir scientifique » qui lui est régi par des règles logiques (Moscovici, 1961). C'est notamment au travers de l'ouvrage *La psychanalyse, son image et son public* que l'auteur nous montre « comment une nouvelle théorie scientifique ou politique est diffusée dans une culture donnée, comment elle est transformée au cours de ce processus et comment elle change à son tour la vision que les gens ont d'eux-mêmes et du monde dans lequel ils vivent ». C'est lors de la confrontation à diverses sources d'information que les sujets les simplifient, les transforment et se les réapproprient. Ces modalités de connaissances collectivement produites permettent alors la détermination des pratiques en « contribuant aux processus d'orientations des conduites » (Moscovici, 1961). Les RS se rapprochent alors comme nous le dit Moliner (1995) d'un mode d'emploi de la réalité sociale.

### **C'est qui nous intéresse dans cette tâche 2 du programme de recherche SENEUR.**

Porter notre attention sur le concept de RS, c'est porter en effet notre attention sur « une forme de connaissance spécifique, le savoir de sens commun, dont les contenus manifestent l'opération de processus génératifs et fonctionnels socialement marqués. Plus largement, il désigne une forme de pensée sociale. Les représentations sociales sont des modalités de pensées pratiques orientées vers la communication, la compréhension et la maîtrise de l'environnement social, matériel et idéal » (Jodelet, 1984). Ce mode d'emploi de la réalité est alors associé à trois fonctions essentielles qu'il est nécessaire d'investiguer dans une dynamique de compréhension des usages liés aux médicaments chez la population martiniquaise. La première fonction concerne la **communication**. En effet, les RS permettent aux sujets d'élaborer « un code pour leurs échanges et un code pour nommer et classer de manière univoque les parties de leur monde et de leur histoire individuelle ou collective » (Moscovici, 1961). La seconde fonction fait référence à **une base solide** permettant de reconstruire le réel : « les représentations nous guident dans la façon de nommer et de définir ensemble les différents aspects de notre réalité de tous les jours ; dans la façon de les interpréter, de statuer sur eux et, le cas échéant, de prendre une position à leurs égards et de la défendre » (Jodelet, 1991). Enfin, la troisième fonction mise en exergue par Moscovici et développée par Abric (1994), concerne la **maîtrise de l'environnement** par le sujet. La théorie des représentations sociale bénéficie ainsi d'une richesse et d'une vitalité théorique et méthodologique contribuant à un développement permanent. La théorie du noyau

central, soutenue par Abric (1994), fait partie des approches structurales les plus largement étudiées et constitue la porte d'entrée théorique de notre travail.

#### L'approche structurale des représentations sociales

L'hypothèse de départ de cette orientation théorique (Abric, 1976, 1987, 1989, 1993, 1994b, 2003) est que chaque représentation sociale se compose d'éléments nucléaires autour desquels se tissent d'autres éléments. Ces notions de centralité et de structure qui ont inspiré Abric sont issues, entre autres, des travaux d'Heider (1927) sur les processus d'attribution causale. Ainsi Abric cite volontiers ce dernier : « les gens ont tendance à attribuer les événements qui surviennent dans leur environnement à des noyaux unitaires, conditionnés de façon interne, et qui sont, en quelque sorte, les centres de la texture causale du monde » (Heider, 1927 - cité par Abric, 1994). On retrouve là l'idée d'éléments centraux autour desquels les groupes se focalisent afin de maîtriser cognitivement leur environnement. Outre Heider, Abric prend pour source d'inspiration les travaux de Asch (1946) sur « l'effet de primauté ». En effet, dans les travaux sur la formation d'impression, Asch démontre que certaines caractéristiques, en apparence secondaires, sont en fait déterminantes dans la perception que l'on a d'une personne. Cette perception se fait autour de certains « éléments centraux ». Ici ce n'est pas l'objet en lui-même qui suscite l'intérêt mais davantage la manière dont les éléments se combinent. Ainsi, contrairement à la démarche ethnographique qui utilise les techniques de l'entretien, de l'analyse de presse ou encore les questionnaires, afin de recueillir une représentation très riche de l'objet de représentation, les tenants de l'approche structurale abordent l'objet également au travers d'une méthodologie plus modélisée (analyse de similitude, analyse prototypique). Appréhender la représentation sociale au travers de ces différentes méthodologies issues du courant structuraliste permet de mettre en évidence une hiérarchisation des éléments entre eux. Ce sont les relations entre ces différents éléments qui portent la signification de la représentation sociale. La théorie du noyau central a ouvert ainsi un nouvel angle de travail sur les représentations sociales. En effet, comme le souligne Moliner (2000), la théorie du noyau central permet d'apprécier le caractère dynamique des RS en effectuant des études comparatives entre différents groupes. Concrètement, la représentation sociale est ici perçue comme un système formé de deux composantes complémentaires : un système central et un système périphérique. Dans cette approche, les cognèmes constituent les éléments de la structure. On note ainsi que chaque ensemble de cognèmes centraux ou périphériques détient une fonction particulière dans la représentation. Qui dit structure pense hiérarchie. L'intégration du système central dans le plus large système périphérique inclut, outre un caractère d'inclusion, un caractère hiérarchique. Autrement dit, nous pouvons apprécier une pondération différente de chacune des cognitions constituant la représentation. En ce qui concerne le noyau central, on peut décliner ses fonctions, ses dimensions et son aspect collectif. Le noyau central ou noyau structurant est « constitué d'un ou de quelques éléments qui donnent à la représentation sa signification » et détermine par la même occasion son organisation (Abric, 1994). Abric précise qu'il est « l'élément le plus stable de la représentation, celui qui en assure la pérennité dans des contextes mouvants et évolutifs ». Flament (2001) précise le caractère intrinsèquement lié du système central au système périphérique qui donne le sens à ce dernier. « Il est un système dans lequel le noyau central est une structure qui est en charge de l'organisation de tout le reste du système, c'est-à-dire la partie périphérique ». Le système central est considéré comme l'espace commun de la mémoire du groupe, il est « le fruit des déterminismes historiques, symboliques et sociaux auquel est soumis le groupe social » (Moliner, 1996).

Le noyau endosse deux fonctions essentielles :

1/ **une fonction génératrice** de sens par laquelle se crée, ou se transforme, la signification des autres éléments constitutifs de la représentation. Il est ce par quoi ces éléments prennent un sens, une valeur. La fonction

génératrice permet la création et la transformation de la signification des différents éléments qui créent la représentation au sein d'un groupe donné.

2/ **Une fonction organisatrice** qui « détermine la nature des liens qui unissent les éléments de la représentation » (Abric, 2003). Abric insiste sur un aspect des éléments centraux qui nous intéresse particulièrement dans le cadre du projet SENEUR, c'est-à-dire « la relation que le sujet - le groupe - entretient avec l'objet » (Abric, 2003).

La relation groupe-objet est à mettre en relation avec les expériences que les sujets ont de l'objet de représentation, expériences qui font écho à des contextes sociologiques, historiques, psychosociologiques ou encore idéologiques. Cette relation médiatisée par les éléments centraux est pour le groupe « la base commune, collectivement partagée des représentations sociales » (Abric, 1994). Les éléments centraux revêtent également un caractère homogène qui permet au groupe de créer « un consensus à travers lequel se reconnaissent les membres du groupe » (Piasser, 1999). Ainsi, nous pouvons postuler que ce qui distingue l'identité d'un groupe vis-à-vis d'un autre est le contenu différencié du noyau central de la représentation sociale d'un objet donné. **C'est dans cette optique que nous avons défini trois groupes pour cette recherche.** Le système périphérique, par l'intermédiaire des éléments qui le composent, permet l'intégration des expériences personnelles. Il est plus souple, plus labile et plus sensible aux changements directs des contextes sociaux dans lesquels les représentations évoluent. Les cognèmes du système périphérique représentent les variations individuelles, ce qui permet à un même groupe d'avoir une représentation sociale identique, mais des éléments périphériques différents sans pour autant changer le sens de la représentation sociale et *a fortiori* du noyau central. Il y a hétérogénéité de l'ensemble de ces éléments périphériques qui servent d'intermédiaires entre le noyau central et la situation concrète en répondant à trois fonctions essentielles : concrétisation, régulation et protection du noyau central. La première fonction de concrétisation n'est pas sans rappeler le processus d'ancrage de l'approche sociogénétique : « les éléments périphériques sont directement dépendants du contexte, ils résultent de l'ancrage de la représentation dans la réalité et permettent son habillage en des termes concrets, immédiatement compréhensibles » (Abric, 1994b). Le caractère plus souple des éléments périphériques est lui à mettre en lien direct avec la fonction de régulation et d'adaptation au monde social : « Ils constituent l'aspect mouvant et évolutif de la représentation ». Autrement dit, cette fonction adopte avec flexibilité les nouvelles cognitions qui proviennent du contexte. La troisième fonction a pour objectif de protéger le noyau central, et *a fortiori* les éléments centraux de la représentation sociale. Cette dernière fonction occupe une place importante dans l'approche structurale. Pour des raisons d'économie cognitive (Flament, 1994) et organisationnelle (Abric, 1994a), on postule que le changement et la transformation d'une représentation sociale s'effectue dans la périphérie. De plus, de par son lien avec le monde social réel, le système périphérique a un double caractère : prescriptif et conditionnel. Autrement dit, il est un guide pour l'action, guide, qui lui, est conditionné par le contexte. Le système périphérique est en lien étroit avec le système central, « leur présence, leur pondération, leur valeur et leur fonction sont déterminées par le noyau » (Abric, 1994). Le noyau central transforme et crée les autres éléments appartenant à la représentation : « le fonctionnement du noyau ne se comprend qu'en dialectique continue avec la périphérie » (Flament, 1994).

### 3.1.1.2. Méthode de l'enquête psychosociale

Afin de mettre en exergue les représentations sociales des médicaments comme nous l'avons décrit dans la partie théorique, il importait d'interroger directement les personnes concernées. Pour cela nous avons mobilisé une méthodologie d'enquête spécifique.

## **Entretiens semi-directifs**

Nous avons, dans un premier temps, fait passer 15 entretiens semi-directifs avec différents habitants du territoire de la CACEM. L'objectif de ces entretiens exploratoires était de voir si un discours social émergeait autour de l'objet « médicament ». En effet, tout objet n'est pas forcément source de représentation. Dès lors, les entretiens semi-directifs nous ont permis de définir trois groupes différents en fonction de l'âge des sujets et d'affirmer que les médicaments sont bien un objet de représentation sociale. (Voir annexe 1 pour la grille d'entretiens).

## **Construction du questionnaire**

Le questionnaire prend en compte l'ensemble de nos questionnements dans le contexte théorique choisi. Il s'agissait ici, sous la forme d'un simple questionnaire, de mettre en exergue à la fois le contenu et la structure de la représentation, ici les médicaments. Pour cela, nous avons utilisé une technique une technique d'évocation hiérarchisée (Moliner *et al.*, 2002). Ce questionnaire consiste à demander aux sujets de s'exprimer de manière spontanée en donnant les 5 mots ou expressions qui leur venaient à l'esprit à propos de l'objet étudié (ici les médicaments). Ensuite, ils devaient hiérarchiser leurs réponses en fonction de l'importance qu'ils leur accordaient pour caractériser l'objet. Cela permet de recueillir deux informations importantes concernant la fréquence et le rang d'apparition.

Nous avons également inséré dans notre questionnaire quelques questions concernant notamment la santé, les attitudes à l'égard des médicaments et les comportements de recyclages. Ces questions ne permettent pas de faire des analyses factorielles avec le questionnaire d'évocation hiérarchisé, mais nous donne des scores globaux qui nous invitent à réfléchir pour la suite les résultats. Nous les présenterons dans la partie *description de l'échantillon*.

## **Test d'indépendance au contexte (TIC)**

L'utilisation du TIC repose sur le caractère inconditionnel qui lie les éléments centraux à l'objet de représentation. Les éléments centraux étant « non négociables », le TIC consiste à demander aux sujets d'indiquer si chacune des propositions est « toujours, dans tous les cas et sans exception associé à l'objet » (*i.e.* les médicaments). Ainsi, une fréquence élevée de réponse « oui » à cette question valide le statut central de l'item et l'associe définitivement dans le système central de la représentation.

### **3.1.1.3. La population du territoire de la CACEM**

#### **Descriptif de l'échantillon**

Nous avons administré notre questionnaire à 176 habitants du territoire de la CACEM (N : 178) : 123 hommes et 55 femmes (Moyenne d'âge : 45,1 ans et SD : 19,7). L'ensemble des participants vit sur les communes du Lamantin, de Saint-Joseph, de Schoelcher et de Fort-de-France. Avant de présenter les résultats des analyses de similitudes et prototypiques de la représentation sociale des médicaments, nous présentons l'ensemble des scores relatifs aux différentes questions que nous avons posées à nos participants afin d'avoir de plus amples informations sur notre échantillon. Certaines questions n'ont pas fait l'objet d'un traitement statistique car non pertinente par la suite eu égard nos résultats. Les questions dont nous présentons les scores concernent le monde de la santé en général, et du recyclage des médicaments. Nous avons ainsi posé des questions concernant l'implication des sujets sur notre thématique plus globale qui est la santé, puis les attitudes vis à vis des médicaments et enfin les comportements de recyclage. Notons que l'ensemble de ces résultats n'est

que descriptif et mérite par la suite d'être investigué avec un échantillon plus large dans le cadre d'autres hypothèses de recherche hors RS (faisant l'objet de la présente étude).

### Implication des sujets dans les questions de santé

Deux questions visent à mesurer l'implication des sujets concernant leur santé. L'objectif est d'observer si notre échantillon est impliqué dans la sphère médicale, et a fortiori les médicaments (Figure 40). L'échelle de mesure est en 7 points : plus le score est élevé, plus les sujets sont attentifs à leur santé, et plus il est faible moins ils le sont. Dès lors, il apparaît que le groupe des « 18-30 » déclare être moins concerné par les questions de santé que le groupe des « 60 ans et plus ». Score logique eu égard les nombreux problèmes de santé liés avec l'âge.

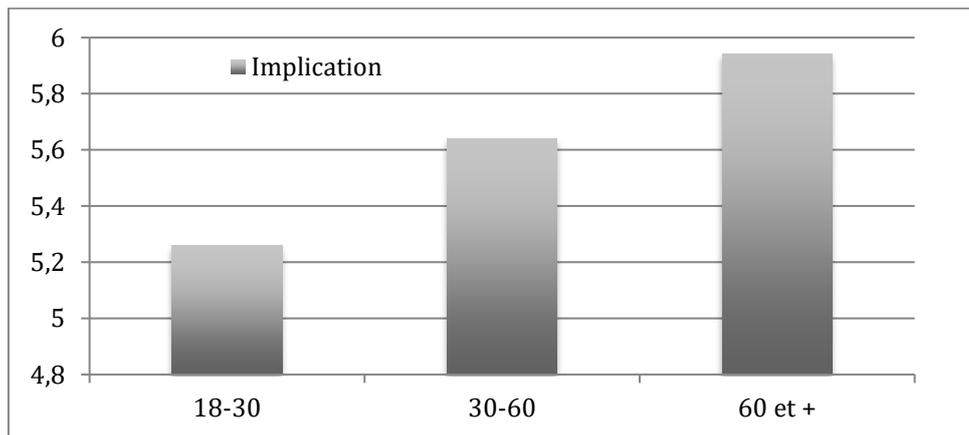


Figure 40 : Score d'implication dans les questions de santé.

La question suivante permet de savoir qui sont les personnes ressources auprès de qui les individus se tournent pour avoir des informations sur les thématiques de santé. Il s'agit en priorité du médecin (Figure 41). Dès lors, il semble intéressant d'investiguer les futures recherches vers ce groupe qui peut être un pilier dans la communication concernant la consommation et le recyclage des médicaments.

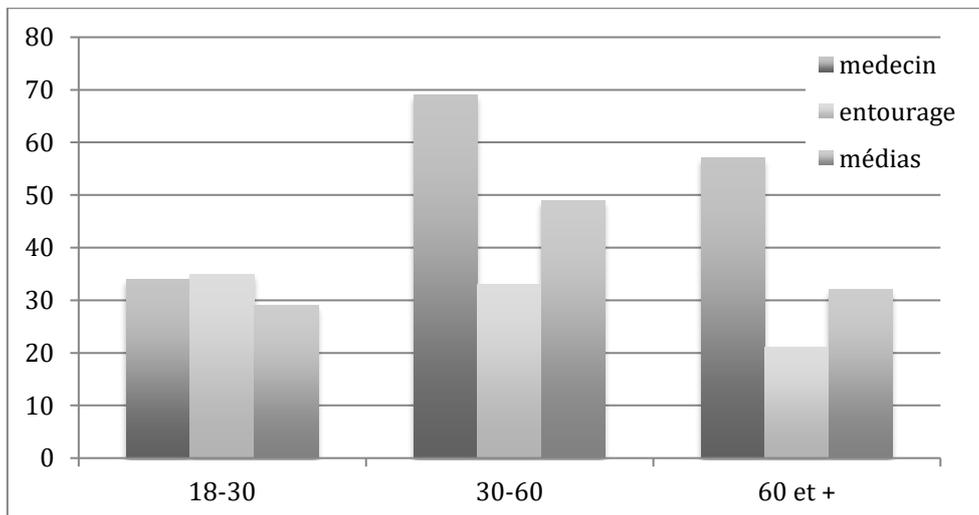


Figure 41 : Score concernant les personnes ressources.

#### 3.1.1.4. Attitudes des sujets face aux médicaments

La question suivante vise à mesurer l'attitude des individus face à la prise des médicaments et ce, dès l'apparition d'un symptôme. Il s'agit d'une échelle en 4 points : plus le score est élevé plus les individus sont favorables à la prise de médicaments lors de l'apparition des premiers symptômes. Le groupe des personnes

de plus de 60 ans apparaît être celui qui ne consomme pas le plus rapidement de médicament dès l'apparition des premiers symptômes (Figure 42).

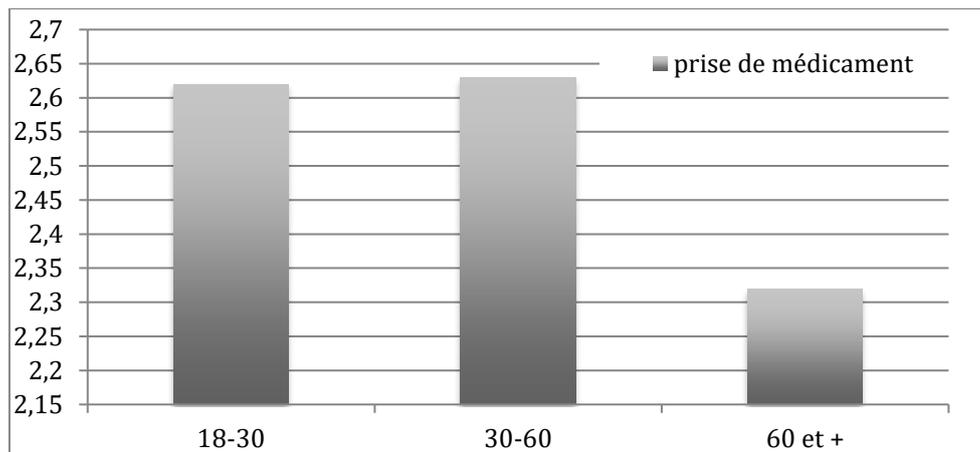


Figure 42 : Attitude vis à vis de la prise de médicaments lors de l'apparition d'un symptôme.

La question suivante concerne l'attitude des individus face à la prise de médicaments en général. Il s'agit d'une échelle en 7 points : plus le score est élevé plus les sujets ont une attitude globale négative face à la prise des médicaments. Il apparaît que les jeunes sont le moins favorables à la prise de médicaments en général (Figure 43).

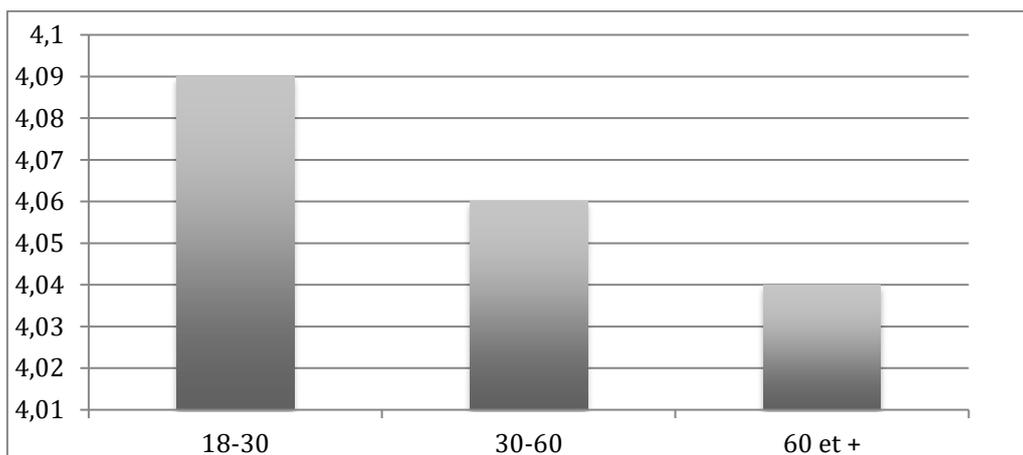


Figure 43 : Attitude face à la prise de médicament en général

### 3.1.1.5. Comportement de recyclage des médicaments

Les dernières questions concernent le comportement de recyclage des médicaments. Il s'agit d'une échelle en 7 points : plus le score est élevé plus les individus déclarent adopter des comportements de bonnes pratiques face au recyclage des médicaments. En toute logique avec les scores précédents, c'est le groupe des personnes âgées qui déclarent adopter des comportements pro-environnementaux face au recyclage des médicaments (Figure 44).

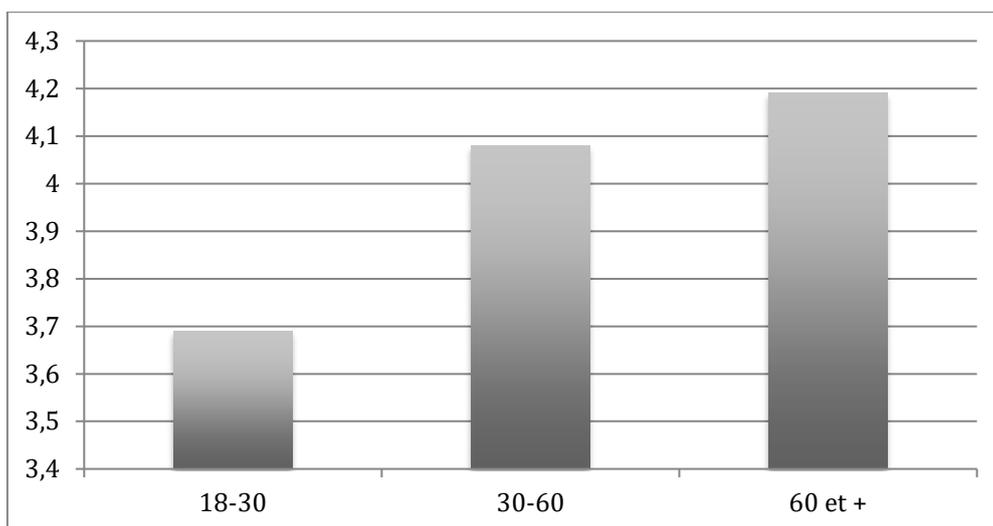


Figure 44 : Intention de comportement de retour des médicaments.

Nous mettons en garde contre les limites de ces scores qui ne sont que des résultats descriptifs, mais qui nous donnent une première couleur du rapport aux médicaments chez la population martiniquaise. Cet aspect ne constitue pas l'objectif de la tâche 2 du projet de recherche, mais mérite à l'aune de ces scores d'être investigués dans le cadre d'une autre étude.

### 3.1.2. Résultats de la représentation sociale des médicaments

#### 3.1.2.1. Analyse de similitude

L'analyse de similitude que nous avons effectuée à l'aide du logiciel IRAMUTEQ<sup>1</sup> (ADS) repose sur la théorie des graphes. Elle est classiquement utilisée pour décrire des représentations sociales (Flament, 1962 ; Vergès et Bouriche, 2001). L'objectif de l'ADS est d'étudier les liens et la distance entre les différents éléments qui composent la RS. Elle permet d'examiner l'organisation des éléments obtenus lors de la phase d'association libre. Partant du principe qu'une « représentation sociale est définie au maximum comme un ensemble d'éléments entretenant entre eux des relations » (Moliner *et al.* 2002), alors il devient possible au travers de l'ADS de mettre en exergue ces relations. En effet, « on admet que deux items [ou catégories] seront d'autant plus proches dans la représentation, qu'un nombre d'autant plus élevé de sujets les traite de la même façon (soit les acceptent tous les deux, soit les rejettent tous les deux) » (Flament, 1986). Ainsi l'ADS nous fournit un arbre maximum qui permet d'obtenir « la représentation la plus dépouillée qu'il soit d'avoir en conservant la connexité » (Degenne et Vergès, 1973). Notons toutefois que l'ADS fournit l'organisation sous-jacente à l'organisation de cet ensemble de relations, mais elle ne fournit pas nécessairement la structure, à savoir les éléments centraux et les éléments périphériques de la RS (Bouriche, 2003). Comme le note Abric (2003), en effet, « l'analyse de similitude n'est pas une mesure ou un contrôle de la centralité, mais elle permet de formuler des hypothèses sur le noyau central que l'on pourra vérifier avec les autres méthodes ». L'auteur fait référence, entre autres, à l'analyse prototypique que nous avons effectuée et que nous présenterons dans un deuxième temps.

<sup>1</sup> IRAMUTEQ est un logiciel libre écrit par Ratinaud (2009). Cet acronyme signifie « Interface de R pour les Analyses Multidimensionnelles de Textes et de Questionnaires ». Plus d'informations, voir : <http://reperer.noip.org/logiciel/iramuteq>.

### 3.1.2.2. Analyse des traitements graphiques issus de l'ADS à la question libre « médicament »

Concernant l'ADS effectué sur l'ensemble de la population de notre échantillon (Figures 45 à 48), nous notons que ce dernier s'organise autour de la catégorie MALADIES. Il apparaît également que les arrêtes les plus fortes partant de cette catégorie sont, en puissance décroissante, SOIGNER puis MEDECIN. Il n'est pas étonnant d'observer ces liens entre ces différentes catégories qui font ici référence à l'aspect pratique des médicaments (i.e. le soin, soulager une douleur) et au MEDECIN qui prescrit ces derniers. Une autre catégorie fortement représentative et directement reliée à la catégorie médicaments est la catégorie PRODUITS CHIMIQUES. Notons que cette catégorie est associée aux RIMED RAZIE (terme créole recouvrant les plantes médicinales de la pharmacopée traditionnelle). Ce lien est assez intéressant car la place des RIMED RAZIE en Martinique est assez ambivalente. En effet, certaines personnes les utilisent comme soins, alors que d'autres alertent sur les aspects toxiques liés à leurs mauvaises utilisations. On note également que la représentation sociale des médicaments mobilise la catégorie PHARMACIE avec une puissance de 31, ainsi que la catégorie TRAITEMENT. Notons enfin le lien entre CONTRE INDICATION et POSOLOGIE, car les individus associent le respect des posologies des médicaments aux effets néfastes qu'ils peuvent déclencher.

Concernant le groupe des jeunes de « 18-30 ans », la catégorie la plus puissante est PRODUITS CHIMIQUES, qui est également associée à la catégorie RIMED RAZIE. On note également que la population des jeunes associe les médicaments aux MEDECINS et à la PHARMACIE. La catégorie SOIGNER bénéficie, elle, d'une arrête plus faible. Malgré les faibles puissances d'arrêtes, la population des jeunes associe les catégories SOIGNER, TOXIQUE, CONTRE-INDICATION et POSOLOGIE. L'item SANTE est dans le même groupe mais sur un axe différent.

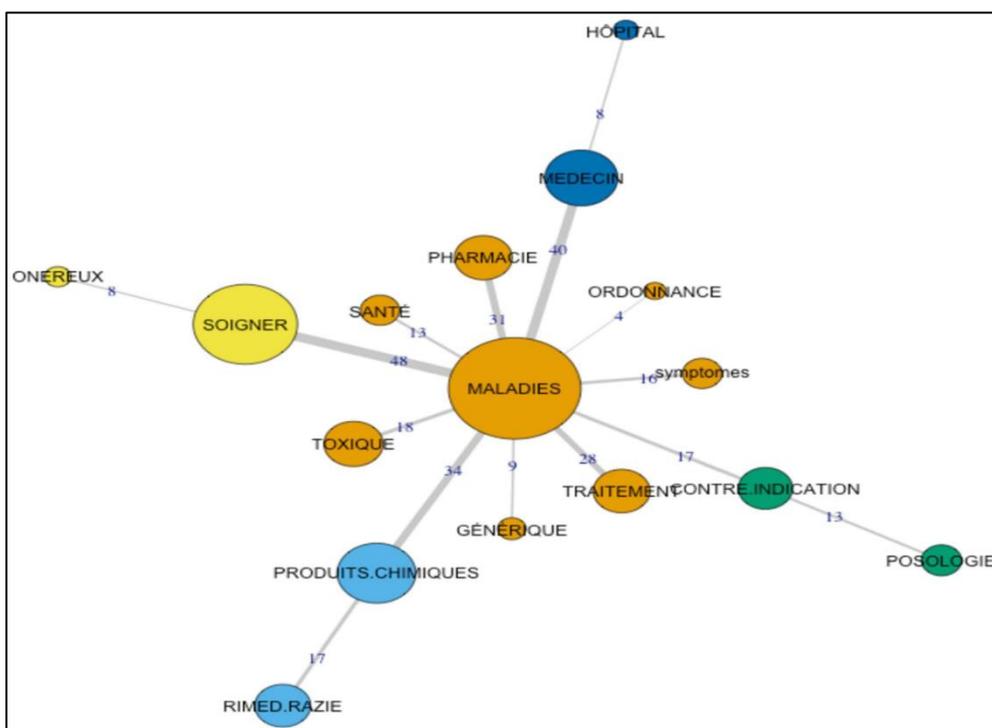


Figure 45 : Ensemble de l'échantillon CACEM (N : 178). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences (seuil = 5 %).

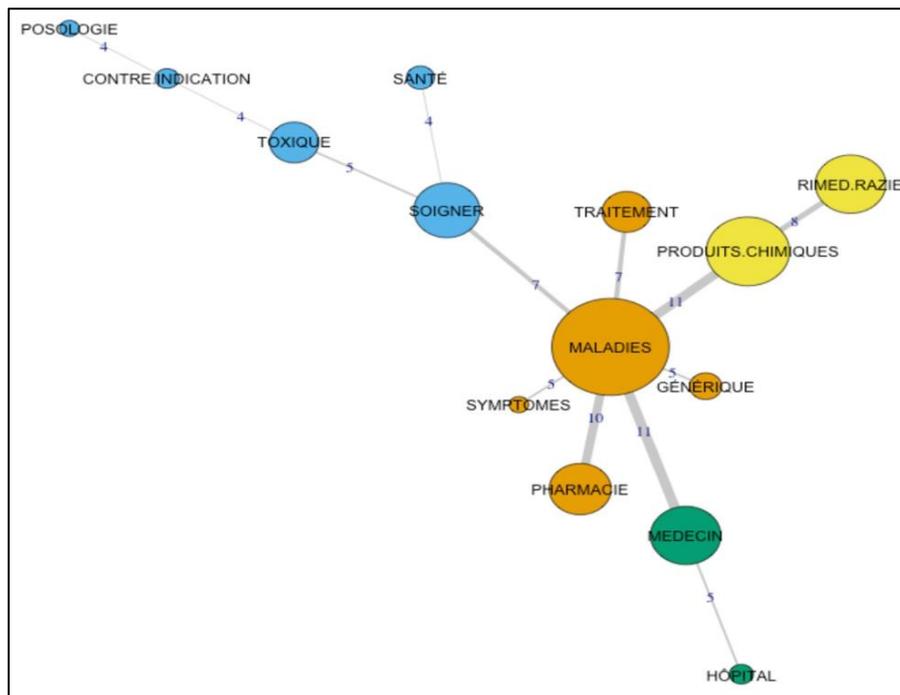


Figure 46 : Groupe « 18-30 ans » (N : 49). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences (seuil = 5 %).

Concernant le groupe des « 30-60 ans », la catégorie MALADIES organise également l'arbre maximum. L'arrête la plus puissante partant de cette catégorie est SOIGNER (22). Dès lors, la catégorie la plus puissante qui s'impose ensuite est celle des MEDECINS (20) puis celle des PRODUITS CHIMIQUES (17). Les catégories PHARMACIE et TRAITEMENT arrivent juste après. Notons que pour ce groupe l'item RIMED RAZIE ne bénéficie pas d'une forte puissance.

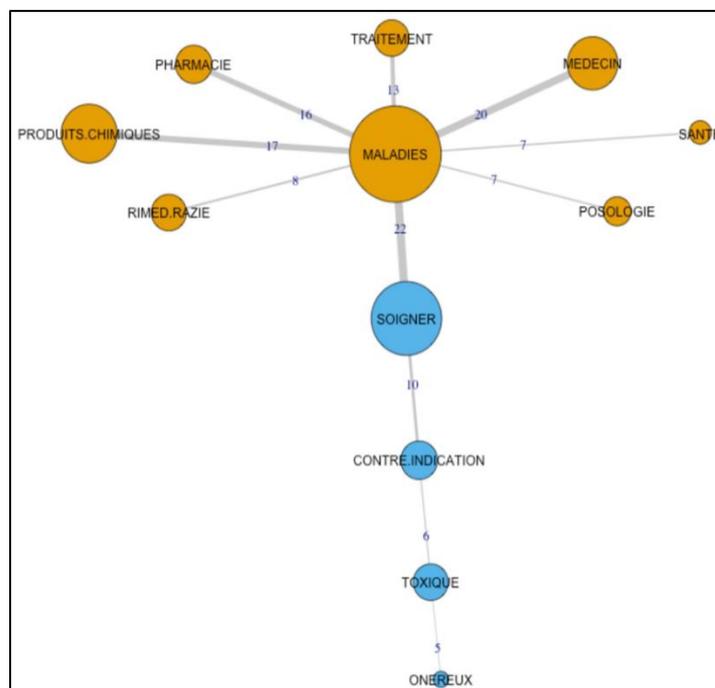


Figure 47 : Groupe « 30-60 ans » (N : 79). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences (seuil = 5%)

Concernant le groupe des « 60 ans et plus », l'item MALADIES structure également l'arbre maximum et que ce dernier est directement associé à l'item SOIGNER. Pour les personnes âgées, les actions des médicaments et

des soins sont directement associées au respect de la posologie. La catégorie la plus puissante qui suit est celle des SYMPTOMES et TRAITEMENT. Il est ici assez étonnant de ne pas retrouver la catégorie relative aux RIMED RAZIE. Nous y reviendrons.

L'ensemble de ces analyses de similitude est intéressant car il permet d'avoir une image globale et spécifique en fonction des groupes d'âges.

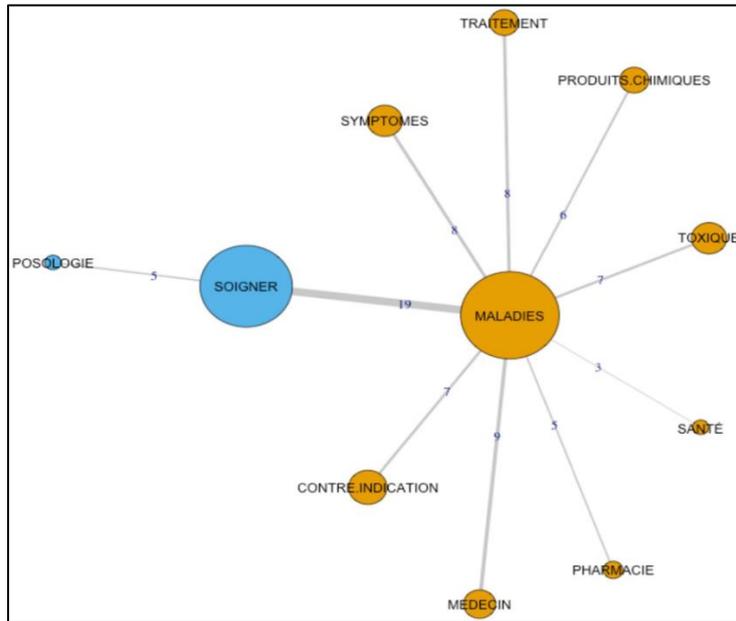


Figure 48 : Groupe « 60 ans et plus » (N : 50). Arbre maximum en pourcentage de cooccurrences (seuil = 5 %).

### 3.1.2.3. Représentation des médicaments : Analyse prototypique de question d'association libre

L'analyse prototypique a été systématisée par Vergés (1992), dans le cadre de ses travaux sur la représentation sociale de l'argent. Cette technique a pour objectifs :

- d'étudier la manière dont les éléments de réponse à l'association libre se répartissent,
- de repérer les éléments susceptibles d'être centraux et d'être périphériques dans la structure d'une représentation sociale.

Cette technique consiste à « relever d'une part la fréquence d'apparition de chacune des évocations et, d'autre part, son rang moyen d'apparition qui reflète si celle-ci a été plutôt citée en premier ou plutôt citée en dernier par les sujets » (Moliner *et al.*, 2002). Elle prend donc en considération deux critères de tri : la fréquence d'apparition (ou saillance), et le rang d'importance des items donnés par les individus. Ceci faisant, ils donnent accès au contenu hiérarchisé de la représentation sociale. Notons que cette procédure est un premier niveau d'analyse qui nécessite la passation d'un test d'indépendance au contexte permettant ainsi de valider ces hypothèses de structure.

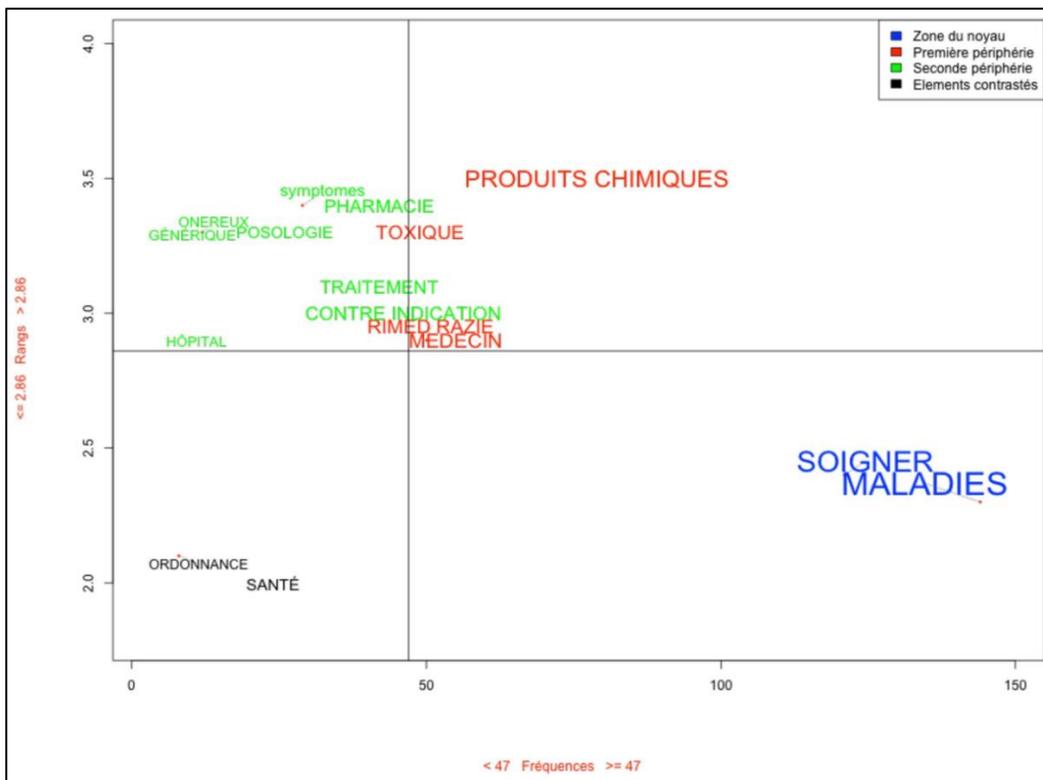


Figure 49 : Représentation des médicaments pour le groupe « territoire de la CACEM » (N=178).

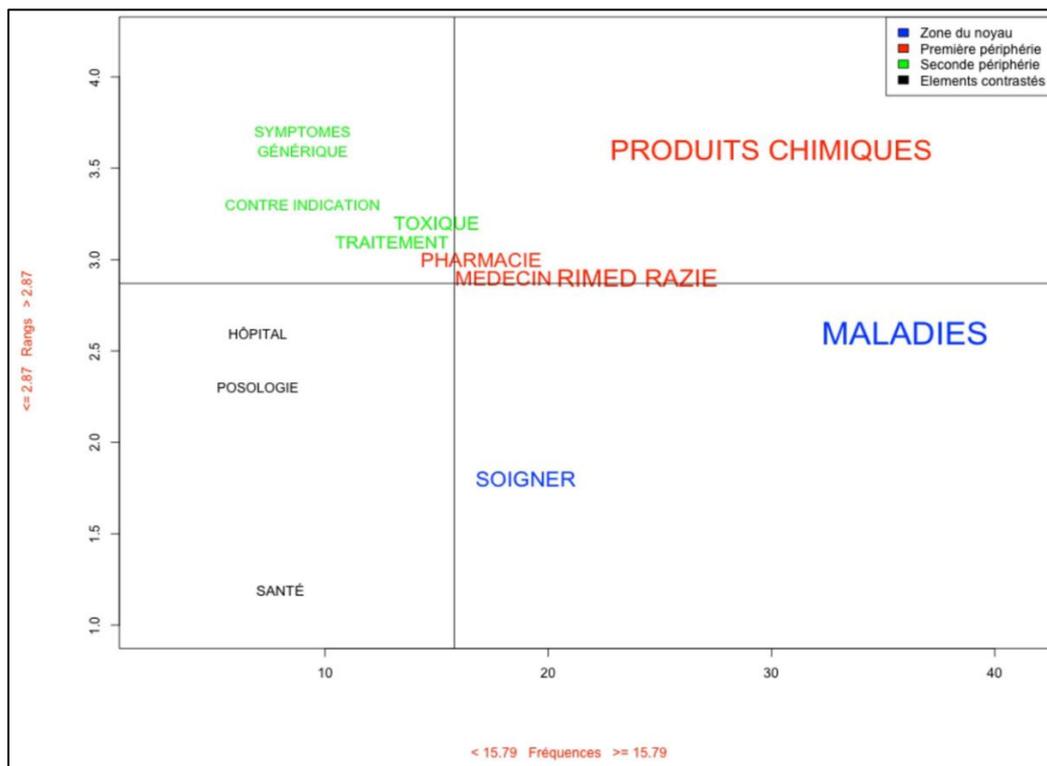


Figure 50 : Représentation des médicaments pour le groupe « 18-30 ans » (N= 49).

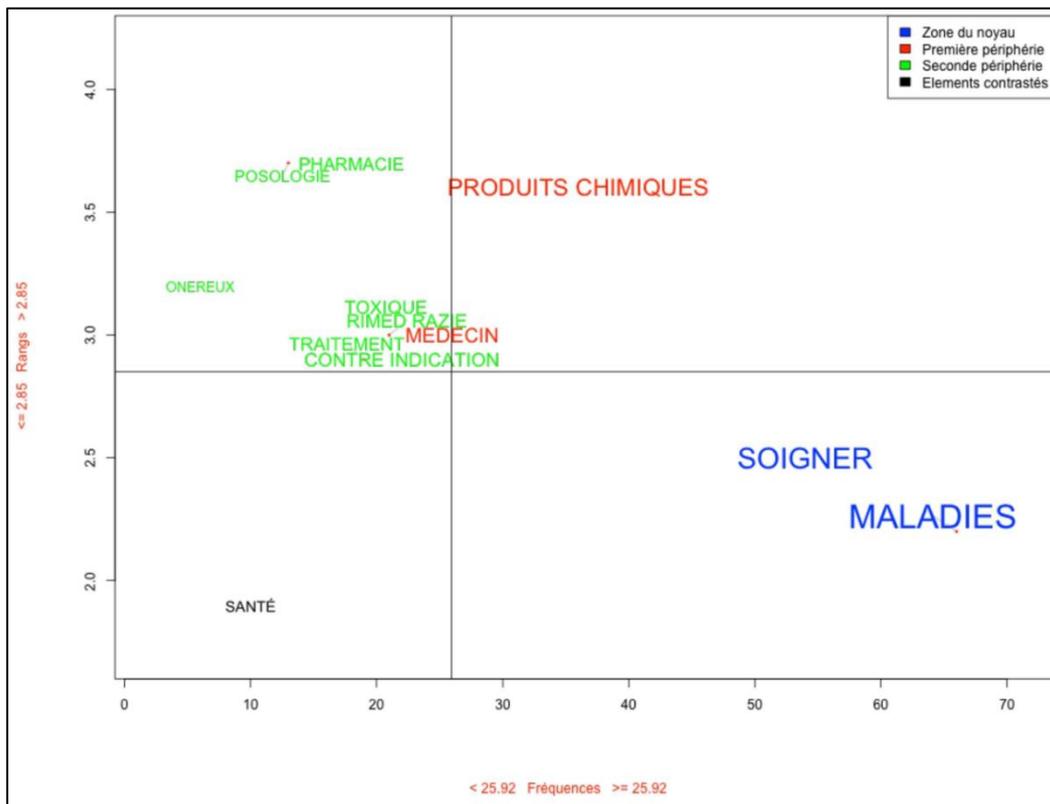


Figure 51 : Représentation des médicaments pour le groupe « 30-60 ans » (N= 79).

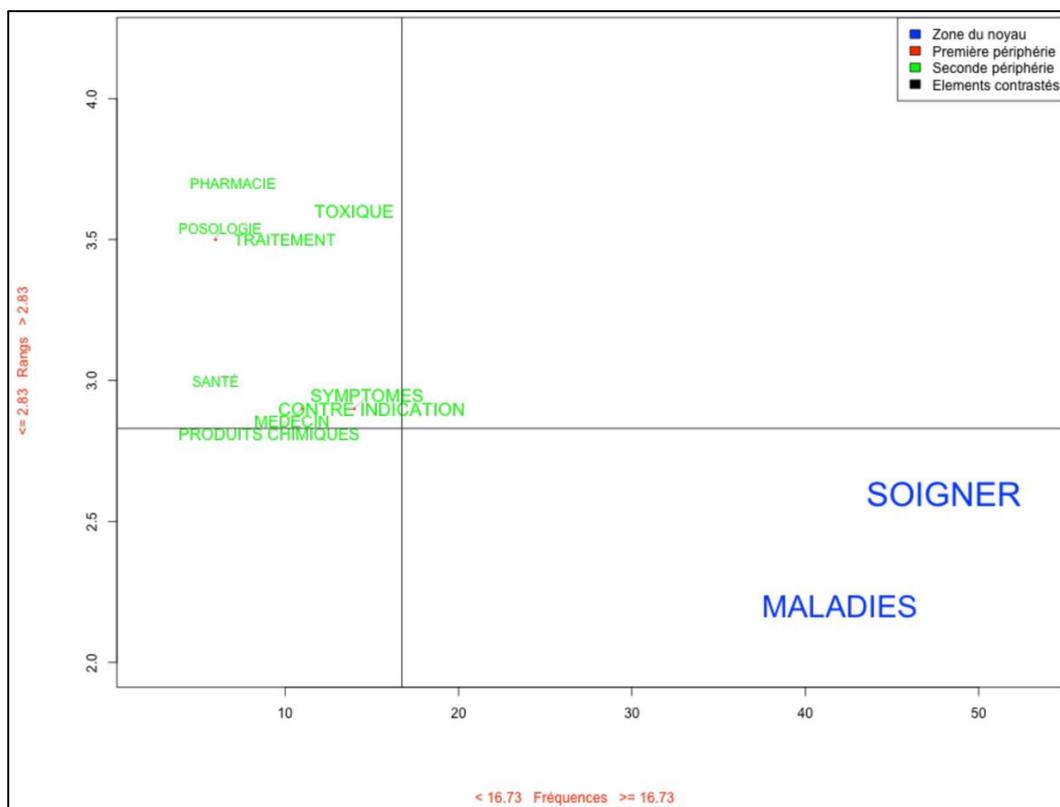


Figure 52 : Représentation des médicaments pour le groupe « 60 ans et plus » (N=50).

### 3.1.3. Discussion de l'analyse prototypique et diagnostic de centralité

Nous avons réalisé une analyse prototypique avec les résultats que nous avons obtenus grâce aux associations verbales pour chaque mot inducteur et pour chaque groupe (Figure 49 à 52). Cette analyse, contrairement à l'analyse de similitude, permet de mettre en exergue la structure de la représentation sociale que nous avons par la suite confirmée à l'aide d'un test d'indépendance au contexte. Afin de compléter notre analyse, nous avons effectué un test d'indépendance du Khi-Deux. Ce test statistique montre le caractère significatif de la différence et permet de voir si les mots évoqués sont typiquement d'une population en particulier. Contrairement à l'analyse de similitude, elle permet de mettre en exergue la structure de la représentation sociale. L'ensemble de nos tests se sont avérés non significatifs rejetant l'hypothèse nulle (absence de différence) avec une probabilité de 95 %. Dès lors, la variable « âge » n'est pas une variable discriminante en terme de différence de structure de représentation.

Néanmoins, c'est sur l'analyse prototypique issue de l'ensemble de notre échantillon que nous extrairons la représentation sociale des médicaments et effectuerons le diagnostic de centralité associé. Les conclusions des deux analyses des entretiens se confortent. Pour rappel, afin de réaliser le TIC les participants devaient estimer la stabilité des éléments en répondant par « oui » ou par « non » à la question de caractérisation systématique des médicaments. Après la passation, nous avons comptabilisé le nombre de réponse oui pour chacun des 6 items et transformé en pourcentage. De plus nous avons également calculé l'**indice Dmax** pour une probabilité d'erreur de 5 %, selon la loi de Kolmogorov –Smirnov. Cet indice permet d'établir le seuil à partir duquel nous pouvons considérer qu'un item est central. L'échantillon étant constitué de 144<sup>2</sup> individus nous avons utilisé la formule qui s'applique aux échantillons d'une taille supérieure ou égale à 35 personnes à savoir : **[1 – (1,36/racine de N)] x 100** en l'occurrence ici on calculait **[1 – (1,36/racine de 144)] x 100 = 88,7**. Le pourcentage de réponses « oui » attribuées par l'échantillon à chacun des items au TIC est ensuite examiné. Tout item ayant une proportion de réponses « oui » égale ou supérieure à 88,7 % est alors considéré comme central.

Nous présentons dans les tableaux suivants l'ensemble des items ayant reçu un pourcentage supérieur au D<sub>max</sub> correspondant, et donc constitutifs du noyau central de la représentation sociale des médicaments. Notons que l'ensemble de ces résultats viennent valider les hypothèses de centralités.

|   |
|---|
| <b>Pourcentage de réponses « oui » avec un<br/>D<sub>max</sub> = 88,7 %</b> |
| Soigner<br>Maladies   |

Dès lors, il apparaît dans un premier temps que les éléments présents dans la zone du noyau font référence aux SOINS et à la MALADIE. La population martiniquaise se représente centralement (c'est-à-dire inévitablement et inaliénablement) les médicaments comme support de soin, en association à leur fonction mais à l'exclusion des autres aspects alternatifs (symboliques...).

Concernant la zone périphérique, il apparaît que les sujets ont mobilisé l'item RIMED RAZIE. La présence de ce terme dans les évocations n'est pas anodin car les rimed razié font intimement partie de la vie créole (Benoist, 1993). L'une des raisons principales qui accompagne l'intérêt pour ce type de « thérapie » tient dans les valeurs symboliques attachées aux plantes médicinales, en lien avec la conception de la maladie chez les Antillais

---

<sup>2</sup> Pour rappel l'échantillon de 144 sujets présente les mêmes caractéristiques que notre échantillon initial mais il s'agit bien de répondants différents.

(Garetta, 2006). En effet, les populations des Caraïbes, et notamment les Martiniquais, ont une relation affective particulière aux plantes dites médicinales. Les études récentes montrent en effet que l'utilisation des rimes razié n'a jamais réellement disparu et que ces plantes sont toujours utilisées dans les campagnes, bénéficiant d'une transmission entre générations (Nossin et Exbrayat, 2010). Malgré ce constat, peu de données concrètes existent sur les rapports effectifs aux plantes aromatiques médicinales de la population antillaise, pourtant toujours présentes dans les jardins créoles et utilisées au quotidien par un certain nombre de locaux (Feliot-Rippeault et Marlin, 2015).

Faire référence aux remèdes traditionnels dans la représentation sociale des médicaments montre la spécificité de notre échantillon qui est à la croisée des médecines traditionnelle et allopathique. De plus, il est intéressant de noter que cet item est au croisement de la zone de centralité.

Notons également l'item MEDECIN qui apparaît comme élément périphérique. Il paraît, en toute logique, de retrouver cet item étant donné que c'est le médecin qui prescrit les médicaments. La présence de cet item est intéressante car les sujets interrogés pensent au médecin quand ils pensent aux médicaments, les alternatives professionnelles (pharmaciens, Sécurité sociale...) matérielles (produits chimiques, rimes razié, hôpital...) symboliques (droit à la santé, système de santé, solidarité nationale...), environnemental (produit toxique, déchet...) ou fonctionnelles (maladie, bactérie, virus...) n'entrant que peu voire pas dans le système de représentation. Dès lors, la dimension d'automédication à laquelle nous pouvions nous attendre n'apparaît pas ici : pour les individus, c'est le médecin qui prescrit les médicaments et jouit d'une crédibilité sans partage auprès de la population.

Enfin, deux autres items nous paraissent intéressants dans la zone de périphérie. Il s'agit des items PRODUITS CHIMIQUES et TOXIQUES. Pour les sujets, la représentation sociale des médicaments est associée à une molécule chimique qui est dangereuse, voire toxique. Ces deux items nous semblent intéressants, notamment dans le cadre d'une communication engageante. En effet, notons l'absence totale d'item faisant référence aux risques sanitaires et environnementaux liés aux usages de recyclage des médicaments par exemple. Dès lors, la présence d'items relatifs aux aspects toxiques nous semble intéressante dans le cadre d'une campagne de sensibilisation des usagers des médicaments.

Autrement dit, le fait que la population se représente les médicaments comme des produits chimiques toxiques permettrait de communiquer sur ces deux aspects dans l'objectif d'un changement des pratiques de recyclage, par exemple.

### 3.1.4. Conclusions

La tâche 2 du programme SENEUR avait pour principal objectif de comprendre le rapport qu'entretiennent les Martiniquais, et plus spécifiquement les habitants du territoire de la CACEM, avec les médicaments. Les résultats obtenus ont mis en évidence un univers représentationnel spécifique à cette population insulaire. Outre les résultats obtenus dans le cadre de l'analyse prototypique, les questionnements que nous avons soulevés, notamment en ce qui concerne les comportements de recyclage des médicaments, constituent une bonne base de réflexion sur laquelle peuvent s'appuyer des opportunités de communication institutionnelle.

De plus, investiguer les représentations sociales des médicaments chez la population martiniquaise nous offre l'opportunité de se saisir d'un champ de recherche plus large. En effet, les résultats de cette étude, qui est la première à s'intéresser à la représentation sociale des médicaments en Martinique, méritent de gagner en épaisseur en s'intéressant à un échantillon plus large, et en intégrant notamment la population des médecins

et des pharmaciens, par exemple. Il ne semble pas possible de faire l'économie de ces groupes qui font partie intégrante de l'univers des pratiques en lien avec la représentation sociale des médicaments. De plus, nous avons pu noter que, dans les éléments mobilisés par les sujets interrogés, les items MEDECIN et PHARMACIE apparaissent.

Pour résumer, la structure de la représentation sociale des médicaments chez la population martiniquaise est la suivante :

| Système central     | Système périphérique                                    |
|---------------------|---|
| Soigner<br>Maladies | Rimed Razie<br>Médecin<br>Toxique<br>Produits chimiques |

### Application et perspectives de recherches futures

L'objectif de cette tâche 2 du programme de recherche SENEUR était de connaître la représentation sociale des médicaments de la population martiniquaise dans le but de mettre en place des procédures de communications engageantes. Cette phase de recueil des représentations est essentielle afin d'envisager la suite. La tâche qui nous incombe ici ne couvre pas la phase de communication engageante. Cela étant, il nous semble intéressant d'apporter des pistes de recherche allant dans ce sens afin que les politiques publiques, notamment les acteurs institutionnels du territoire de la CACEM, puissent avoir de pistes d'actions dans le cadre de recherches futurs.

### Application pratiques

#### Vers un protocole de communication engageante

Le principe de base de la communication engageante repose sur la persuasion visant en un changement des attitudes et des connaissances. Or si la CE est efficace concernant un changement des attitudes et des connaissances, elle l'est moins en terme de changement de comportement. Notons en effet les travaux de nombreux auteurs qui alertent sur le fait que la communication de bonnes pratiques ne suffit pas à un changement de comportement (Eagly et Kulesa, 1997 ; Webb et Sheeran, 2006). Dès lors, c'est dans cette optique que l'ajout d'une variable comportementale permet de renforcer l'impact du message et a fortiori le changement de comportement (Weiss *et al.* 2011). Toujours dans cette perspective, notons l'hypothèse de Joule, Py et Bernard (2004) qu'un « message persuasif a plus de chances de déboucher sur les effets escomptés s'il a été précédé par des actes préparatoires engageants consistants (au sens des théories psychosociales de la consistance) avec lui ». Dès lors, l'ensemble de ces travaux viennent asseoir la pertinence du recours à la théorie de la communication engageante dans une perspective de changement de comportement. On note à ce titre de nombreux travaux dans ce sens, comme par exemple l'étude Bourg (2011) portant sur l'éco-mobilité dans une grande entreprise (Voir Bourg 2011 pour le détail de l'étude). Sans entrer dans les détails des méthodes, notons que dans le cadre d'une CE, l'objectif est d'obtenir la modification des comportements en s'appuyant sur 3 phases :

- 1) Réalisation d'un acte préparatoire (*i.e.* préparation à l'action) en accord avec le thème abordé. Par exemple en ce qui concerne notre étude, faire trier les médicaments périmés et les faire amener chez le pharmacien.
- 2) Présentation d'un message persuasif contenant des informations posant le cadre de la CE. Par exemple,

donner des informations concernant la teneur dans l'eau des résidus de médicaments. Puis présentation des arguments persuasifs visant à modifier les attitudes et les comportements.

- 3) Une « requête » (qui est ici la requête cible), c'est à dire l'engagement des sujets en termes d'intentions comportementales. Par exemple s'engager à ramener ces médicaments non utilisés à la pharmacie, en demandant en plus de donner le nom de la pharmacie visée, cela permettant alors une identification de l'action.

C'est au travers de l'étape 2, lors de la présentation d'un message persuasif que l'apport de la théorie des représentations sociales est primordial. En effet, plus le message implique le sujet, plus ce dernier aura de l'impact sur le changement de comportement. Notons les travaux de Girandola (2003, 2005) qui montrent la pertinence du lien entre l'approche structurale des représentations sociales et celle de la communication engageante. Autrement dit, plus les messages sont basés sur des éléments de la représentation sociale de l'objet sur lequel porte le changement de comportement attendu, plus il s'avère efficace.

Nous proposons dans la conclusion de ce rapport de présenter dans les grandes lignes un protocole de communication engageante visant à l'adoption de comportement de recyclage des médicaments. La tâche 2 du programme de recherche s'arrêtant à la mise en exergue de la structure de la représentation sociale des médicaments chez la population martiniquaise, il nous semble intéressant et justifier de proposer les pistes des applications concrètes d'une telle étude. Pour cela nous nous inspirons du protocole méthodologique des travaux de Zbinden (2011) concernant la protection de l'environnement chez les jeunes sportifs. Les résultats de cette étude sont particulièrement intéressants en termes de changement de comportement, résultats que l'on peut s'attendre à retrouver dans le cadre d'un changement de comportement en terme de recyclage des médicaments. Cette démarche se compose de trois étapes :

- 1) Mise en exergue des éléments de la représentation sociale de l'objet étudié, ici les médicaments (phase d'association verbale et d'analyse de similitude)
- 2) Repérage de la structure de la représentation sociale des médicaments (analyse prototypique et test d'indépendance au contexte, en cours)
- 3) Communication engageante

Les étapes 1 et 2 faisant l'objet du présent rapport, nous détaillons une proposition de protocole ainsi que de matériel nécessaire à la phase 3.

### **Acte préparatoire, étape 1.**

La première étape consiste à mettre en place un acte préparatoire comme par exemple la passation d'un questionnaire sur les médicaments et les usages qui y sont liées. Notons que cette passation n'est qu'un « prétexte » ayant pour but d'amener les participants à réfléchir sur la thématique des médicaments. Ce « questionnaire prétexte » constitue pour autant un premier engagement des participants. L'objectif ici est de construire un questionnaire sur les différents aspects concernant les médicaments et leur recyclage par exemple. Notons que les réponses à ce questionnaire n'ont pas vocation à être traitées, étant donné que ce questionnaire-outil ne constitue qu'une étape dans la communication engageante afin d'amener par la suite la requête cible. Nous pourrions envisager des questions comme celles-ci :

*Diriez-vous que les médicaments présents dans l'eau de votre ville sont un danger pour l'environnement ?*

*Pensez-vous que les médicaments périmés peuvent être recyclés ?*

*Pensez-vous être suffisamment informé sur l'impact des médicaments présent dans l'eau de votre commune ?*

*Combien de fois par an rapportez-vous vos médicaments à la pharmacie ?*

## Le message persuasif et la charte d'engagement, étape 2.

Il s'agit ici de faire lire un message à chaque participant en activant **un ou plusieurs éléments centraux ou périphérique** de la structure de la représentation sociale des médicaments. Le message doit être spécifique en fonction des éléments diagnostiqués lors de la phase 2.

Exemple de message activant les éléments centraux de la représentation sociale des médicaments : **soigner et maladie.**

*La protection de l'environnement est un sujet actuel au cœur de nombreux débats aujourd'hui. Ainsi, le gouvernement et les politiques publiques mettent en place de nombreux projets et actions visant à une protection de l'environnement dans le but d'améliorer la vie des citoyens. La qualité de l'eau fait en grande partie de ces préoccupations environnementales notamment à cause de la présence des résidus pharmaceutiques dans l'eau. En effet, les médicaments se retrouvent souvent dans l'eau et créer des pollutions sanitaires et environnementales. C'est dans ce cadre, qu'il est nécessaire que chacun prenne conscience des actions à mettre en place afin de participer à une diminution significative des résidus pharmaceutiques dans l'eau.*

*Pour cela il est nécessaire de préciser que les médicaments ont pour objectif de **soigner** et d'agir contre les **maladies**. En effet, les médicaments sont des molécules actives, tel des **produits chimiques** qui agissent contre une pathologie spécifique. Dès lors, les médicaments étant des **produits chimiques** nécessaires pour **soigner** les êtres humains il est nécessaire de les rapporter chez le pharmacien afin de pouvoir les réutiliser pour **soigner** d'autres personnes.*

*C'est pour toutes ces raisons qu'il est important que chacun d'entre nous prenne le temps de recycler ces médicaments et de les apporter chez le pharmacien et non les jeter dans les toilettes ou autre.*

*La vie de chacun et la qualité de notre eau n'en sera que meilleure, tout dépend de nous !*

*Il est possible de diminuer les risques sanitaires et environnementaux par des gestes simples, faciles et efficaces.*

*Je m'engage à rejoindre ceux qui participent au respect de l'environnement et de notre eau !*

Nom :

Prénom :

Signature :

Date :

Nom de ma pharmacie :

## La requête cible, étape 3

L'objectif de cette dernière étape du protocole de communication engageante vise à interroger les participants concernant leur intention réelle de recyclage des médicaments. L'idée étant de travailler sur des comportements effectifs, ce qui nécessite de faire un feed-back sur le terrain afin de mesurer le changement des comportements réels. Ce genre de mesure est parfois complexe à mettre en place, dès lors dans les travaux de communication engageante c'est l'intention comportementale qui est mesurée (Joule *et al.*, 2004 ; Foncéa et Joule, 2006 ; Joule, Bernard, Lagane et Girandola, 2007). Notons cependant que les intentions constituent de bons prédicateurs des comportements futurs. On peut envisager d'interroger les participants concernant les intentions comportementales de recyclage des médicaments. On envisage des questions par exemple

concernant les implémentations de leur action : comment, où et quand mettre en place des comportements de recyclage des médicaments ?

## 3.2. Analyse du cycle de vie des médicaments

Marché insulaire donc clos, et unique territoire français d'outremer doté de son propre recyclage des médicaments (assuré par la Martiniquaise de Valorisation), la Martinique constitue un site-atelier pour déterminer le devenir des médicaments, de l'entrée sur le territoire jusqu'aux milieux aquatiques, en évaluant notamment la fraction de médicaments non consommés et recyclés.

À ce titre, le programme SENEUR a comporté une action visant à quantifier les volumes de médicaments importés puis distribués par les grossistes répartiteurs, délivrés par les officines, et consommés par les particuliers, afin de mettre en évidence l'attrition dans les informations à chaque étape et le recyclage associé.

Cette partie du programme SENEUR a été menée suivant deux axes :

- La recherche de collaboration de pharmaciens d'officine, ou démarchés directement ou au travers de l'Ordre des pharmaciens de Martinique, mais aussi des pharmaciens travaillant chez les grossistes-répartiteurs.
- L'évaluation du taux d'acceptation des médicaments usagés par la technique du « client mystère ».

### 3.2.1. Cycle de vie des médicaments

L'analyse du cycle de vie des médicaments était un objectif atteignable mais dépendant du soutien de l'Agence Régionale de Santé (ARS) pour persuader les acteurs impliqués de participer, pharmaciens d'officine et grossistes répartiteurs. De même, l'Ordre des pharmaciens en Martinique a été approché afin d'identifier des praticiens acceptant de se prêter à l'étude par l'évaluation de leur gestion des invendus (casse, péremption, vol...).

L'Ordre des pharmaciens, non seulement n'a pas fourni de liste de volontaires, mais a indiqué (oralement) qu'une telle enquête ne pourrait être servie que contre rémunération –alors que, depuis l'Affaire des Poisons, les pharmaciens se doivent de tenir à jour une comptabilité analytique et consultable gratuitement et à tout moment, du fait de la spécificité des produits vendus en officine et des risques sanitaires associés.

Le programme SENEUR n'a pas non plus pu disposer de l'appui de l'ARS de Martinique pour faire valoir par le rappel des pharmaciens à leurs devoirs, de telle sorte qu'il n'a pas été possible d'obtenir de données ni de praticiens d'officine ni de grossistes-répartiteurs : cette attitude est d'autant plus regrettable que des travaux récents au Brésil ont joui de cette transparence et ont permis de réaliser une étude similaire.

### 3.2.2. Acceptation du retour en officine de médicaments usagers

Un lot stéréotypé de « médicaments périmés » a été apporté à quinze officines martiniquaises. Ces lots étaient composés des produits suivants :

- 1 médicament
- 1 produit vétérinaire
- 1 produit cosmétique type « parfum »
- 1 produit cosmétique balnéaire type « crème solaire »

- 1 emballage vide, un produit d'injection vide ou un pansement.

Les produits ont toujours été acceptés sans tri préalable (pas d'exclusion des produits non médicamenteux), mais, dans une minorité de cas (35 %), le dépôt se faisait à la discrétion des consommateurs dans un bac jaune dédié en accès libre sans contrôle. Les praticiens (ou leurs préparateurs) connaissent leur devoir mais, dans 20 % des cas, la procédure leur était inconnue et ils ont dû en discuter en arrière-salle. De plus, le devenir desdits sacs, en cas de dépôt accepté, n'est pas connu puisque les « médicaments » ont été emportés hors de vue du déposant. Sont-ils dirigés vers une unité d'incinération d'ordures ménagères via le système Cyclamed ou directement ?

Seules deux officines ont refusé de prendre les dépôts, l'une refusant sans explication, l'autre arguant de l'absence de matériel.

- les pharmaciens acceptent massivement le dépôt de ce qui leur est apporté par les particuliers au titre de la récupération des médicaments non utilisés (MNU),
- Le taux de récupération des MNU en Martinique n'est estimé par CYCLAMED qu'à 44 % de celui de la France en général hors Martinique.
- De très conséquents efforts n'ont pas permis d'obtenir l'adhésion des pharmaciens aux investigations. L'absence de soutien de l'Agence Régionale de Santé de Martinique a probablement représenté la cause principale de ce problème.

## Principales conclusions

---

Les influences du pH et de la température ont été montrées permettant d'améliorer les calculs de consommation de stupéfiants dans les conditions de la Martinique (pH acide et température plus élevée qu'en métropole) sur la base de la méthode d'épidémiologie des eaux usées.

De nouveaux protocoles innovants d'extraction et d'analyse des résidus de drogues illicites ont été développés grâce à l'utilisation d'intégrateurs passifs de type POCIS. Des valeurs paramétriques du calibrage ont été calculées notamment *in situ* et le temps d'exposition dans les eaux usées et les eaux de rivière définis.

Des essais réalisés confirmant la bonne corrélation de résultats entre les deux laboratoires collaborant pour l'étude.

Les campagnes d'analyse de micropolluants émergents (résidus de drogues illicites et résidus de médicaments) ont été réalisées dans les eaux usées de sites sélectionnés liés au réseau de collecte des eaux usées, dans les boues et eaux de STEU en lien avec les rejets en baie et dans les eaux de rivières se déversant dans la baie.

Elles montrent que :

- Ces eaux et les boues des STEU sont contaminées par une partie significative des contaminants recherchés.
- Les boues de la STEU PdN sont les plus contaminées par des résidus de drogues illicites et les boues des STEU PdN et Gaigneron sont celles dont les concentrations en RdM sont les plus élevées.
- Le devenir de ces molécules suite aux usages de valorisation agricole éventuels de ces boues est à évaluer.
- Les eaux usées en entrée de la STEU Godissard présentent les moyennes de concentrations en RdM les plus élevées et ce sont les eaux en sortie de la STEU de PdN qui sont le moins bien épurées envers ce paramètre.
- Les résidus de drogues illicites sont majoritairement représentés par la BZE, métabolite de la cocaïne, et le THC-COOH métabolite lié à la consommation de cannabis. Les RdM  $\gamma$  sont majoritairement représentés par le paracétamol.
- Les eaux des rivières transfèrent une majorité des contaminants par rapport aux rejets des STEU dans la baie.
- La priorité pour limiter la contamination de la Baie de Fort-de-France est de limiter la contamination des eaux de surface par l'augmentation du niveau de connexion au réseau épuratoire et en s'assurant de son étanchéité.
- Une amélioration de l'efficacité de traitement de la filière de PdN est aussi à envisager.
- Des traitements décentralisés sur des sites ponctuels émetteurs comme des centres de soins ne se justifient pas.
- Il est regrettable que l'étude n'ait pu être enrichie par les données de consommation de médicaments sur le bassin de collecte des eaux usées de Fort de France.

La tâche 2 du programme SENEUR avait pour principal objectif de comprendre le rapport qu'entretiennent les habitants de la Martinique avec l'utilisation des médicaments, afin de mettre l'accent sur les leviers permettant de réduire l'utilisation et/ou la mauvaise utilisation des médicaments. Pour la population les médicaments sont des produits pour soigner les maladies. Que ces maladies peuvent également se soigner à l'aide des Rimed Razie. Cela nous invite à communiquer et à s'intéresser à la place des Rimed Razie chez

la population. On note également, et c'est là un résultat important et intéressant que la population à conscience qu'il s'agit de produit chimique qui peuvent être toxiques. Dès lors cela permet des leviers d'action efficaces dans le cadre d'une communication engageante. La place et le rôle du médecin apparaissent comme fondamentaux sur lesquels les politiques publiques peuvent s'appuyer pour communiquer dans une perspective de changement de comportement.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- Abric, J.-C. (1976). Jeux, conflits et représentations sociales. Thèse de doctorat. Université de Provence.
- Abric, J.-C. (1984). L'artisan et l'artisanat : Analyse du contenu et de la structure d'une représentations sociales. *Bulletin de Psychologie*, 366, 861-875.
- Abric, J.-C. (1987). Coopération, Compétition et représentations sociales. Cousset-Fribourg : Del val.
- Abric, J.-C. (1989). L'étude expérimentale des représentations sociales. Dans D. Jodelet (Ed.), *Les représentations sociales* (pp. 205-223). Paris : Presses Universitaire de France.
- Abric, J.-C. (1993). Central system, peripheral system: their functions and roles in the dynamics of social representations. *Papers on Social Representations*, 2 (2), 75-78.
- Abric, J.-C. (1994a). L'organisation interne des représentations sociales : système central et système périphérique. Dans C. Guimelli (Ed.), *Structure et transformation des représentations sociales* (pp. 73-84). Neuchâtel/Paris : Delachaux et Niestlé.
- Abric, J.-C. (1994a). *Pratiques sociales et représentations*. Paris: PUF.
- Afonso-Olivares C., Sosa-Ferrera Z., Santana-Rodríguez J.J. 2017. Occurrence and environmental impact of pharmaceutical residues from conventional and natural wastewater treatment plants in Gran Canaria (Spain). *Sci. Tot. Envir.* 599–600, 934-943.
- Ali A.M., Thorsen H., Alarif W., Kallenborn R., Al-lihaibi S.S. 2017. Occurrence of pharmaceuticals and personal care products in effluent- dominated Saudi Arabian coastal waters of the Red Sea. *Chemosphere* 175, 505-513.
- Aminot Y., Litrico, X., Chambolle, M., Arnaud C., Pardon, P., Budzindki, H. 2017. Development and application of a multi-residue method for the determination of 53 pharmaceuticals in water, sediment, and suspended solids using liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *Anal. Bioanal. Chem.* 407(28), 8585-8604.
- Alvarez D.A. (1999) Development of an integrative sampling device for hydrophilic organic contaminants in aquatic environments, Missouri - Columbia, Columbia, 160 pp.
- Alvarez D.A., Petty J.D., Huckins J.N., Jones-Lepp T.L., Getting D.T., Goddard J.P., Manahan S.E. (2004). Development of a passive, in situ, integrative sampler for hydrophilic organic contaminants in aquatic environments. *Environ.Toxic .and Chem.*23:1640-1648
- Alvarez D.A., Huckins J.N., Petty J.D., Jones - Lepp T., Stuer - Lauridsen F., Getting D.T., Goddard J.P., Gravell A. (2007). Tool for monitoring hydrophilic contaminants in water: polar organic chemical integrative sampler (POCIS). In: Greenwood R, Mills GA, Vrana B (Editors), *Comprehensive Analytical Chemistry. Passive Sampling Techniques in Environmental Monitoring*. Elsevier, pp. 171-197.
- Ankley G.T., Brooks B.W., Hugget D.B., Sumpter J.S. 2007. Repeating history: Pharmaceuticals in the environment. *Environ. Sci. Technol.* 41, 8211–8217.
- Archer E., Wolfaardt G.M., van Wyk J.H. 2017. Pharmaceutical and personal care products (PPCPs) as endocrine disrupting contaminants (EDCs) in South African surface waters. *Water SA.* 43(4), 684-706.
- Asch, S. (1946). Forming impressions of personality. *Journal of Abnormal and Social Psychology*, 41, 258-290.
- Asghar M.A., Zhu Q., Sun S., Peng Y., Shuai Q. 2018. Suspect screening and target quantification of human pharmaceutical residues in the surface water of Wuhan, China, using UHPLC-Q-Orbitrap HRMS. *Sci. Total Envir.* 635, 828-837
- Ashfaq M., Nawaz Khan K., Saif Ur Rehman M., Mustafa G., Faizan Nazar M., Sun Q., Iqbal J., Mulla S.I., Yu C.P. 2017. Ecological risk assessment of pharmaceuticals in the receiving environment of pharmaceutical wastewater in Pakistan. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 136, 31-39.
- Australian Criminal Intelligence Commission. National wastewater drugmonitoring program—report 5. Canberra: Australian Criminal Intelligence Commission, 2018.
- Baalbaki Z., Sultana T., Maere T., Vanrolleghem P.A., Metcalfe C.D., Yargeau V. 2016. Fate and mass balance of contaminants of emerging concern during wastewater treatment determined using the fractionated approach. *Sci. Tot. Env.* 573, 1147-1158.

- Bahlmann A., Carvalho J.J., Weller M.G., Panne U., Schneider R.J. 2012. Immunoassays as high-throughput tools: Monitoring spatial and temporal variations of carbamazepine, caffeine and cetirizine in surface and wastewaters *Chemosphere* 89 (11), 1278-1286.
- Bailly E., Levi Y., Karolak S. 2013. Calibration and field evaluation of polar organic chemical integrative sampler (POCIS) for monitoring pharmaceuticals in hospital wastewater. *Environ. Poll.* 174, 100-105.
- Baker, D.R., Očenášková, V., Kvicálová, M., Kasprzyk-Hordern, B. 2012. Drugs of abuse in wastewater and suspended particulate matter - Further developments in sewage epidemiology. *Envir. Intern.* 48, 28-38.
- Bartelt-Hunt S.L., Snow D.D., Teyona Damon, Johnette Shockley, Kyle Hoagland. (2010) The occurrence of illicit and therapeutic pharmaceuticals in wastewater effluent and surface waters in Nebraska. *Environmental Pollution*, 158, 2790-2791.
- Balakrishna K., Rath A., Praveenkumarreddy Y., Guruge K.S., Subedi B. 2017. A review of the occurrence of pharmaceuticals and personal care products in Indian water bodies. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 137, 113-120.
- Balmer M.E., Poiger T., Droz C., Romanin K., Bergqvist P.A., Müller M.D., Buser H.A. 2004. Occurrence of methyl triclosan, a transformation product of the bactericide triclosan, in fish and from various lakes in Switzerland. *Environ. Sci. Technol.* 38, 390-395.
- Baronti C., Curini R., D'Ascenzo G., Di Corcia A., Gentili A., Samperi R. 2000. Monitoring Natural and Synthetic Estrogens at Activated Sludge Sewage Treatment Plants and in a Receiving River Water. *Environ. Sci. Technol.* 34 (24), 5059-5066.
- Battaglin W.A., Bradley P.M., Iwanowicz L., Journey C.A., Walsh H.L., Blazer V.S. 2018. Pharmaceuticals, hormones, pesticides, and other bioactive contaminants in water, sediment, and tissue from Rocky Mountain National Park, 2012-2013. *Sci. Tot. Envir.* 643, 651-673.
- Bayona J.M., Fernandez P., Porte C., Tolosa I., Valls M., Albaiges J. 1991. Partitioning of urban wastewater organic microcontaminants among coastal compartments *Chemosphere* 23 (3), 313-326.
- Bean T.G., Rattner B.A., Lazarus R.S., Day D.D., Burket S.R., Brooks B.W., Haddad S.P., Bowerman W.W. 2018. Pharmaceuticals in water fish and osprey nestlings in Delaware River and Bay. *Environ. Pollut.* 232, 533-545.
- Belles A., Pardon P., Budzinski H. (2014). Development of an adapted version of polar organic chemical integrative samplers (POCIS-Nylon) *Anal. Bioanal. Chem.* 406, (4), 1099-1110.
- Benoist, J. (1993). *Anthropologie médicale en société créole*, PUF, p. 286.
- Biel-maeso M., Corada-fern C., Lara-martín P.A. 2018a. Monitoring the occurrence of pharmaceuticals in soils irrigated with reclaimed wastewater. *Environ. Pollut.* 235, 312-321.
- Biel-maeso M., Baena-nogueras R.M., Corada-fernández C., Lara-martín P.A. 2018b. Occurrence, distribution and environmental risk of pharmaceutically active compounds (PhACs) in coastal and ocean waters from the Gulf of Cadiz (SW Spain). *Sci. Total Envir.* 612: 649-659.
- Bijlsma L., Boix C., Niessen W.M.A., Ibáñez M., Sancho J.V., Hernández F. 2013. Investigation of degradation products of cocaine and benzoylecgonine in the aquatic environment. *Sci. Tot. Env.* 443, 200-208.
- Boleda M.R., Galceran M.T., Ventura F. 2013. Validation and uncertainty estimation of a multiresidue method for pharmaceuticals in surface and treated waters by liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *J. Chromat. A.* 1286: 146-158.
- Bókony V., Üveges B., Ujhegyi N., Verebélyi V., Nemesházi E., Csíkvári O., Hettyey A. 2018. Endocrine disruptors in breeding ponds and reproductive health of toads in agricultural, urban and natural landscapes *Sci. Total Envir.* 634, 1335-1345.
- Botero-Coy A.M., Martínez-Pachón D., Boix C., Rincón R.J., Castillo N., Arias-Marín L.P. 2018. An investigation into the occurrence and removal of pharmaceuticals in Colombian wastewater. *Sci. Tot. Env.* 642, 842-853.
- Bourg, G. (2011). *L'apport de la communication engageante et des représentations sociales dans le cadre de la promotion de l'éco-mobilité*. Thèse de doctorat es psychologie de l'Université de Bourgogne.
- Bouriche, B. (2003). *L'analyse de similitude*. In J.-C. Abric (Ed.), *Méthodes d'étude des représentations sociales* (pp. 221-252). Ramonville Saint-Agne : Erès.
- Bramness J.G., Reid M.J., Solvik K.F., Vindenes V. 2015. Recent trends in the availability and use of amphetamine and methamphetamine in Norway. *For. Sci. Intern.* 246, 92-97.

- Brewer A.J., Banta-Green C.J., Ort C., Robel A.E., Field J. 2016. Wastewater testing compared with random urinalyses for the surveillance of illicit drug use in prisons. *Drug Alc. Rev.* 35 (2), 133-137.
- Brieudes V. (2014) Caractérisation de la contamination des systèmes aquatiques par les psychotropes : développement d'une méthode de référence incluant une démarche multifactorielle de hiérarchisation. Thèse en Chimie Analytique et environnement. 387pp
- Brooks B.W., Foran C.M., Richards S.M., Weston J., Turner P.K., Stanley J.K., Solomon K.R., Slattery M., La Point T.W. 2003. Aquatic ecotoxicology of fluoxetine. *Toxicol. Lett.* 142, 169–183.
- Brooks B.W., Riley T.M., Taylor R.D. 2006. Water quality of effluent-dominated stream ecosystems: Ecotoxicological, hydrological, and management considerations. *Hydrobiologia* 556, 365–379.
- Brumovský M., Bečanová J., Kohoutek J., Borghini M., Nizzetto L. 2017. Contaminants of emerging concern in the open sea waters of the Western Mediterranean. *Environ. Poll.* 229, 976-983.
- Bu Q., Wang B., Huang J., Deng S., Yu G. Pharmaceuticals and personal care products in the aquatic environment in China: A review. *J. Haz. Mater.* 2013; 262: 189-211.
- Buerge I.J., Poiger T., Müller M.D., Buser H.-R. 2003. Caffeine, an Anthropogenic Marker for Wastewater Contamination of Surface Waters. *Environ. Sci. Technol.* 37(4), 691–700.
- Burns E.E., Carter L.J., Kolpin D.W., Thomas-Oates J., Boxall A.B.A. 2018. Temporal and spatial variation in pharmaceutical concentrations in an urban river system. *Wat. Res.* 137, 72-85.
- Buser H.-R., Balmer M.E., Schmid P., Kohler M. 2006. Occurrence of UV-filters 4-methylbenzylidene camphor and octocrylene in fish from various Swiss rivers with inputs from wastewater treatment plants. *Environ. Sci. Technol.* 40, 1427–1431.
- Caban M., Lis E., Kumirska J., Stepnowski P. 2015. Determination of pharmaceutical residues in drinking water in Poland using a new SPE-GC-MS(SIM) method based on Speedisk extraction disks and DIMETRIS derivatization. *Sci. Tot. Env.* 538, 402-411.
- Campestrini I., Jardim W.F. 2017. Occurrence of cocaine and benzoylecgonine in drinking and source water in the São Paulo State region, Brazil. *Sci. Tot. Env.* 576, 374-380.
- Carmona E., Andreu V., Pico Y. 2014. Occurrence of acidic pharmaceuticals and personal care products in Turia River Basin: from waste to drinking water. *Sci. Tot. Env.* 484, 53-63.
- Carraro E., Bonetta S., Bertino C., Lorenzi E., Bonetta S., Gilli G. 2016. Hospital effluents management: Chemical, physical, microbiological risks and legislation in different countries. *J. Environ. Manag.* 168, 185-199.
- Caupos E., Touffet A., Mazellier P., Croue J.P. 2015. Partitioning of the pesticide trifluralin between dissolved organic matter and water using automated SPME-GC/MS, *Environ. Sci. Poll. Res.* 22, 4201-4212, doi: 10.1007/s11356-014-3614-0.
- Celle-Jeanton H., Schemberg D., Mohammed N., Huneau F., Bertrand G., Lavastre V., Le Coustumer P. 2014. Evaluation of pharmaceuticals in surface water: reliability of PECs compared to MECs. *Environ. Int.* 73, 10-21.
- Cesen M., Heath D., Krivec M., Kosmrli J., Kosjek T., Heath E. 2018. Seasonal and spatial variations in the occurrence, mass loadings and removal of compounds of emerging concern in the Slovene aqueous environment and environmental risk assessment. *Environ. Poll.* 242.
- Chèvre N. 2014. Pharmaceuticals in surface waters: sources, behavior, ecological risk, and possible solutions. Case study of Lake Geneva, Switzerland. *Wiley Interdiscipl. Rev.: Wat.* 1(1), 69-86.
- Choubert J.M., Martin Ruel S., Esperanza M., Budzinski H., Mie C., Lagarrigue C., Coquery M. 2011. Limiting the emissions of micro-pollutants: what efficiency can we expect from wastewater treatment plants? *Wat. Sci. Technol.* 63 (1), 57-65.
- Dalahmeh S., Björnberg E., Elenström A.-K., Niwagaba C.B., Komakech A.J. 2020. Pharmaceutical pollution of water resources in Nakivubo wetlands and Lake Victoria, Kampala, Uganda. *Sci. Tot. Env.* 710, 136347.
- Daughton C.G., Ternes T.A. 1999. Pharmaceuticals and personal care products in the environment: agents of subtle change? *Environ. Health Perspect.* 107 (Suppl 6), 907–938.
- Degenne, A., Vergès, P. (1973). Introduction à l'analyse de similitude. *Revue Française de Sociologie*, 14, 471-512.
- Deliege J.-F., Everbecq E., Magermans P., Grard A., Bourouag T., Blockx C., Smits J. 2010. PEGASE, an integrated river/basin model dedicated to surface water quality assessment: application to cocaine. *Acta Clinica Belgica, Intern. J. Clin. Lab. Med.* 65 (S1), 42-48.

- Devault D.A., Néfau T., Pascaline H., Karolak S., Levi Y. 2014. First evaluation of illicit and licit drug consumption based on wastewater analysis in Fort de France urban area (Martinique, Caribbean), a transit area for drug smuggling *Sci. Tot. Envir.* 490, 970-978.
- Devault D.A., Néfau T., Levi Y., Karolak S. 2017. The removal of illicit drugs and morphine in two waste waters treatment plants (WWTPs) under tropical conditions. *Environ. Sci. Poll. Res.* 24 (33), 25645-25655.
- Devault D.A., Amalric L., Bristeau S., Cruz J., Tapie N., Karolak S., Budzinski H., Lévi Y. 2020. Removal efficiency of emerging micropollutants in biofilter wastewater treatment plants in tropical areas. *Environ. Sci. Poll. Res.* <https://doi.org/10.1007/s11356-020-10868-z>
- Dinis-Oliveira R.J. 2017. Metabolic profile of oxazepam and related benzodiazepines: clinical and forensic aspects. *Drug Metab. Rev.* 49 (4), 451-463.
- Di Poi C., Costil K., Bouchart V. 2018. Toxicity assessment of five emerging pollutants, alone and in binary or ternary mixtures, towards three aquatic organisms. *Environ Sci Poll. Res Int.* 5(7), 6122-6134.
- Duong H., Pham N., Nguyen H., Hoang T., Pham H., Ca Pham V., Berg M., Giger W., Alder A. 2008. Occurrence, fate and antibiotic resistance of fluoroquinolone antibacterials in hospital wastewaters in Hanoi, Vietnam. *Chemosphere* 72, 968-973.
- Durkheim, E. (1898). Représentations individuelles et représentations collectives. *Revue de métaphysique et de morale*, 6, 273-302.
- Eagly, A.H., Kulesa, P. (1997). Attitudes, attitude structure and resistance to change: implications for persuasion on environmental issues. In M.E. Bazerman, D.M. Messick, et al. (Eds.). *Environment, ethics and behavior : The psychology of environmental valuation and degradation* (pp.122–153). San Francisco : NewLexington Press management series.
- Elliott S.M., Brigham M.E., Kiesling R.L., Schoenfuss H.L., Jorgenson Z.G. 2018. Environmentally relevant chemical mixtures of concern in waters of United States tributaries to the Great Lakes. *Integr. Environ. Assess. Manag.* 14, 509-518.
- Esseiva P., Benaglia L., Zobel F., Been F. 2017. Evaluating the consumption of illicit drugs via wastewater analysis: How forensic indicators are used in open and confined settings. *The Routledge International Handbook of Forensic Intelligence and Criminology* 160-174.
- Evans E.D., Dai C., Isazadeh S., Park S., Ratti C. Alm E.J. 2020. Longitudinal wastewater sampling in buildings reveals temporal dynamics of metabolites. *PLOS Computational Biology* Open access. <https://doi.org/10.1371/journal.pcbi.1008001>
- Eyssartier, C., Guimelli, C., Joule R.V. (2009). Représentations sociales et engagement. In P. Rateau et P. Moliner (Eds.), *Représentations sociales et processus sociocognitifs* (pp. 151-163). Rennes : PUF
- Eyssartier, C., Joule, R.V., Guimelli, C., (2007). Effets comportementaux et cognitifs de l'engagement dans un acte préparatoire activant un élément central versus périphérique de la représentation du don d'organes. *Psychologie Française*, 52, 499–517.
- Fedorova G., Randaka T., Golovko O., Kodes V, Grabicova K., Grabic R. (2014). A passive sampling method for detecting analgesics, psycholeptics, antidepressants and illicit drugs in aquatic environments in the Czech Republic. *Science of the total environment.* 487, 681-687.
- Feliot-rippeault, M., Marlin, L. (2015) : Étude des représentations et pratiques des « Rimed Razié » en Martinique : Méthodologie d'enquête, in « L'usage des plantes médicinales aux Antilles et en Guyane. Les remèdes anciens au fil du temps », Éditions Terres d'Amérique, n°9.
- Fekadu S., Alemayehu E., Dewil R., Van der Bruggen B. 2019. Pharmaceuticals in freshwater aquatic environments: A comparison of the African and European challenge. *Sci. Tot. Env.* 654, 324-337.
- Fent K., Weston A.A., Caminada D. 2006. Erratum to "ecotoxicology of human pharmaceuticals". *Aquat. Toxicol.* 76, 122-159.
- Ferrari B., Mons R., Vollat B., Fraysse B., Paxeus N., Lo Giudice R., Pollio A., Garric J. 2004. Environmental risk assessment of six human pharmaceuticals: Are the current environmental risk assessment procedures sufficient for the protection of the aquatic environment? *Environ. Toxicol. Chem.* 23, 1344-1354.
- Ferrer I., Thurman E.M. 2012. Analysis of 100 pharmaceuticals and their degradation products in water samples by liquid chromatography/quadrupole time-of-flight mass spectrometry. *J. Chromatogr. A.* 1259, 148-157.

- Ferrey M.L., Heiskary S., Grace R., Hamilton M.C., Lueck A. 2015. Pharmaceuticals and other anthropogenic tracers in surface water: A randomized survey of 50 Minnesota lakes. *Environ. Toxicol. Chem.* 34 (11), 2475-2488.
- Fick J., Söderström H., Lindberg R.H., Phan C., Tysklind M., Larsson D.G.J. 2009. Contamination of surface, ground, and drinking water from pharmaceutical production. *Environ. Toxicol. Chem.* 28 (12), 2522-2527.
- Fick J., Brodin T., Heynen M., Klaminder J., Jonsson M., Grabicova K., Randak T., Grabic R., Kodes V., Slobodnik J., Sweetman A., Earnshaw M., Barra Caracciolo A., Lettieri, T., Loos, R. 2017. Screening of benzodiazepines in thirty European rivers. *Chemosphere* 176, 324-332.
- Fisch K., Waniek J.J. Schulz-Bull D.E. 2017. Occurrence of pharmaceuticals and UV- filters in riverine run-offs and waters of the German Baltic Sea. *Mar. Pollut. Bull.* 124: 388-399.
- Flament, C. (1986). L'analyse de similitude : une technique pour les recherches sur les représentations sociales. In W. Doise & A. Palmonari (Eds.), *L'étude des représentations sociales* (pp. 139-156). Lausanne : Delachaux & Nestlé.
- Flament, C. (1994). Structure, dynamique et transformation des représentations. Dans J. C. Abric (Ed.), *Pratiques Sociales et Représentations* (pp. 37-58). Paris : PUF.
- Flament, C. (2001). Approche structurale et aspects normatifs des représentations sociales. *Psychologie et société*, 2(4), 57-80.
- Foster A.L. 2007. Occurrence and Fate of Endocrine Disruptors through the San Marco Wastewater Treatment Plant, Thesis of Master of Science, Texas State University. 81pp.
- Funke J., Prasse C. Ternes T.A. 2016. Identification of transformation products of antiviral drugs formed during biological wastewater treatment and their occurrence in the urban water cycle. *Wat. Res.* 98, 75-83.
- Gabet-Giraud V., Miège C., Choubert J.M., Martin Ruel S., Coquery M. 2010. Occurrence and removal of oestrogens and beta blockers by various processes in wastewater treatment plants. *Sci. Tot. Env.* 408 (19), 4257-4269.
- Galletti A., Verlicchi P., Al Aukidi M., Petrovic M., Barcelo D. Hospital as a source of emerging contaminants (pharmaceutical): results of an investigation on its final effluent chemical characteristics. Proceeding of the 12th International Conference of Environmental Science and Technology, Rhodes, Greece (2011).
- Garetta, R. (2006). Des simples à l'essentiel. De l'herboristerie à l'aromathérapie, pratiques et représentations des plantes médicinales, Toulouse, Presses universitaires du Mirail, coll. « Les Anthropologiques », 368 p.
- Garric J, Ferrari B, Fraysse B, Mons R, Vollat B. 2006. Impact de médicaments à usage humain sur les organismes aquatiques d'eau douce. *Envir. Ris. Sant.* 5, 290-295.
- Gessain A., Cassar O. 2012. Epidemiological Aspects and World Distribution of HTLV-1 Infection. *Front Microbiol.* 3, 388.
- Ghirardini A., Verlicchi P. 2019. A review of selected microcontaminants and microorganisms in land runoff and tile drainage in treated sludge-amended soils. *Sci. Tot. Env.* 655, 939-957.
- Girandola, F. (2003). *Psychologie de la persuasion et de l'engagement*. Besançon : Presses universitaires de Franche-Comté.
- Girandola, F. (2005). Action and commitment theory. In Alexandre, V., 138 Gasparski, W. (Eds.). *French and other perspectives in praxeology* (vol. 12, pp.117–130). New Jersey : Transaction Publishers.
- Godfrey E., Woessner W.W., Benotti M.J. 2007. Pharmaceuticals in on-site sewage effluent and ground water, Western Montana. *Ground Wat.* 45 (3), 263-271.
- Godoy A.A., Kummrow F., Pamplin P.A.Z. 2015. Occurrence, ecotoxicological effects and risk assessment of antihypertensive pharmaceutical residues in the aquatic environment - A review. *Chemosphere* 138, 281-291.
- Gomez M.J., Petrovic M., Alba A.R.F., Barceló D. 2006. Determination of pharmaceuticals of various therapeutic classes by solid-phase extraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry analysis in hospital effluent wastewaters *J. Chromatogr. A.* 1114 (2), 224-233

- González-Mariño I., Baz-Lomba J.A., Alygizakis N.A., Andrés-Costa M.J., Bade R., Bannwarth A., *et al.* 2019. Spatio-temporal assessment of illicit drug use at large scale: evidence from 7 years of international wastewater monitoring. *Addiction*. 115 (1), 109-120.
- Gonzalez-Rey M., Tapie N., Le Menach K., Devier M.H., Budzinski H., Bebianno M.J. 2015. Occurrence of pharmaceutical compounds and pesticides in aquatic systems. *Mar. Poll. Bull.* 96(1-2), 384-400.
- Guruge K.S., Goswami P., Tanoue R., Nomiya K., Wijesekara R.G.S., Dharmaratne T.S. 2019. First nationwide investigation and environmental risk assessment of 72 pharmaceuticals and personal care products from Sri Lankan surface waterways. *Sci. Tot. Env.* 690, 683-695.
- Halling-Sørensen B., Nors S., Nielsen P.F., Lanzky F., Ingerslev H.C., Holten S. Lützhøft S.E. Jørgensen S.E. 1998. Occurrence, fate and effects of pharmaceutical substances in the environment- A review. *Chemosphere* 36 (2), 357-393.
- Han GH, Hur HG, Kim SD. 2006. Ecotoxicological risk of pharmaceuticals from wastewater treatment plants in Korea: Occurrence and toxicity to *Daphnia magna*. *Environ. Toxicol. Chem.* 25, 265-271.
- Harman C., Reid M., Thomas K.V. (2011) In Situ Calibration of a Passive Sampling Device for Selected Illicit Drugs and Their Metabolites in Wastewater, And Subsequent Year-Long Assessment of Community Drug Usage. *Environ. Sci. Technol.*, 2011, 45 (13), pp 5676–5682
- He S., Dong D., Zhang X., Sun C., Wang C., Hua X., Zhang L., Guo Z. 2018. Occurrence and ecological risk assessment of 22 emerging contaminants in the Jilin Songhua River (Northeast China). *Environ. Sci. Poll. Res. Int.* 24003-24012.
- Hernandez-Padilla F., Margni M., Noyola A., Guereca-Hernandez L., Bulle C. 2017. Assessing wastewater treatment in Latin America and the Caribbean: Enhancing life cycle assessment interpretation by regionalization and impact assessment sensibility. *J. Clean. Prod.* 142, 2140-2153.
- Honjo A., Arimura R., Oliveira L., Pereira J., Rodriguez de Azevedo J. 2017. Occurrence of pharmaceutical products, female sex hormones and caffeine in a subtropical region in Brazil. *Clean soil air water* . 45, <https://doi-org.proxy.scd.u-psud.fr/10.1002/clen.201700334>.
- Hossain A., Nakamichi S., Tani K. 2018. Occurrence and ecological risk of pharmaceuticals in river surface water of Bangladesh *Environ. Res.* 165, 258-266.
- Huerta-Fontela M., Galceran M.T., Ventura F. 2011. Occurrence and removal of pharmaceuticals and hormones through drinking water treatment. *Water Res.* 45, 1432-1442.
- Ibe K., Sim W., Lee H., Oh J. 2018. Occurrence and distribution of carbamazepine, nicotine, estrogenic compounds, and their transformation products in wastewater from various treatment plants and the aquatic environment. *Sci. Tot. Env.* 640–641, 1015-1023.
- Jiménez J.J., Sánchez M.I., Muñoz B.E., Pardo R. 2017. Persistence of alprazolam in river water according to forced and non-forced degradation assays: adsorption to sediment and long-term degradation products. *Drug Test. Anal.* 9 (8), 1204-1213.
- Jodelet, D. (1984). Représentations sociales : phénomènes, concept et théorie. Dans S. Moscovici (Ed.), *Psychologie Sociale* (pp. 357-378). Paris : PUF.
- Jodelet, D., (1991). L'idéologie dans l'étude des Représentations Sociales. In V. Aesbischer, J.P. Deconchy, R. Lipiansky (Eds.). *Idéologies et représentations sociales*. Del Val : Fribourg.
- Jones O.A.H., Voulvoulis N., Lester J.N. 2001. Human Pharmaceuticals in the Aquatic Environment a Review. *Environ. Technol.* 22 (12), 1383-1394.
- Jones-Lepp T.L., Alvarez D.A., Petty J.D., Osemwengie L.I., Daughton C.G. 2001. Analytical chemistry research needs for mapping trends of pharmaceutical and personal care product pollution from personal use: some current research and future needs. US Environmental Protection Agency, Las Vegas, NV. (<http://www.epa.gov/nerlesd1/chemistry/ppcp/trends.htm>)
- Jones-Lepp T.L., Alvarez D.A., Petty J.D. Huckins J.N. (2004) Polar Organic Chemical Integrative Sampling and Liquid Chromatography – Electrospray / Ion-Trap Mass Spectrometry for Assessing Selected Prescription and Illicit Drugs in treated Sewage Effluents. *Arch. Environ. Contam. Toxicol.* 4, 427-439.
- Joule, R.V., Py, J., Bernard, B., (2004). Qui dit quoi, à qui, en lui faisant faire quoi ? Vers une communication engageante. In M. Bromberg, & A. Trognon (Eds.), *Psychologie sociale et communication* (pp. 205–218). Paris : Dunod.

- Kasprzyk-Hordern B., Dinsdale R.M., Guwy A.J. 2009. The removal of pharmaceuticals, personal care products, endocrine disruptors and illicit drugs during wastewater treatment and its impact on the quality of receiving waters. *Wat. Res.* 43 (2), 363-380.
- Keith T.L., Snyder S.A., Naylor C.G., Staples C.A., Summer C., Kannan K., Giesy J.P. 2001. Identification and quantitation of nonylphenol ethoxylates and nonylphenol in fish tissues from Michigan. *Environ. Sci. Technol.* 35, 10-13.
- Kim H., Lee I., Oh J. 2017. Human and veterinary pharmaceuticals in the marine environment including fish farms in Korea. *Sci. Tot. Env.* 579, 940-949.
- Kim J.-W., Jang, H.-S., Kim, J.-G., Ishibashi H., Hirano M., Nasu K., Ichikawa N., Takao Y., Shinohara, R., Arizono, K. 2009. Occurrence of Pharmaceutical and Personal Care Products (PPCPs) in Surface Water from Mankyung River, South Korea. *J. Health Sci.* 55 (2), 249-258.
- Kim S., Chu K.H., Al-Hamadani Y.A.J., Min Park C., Jang M., Kim D.-H., Yu M., Heo J., Yoon Y. 2018. Removal of contaminants of emerging concern by membranes in water and wastewater: A review. *Chem. Engin. J.* 335, 896-914.
- Kinani A., Karolak S., Hubert C., Devault D.A., Lévi Y., Nefau T., Sannier O. Estimation of the consumption of illicit drug uses in prisons and in the general population in France using wastewater analysis. Testing Waters 2 conference, October 2017, Lisbon.
- Kirla K.T., Groh K.J., Steuer A.E., Poetzsch M., Banote R.K., Stadnicka-Michalak J., Eggen R.I.L., Schirmer K., Kraemer T. Zebrafish Larvae Are Insensitive to Stimulation by Cocaine: Importance of Exposure Route and Toxicokinetics. *Toxicol. Sci.* 2016; 154 (1): 183-193.
- Kolpin D.W., Furlong E.T., Meyer M.T., Thurman E.M., Zaugg S.D., Barber L.B., Buxton H.T. 2002. Pharmaceuticals, Hormones, and Other Organic Wastewater Contaminants in U.S. Streams, 1999-2000: A National Reconnaissance. *Environ. Sci. Technol.* 36 (6), 1202-1211.
- Koné M., Cologgi D.L., Lu W., Smith D.W., Ulrich A.C. 2013. Pharmaceuticals in Canadian sewage treatment plant effluents and surface waters: occurrence and environmental risk assessment. *Environ. Technol. Rev.* 2 (1), 17-27.
- K'oreje K.O., Okoth M., Van Langenhove H., Demeestere K. 2020. Occurrence and treatment of contaminants of emerging concern in the African aquatic environment: Literature review and a look ahead. *J. Environ. Manag.* 254, 109752.
- Kosma C.I., Lambropoulou D.A., Albanis T.A. 2010. Occurrence and removal of PPCPs in municipal and hospital wastewaters in Greece. *J. Haz. Mat.* 179 (1-3), 804-817.
- Kristofco L.A., Brooks B.W. 2017. Global scanning of antihistamines in the environment: Analysis of occurrence and hazards in aquatic systems. *Sci. Tot. Env.* 592, 477-487.
- Krzeminski P., Tomei M.C., Karaolia P, Langenhoff A., Almeida C.M.R., Felis E., Gritten F., Andersen H.R., Fernandes T., Manaia C.M., Rizzo L., Fatta-Kassinos D. 2019. Performance of secondary wastewater treatment methods for the removal of contaminants of emerging concern implicated in crop uptake and antibiotic resistance spread: A review. *Sci. Tot. Env.* 648, 1052-1081.
- Kummerer K., Al-Ahmad A. 1997. Biodegradability of the anti-tumor agents 5-fluorouracil, cytarabine, and gemcitabine: impact of the chemical structure and synergistic toxicity with hospital effluent. *Acta Hydrochim. Hydrobiol.* 25 (4), 166-172.
- Kummerer K., Steger-Hartmann T., Meyer M. 1997. Biodegradability of the anti-tumour agent ifosfamide and its occurrence in hospital effluents and communal sewage. *Wat. Res.* 31 (11), 2705-2710.
- Kummerer K., Erbe T., Gartiser S., Brinker L. 1998. AOX-emissions from hospital into municipal wastewater. *Chemosphere* 36 (11), 2437-2445.
- Kummerer K., Helmers E., Hubner P., Mascart G., Milandri M., Reinthaler F., Zwakenberg M. 1999. European hospitals as a source for platinum in the environment in comparison with other sources. *Sci. Tot. Env.* 225, 155-165.
- Kummerer K. 2001. Drugs in the environment: emission of drugs, diagnostic aids and disinfectants into wastewater by hospital in relation to other sources – a review. *Chemosphere* 45, 957-969
- Labadie P., Budzinski H. 2005. Determination of Steroidal Hormone Profiles along the Jalle d'Eysines River (near Bordeaux, France) *Environ. Sci. Technol.* 39 (14), 5113-5120.

- Lai W.W., Lin Y., Wang Y., Guo Y.L., Lin A.Y. 2018. Occurrence of Emerging Contaminants in Aquaculture Waters: Cross-Contamination between Aquaculture Systems and Surrounding Waters. *Wat., Air, Soil Poll.* 229 (8), 249.
- Larsen, T.A., Lienert, J., Joss, A., Siegrist, H. 2004. How to avoid pharmaceuticals in the aquatic environment. *J. Biotechnol.* 113 (1–3), 295-304.
- Lenz K., Mahnik S.N., Weissenbacher N., Mader R.M., Krenn P., Hann S., Koellensperger G., Uhl M., Knasmüller S., Ferk F., Bursch W., Fuerhacker M. 2007. Monitoring, removal and risk assessment of cytostatic drugs in hospital wastewater. *Wat. Sci. Technol.* 56 (12), 141-149.
- Lenz K., Koellensperger G., Hann S., Weissenbacher N., Mahnik S.N., Fuerhacker M. 2007. Fate of cancerostatic compounds in biological wastewater treatment of hospital effluents. *Chemosphere* 69, 1765-1774.
- Lin A.-Y.C., Tsai Y.-T. 2009. Occurrence of pharmaceuticals in Taiwan's surface waters: Impact of waste streams from hospital and pharmaceutical production facilities *Sci. Tot. Env.* 407 (12), 3793-3802.
- Lin H., Chen L., Li H., Luo Z., Lu J., Yang Z. 2018a. Pharmaceutically active compounds in the Xiangjiang River, China: distribution pattern, source apportionment, and risk assessment. *Sci. Tot. Env.* 636, 975-984.
- Lin H., Li H., Chen L., Li L., Yin L., Lee H., Yang Z. 2018b. Mass loading and emission of thirty-seven pharmaceuticals in a typical municipal wastewater treatment plant in Hunan Province, Southern China. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 147, 530-536.
- Lindim C., de Zwart D., Cousins I.T., Kutsarova S., Kühne R., Schüürmann G. 2016. Exposure and ecotoxicological risk assessment of mixtures of top prescribed pharmaceuticals in Swedish freshwaters. *Chemosphere* 220, 344-352.
- Lindim C., van Gils J., Georgieva D., Mekenyan O., Cousins I.T. 2016. Evaluation of human pharmaceutical emissions and concentrations in Swedish river basins. *Sci. Total Environ.* 572, 508-519.
- López-Pacheco, I.Y., Silva-Núñez, A., Salinas-Salazar, C., Arévalo-Gallegos A., Lizarazo-Holguin L.A., Barceló D. Iqbal H.M.N., Parra-Saldívar R. 2019. Anthropogenic contaminants of high concern: Existence in water resources and their adverse effects. *Sci. Tot. Env.* 690, 1068-1088.
- Luo Y., Guo W., Ngo H.H., Nghiem L.D., Hai F.I., Zhang J., Liang S., Wang X.C. 2014. A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Sci. Tot. Env.* 473-474, 619-641.
- Lv, M., Sun, Q., Hu, A., Hou L., Li J., Cai, X., Yu, C.-P. 2014. Pharmaceuticals and personal care products in a mesoscale subtropical watershed and their application as sewage markers. *J. Haz. Mater.* 280, 696-705.
- Mackuřák T., Āernanský S., Fehér M., Birořová L., Gál M. 2019. Pharmaceuticals, drugs, and resistant microorganisms — environmental impact on population health. *Current Opin. Environ. Sci. Health* 9, 40-48.
- Mackuřák, T., Medvecká, E., Vojs Staňová, A., Brandeburová P., Grabic R., Golovko O., Marton M., Bodík I., Medvedová A., Gál M, Planý M., Kromka A., řpalková V., řkulcová A., Horáková, I., Vojs, M. 2020. Boron doped diamond electrode – The elimination of psychoactive drugs and resistant bacteria from wastewater. *Vacuum* 171,108957
- Mahnik S., Lenz K., Weissenbacher N., Mader R., Fuerhacker M. 2007. Fate of 5-fluorouracil, doxorubicin, epirubicin, and daunorubicin in hospital wastewater and their elimination by activated sludge and treatment in a membrane-bio-reactor system. *Chemosphere* 66, 30-37.
- Mailler R., Gasperi J., Coquet, Y., Buleté A., Vulliet E., Deshayes S., Zedek S., Mirande-Bret C., Eudes V., Bressy A., Caupos E., Moillon R., Chebbo G., Rocher V. 2016. Removal of a wide range of emerging pollutants from wastewater treatment plant discharges by micro-grain activated carbon in fluidized bed as tertiary treatment at large pilot scale. *Sci. Tot. Envir.* 542, 983-996.
- Majumder A., Gupta B., Gupta, A.K. 2019. Pharmaceutically active compounds in aqueous environment: A status, toxicity and insights of remediation. *Environ. Res.* 176, 108542.
- Mandarić L., Diamantini E., Stella E., Cano-Paoli K., Valle-Sistac J., Molins-Delgado D., Bellin A., Chiogna G., Majone B., Diaz-Cruz M.S., Sabater S., Barcelo D., Petrovic M. Contamination sources and distribution patterns of pharmaceuticals and personal care products in Alpine rivers strongly affected by tourism. *Sci. Tot. Env.* 2017; 590–591: 484-494.
- Marques CR, Abrantes N, Goncalves F. 2004. Life-history traits of standard and autochthonous cladocerans: I. Acute and chronic effects of acetylsalicylic acid. *Environ. Toxicol.* 19, 518-526.

- Marsik P., Rezek J., Zidkov M., Kramulov B., Tauchen J., Vanek T. 2017. Non-steroidal Anti-inflammatory Drugs in the Watercourses of Elbe Basin in Czech Republic. *Chemosphere* 171, 97-105.
- Matongo S., Birungi G., Moodley B., Ndungu P. 2015. Pharmaceutical residues in water and sediment of msunduzi river, KwaZulu-Natal, South Africa. *Chemosphere* 134: 133-140.
- Meffe R., de Bustamante I. 2014. Emerging organic contaminants in surface water and groundwater: A first overview of the situation in Italy. *Sci. Tot. Env.* 481, 280-295.
- Mendoza A., Rodríguez-Gil J.L., González-Alonso, S., Mastroianni N., López de Alda M., Barceló, D., Valcárcel, Y. 2014. Drugs of abuse and benzodiazepines in the Madrid Region (Central Spain): Seasonal variation in river waters, occurrence in tap water and potential environmental and human risk. *Env. Intern.* 70, 76-87.
- Mendoza A., López de Alda M., González-Alonso S., Mastroianni N, Barceló D., Valcárcel Y. 2014. Occurrence of drugs of abuse and benzodiazepines in river waters from the Madrid Region (Central Spain) *Chemosphere* 95, 247-255.
- Miège C., Choubert J.M., Ribeiro L., Eusèbe M., Coquery M. 2009. Fate of pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment plants - Conception of a database and first results. *Environ. Poll.* 157 (5), 1721-1726.
- Mlunguza N.Y., Ncube S., Nokwethemba Mahlambi P., Chimuka L., Madikizela L.M. 2019. Adsorbents and removal strategies of non-steroidal anti-inflammatory drugs from contaminated water bodies. *J. Environ. Chem. Engin.* 7 (3), 103142.
- Moliner, P. (1995). A two-dimensional model of social representations. *European Journal of Social Psychology*, 25(1), 27-40.
- Moliner, P. (1996). *Images et représentations sociales*. Grenoble : PUG.
- Moliner, P. (2000). De la norme d'intériorité à la représentation des relations sociales. *Revue Internationale de Psychologie Sociale*, 2, 7-32.
- Moliner, P., Rateau, P., Cohen-Scali, V. (2002). *Les représentations sociales. Pratique des études de terrain*. Rennes : PUR.
- Moscovici, S. (1961). *La psychanalyse, son image, son public*. Paris : PUF.
- Mutiyar P.K., Kumar S., Kumar A. 2018. Fate of pharmaceutical active compounds (PhACs) from River Yamuna, India: An ecotoxicological risk assessment approach. *Ecotoxicol. Environ. Saf.*, 150, 297-304.
- Myers N., Mittermeier R.A., Mittermeier C.G., da Fonseca G.A.B., Kent J. 2000. Biodiversity hotspots for conservation priorities. *Nature* 403, 853–858.
- Nannou C., Ofrydopoulou A., Evgenidou E., Heath E., Lambropoulou D. 2020. Antiviral drugs in aquatic environment and wastewater treatment plants: A review on occurrence, fate, removal and ecotoxicity. *Sci. Tot. Env.* 699, 134322.
- Nassar R., Trivella A., Mokh S., Al-Iskandarani M., Budzinski H., Mazellier P. (2017) Photodegradation of sulfamethazine, sulfamethoxypyridazine, amitriptyline, and clomipramine drugs in aqueous media. *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 336, 176-182.
- Nassar R., Rifai A., Trivella A., Mazellier P., Mokh S. Al-Iskandarani M. 2018. Aqueous chlorination of sulfamethazine and sulfamethoxypyridazine: Kinetics and transformation products identification, *J. Mass Spectrom.*, 53, 614-623.
- Nefau T. 2014. Analyse des résidus de drogues illicites dans les eaux de stations d'épuration : rendements d'élimination et évaluation de l'impact écotoxique. Contribution à l'estimation des consommations. Ph.D Thesis. Université Paris-Sud 264 pp.
- Nguyen P.K., Thai S.L., Kaserzon J.W.O., Brien G., Eaglesham F., Mueller J.F. 2018. Assessment of drugs and personal care products biomarkers in the influent and effluent of two wastewater treatment plants in Ho Chi Minh. *H.T. Sci. Tot. Env.* 631–632, 469-475.
- Nossin, E., Exbrayat, A. (2010). *Plantes magiques de la Martinique et des petites Antilles*, documentaire, Editions Exbrayat. Rennes.
- Nuel M., Laurent J., Bois P., Heintz D., Wanko A. 2018. Seasonal and ageing effect on the behaviour of 86 drugs in a full-scale surface treatment wetland: removal efficiencies and distribution in plants and sediments. *Sci. Total Env.* 615, 1099-1109.

- Ohlsen K., Ternes T., Werner G., Wallner U., Löffler D., Ziebuhr W., Witte W., Hacker J. 2003. Impact of antibiotics on conjugational resistance gene transfer in *Staphylococcus aureus* in sewage. *Environ. Microbiol.* 5 (8), 711-716.
- Orias F., Perrodin, Y. 2013. Characterisation of the ecotoxicity of hospital effluents: A review. *Sci. Tot. Env.* 454-455, 250-276.
- Orias F., Perrodin, Y. 2014. Pharmaceuticals in hospital wastewater: Their ecotoxicity and contribution to the environmental hazard of the effluent. *Chemosphere* 115 (1), 31-39
- Ort C., van Nuijs A.L.N., Berset J.-D., Bijlsma L., Castiglioni S., Covaci A., de Voogt P., Emke E. *et al.* 2014. Spatial differences and temporal changes in illicit drug use in Europe quantified by wastewater analysis. *Addiction* 109 (8), 1338-1352.
- Paíga P., Santos L.H.M.L.M., Ramos S., Jorge S., Silva J.G., Delerue-Matos C. 2016. Presence of pharmaceuticals in the Lis river (Portugal): sources, fate and seasonal variation. *Sci. Tot. Env.* 573, 164-177.
- Pal R., Megharaj M., Kirkbride K.P., Naidu R. 2013. Illicit drugs and the environment - A review. *Sci. Tot. Env.* 463-464, 1079-1092.
- Pauwels B., Noppe H., De Brabander H., Verstraete W. 2008. Comparison of steroid hormone concentration in domestic and hospital wastewater treatment plants. *J. Environ. Eng.* 134 (11), 933-936.
- Peck A.M., Kucklick J.R., Schantz M.M. 2007. Synthetic musk fragrances in environmental standard reference materials. *Anal. Bioanal. Chem.* 387: 2381–2388.
- Peng Y., Fang W., Krauss M., Brack W., Wang Z., Li F., Zhang X. 2018. Screening hundreds of emerging organic pollutants (EOPs) in surface water from the Yangtze River Delta (YRD): occurrence, distribution, ecological risk. *Environ. Pollut.* 241, 484-493.
- Pereira A.M.P.T., Silva L.J.G., Lino C.M., Meisel L.M., Pena A. 2016. Assessing environmental risk of pharmaceuticals in Portugal: An approach for the selection of the Portuguese monitoring stations in line with Directive 2013/39/EU. *Chemosphere* 144, 2507-2515.
- Pereira A.M.P.T., Silva L.J.G., Laranjeiro C.S.M., Meisel L.M., Lino C.M., Pena A. 2017. Human pharmaceuticals in Portuguese rivers: the impact of water scarcity in the environmental risk. *Sci. Tot. Env.* 609, 1182-1191.
- Piaser, A. (1999) Représentation professionnelle, particularité selon le statut : enseignant & inspecteur. Thèse de doctorat, Université le Mirail, Toulouse.
- Pivetta R.C., Rodrigues-Silva C., Ribeiro A.R., Rath S. 2020. Tracking the occurrence of psychotropic pharmaceuticals in Brazilian wastewater treatment plants and surface water, with assessment of environmental risks. *Sci. Tot. Env.* 727, 138661.
- Postigo C., MJ López de Alda, D Barceló. 2010. Drugs of abuse and their metabolites in the Ebro River basin: Occurrence in sewage and surface water, sewage treatment plants removal efficiency, and collective drug usage estimation. *Env. Intern.* 36 (1), 75-84.
- Postigo, C., de Alda, M.L., Barceló, D. 2011. Evaluation of drugs of abuse use and trends in a prison through wastewater analysis. *Env. Intern.* 37(1), 49-55.
- Praveena S.M., Shaifuddin S.N.M., Sukiman S., Nasir F.A.M., Hanafi Z., Kamarudin N., Ismail T.H.T., Aris A.Z., 2018. Pharmaceuticals residues in selected tropical surface water bodies from Selangor (Malaysia): occurrence and potential risk assessments. *Sci. Tot. Env.* 642, 230-240.
- Quesada H.B., Baptista A.T.A., Cusioli L.F., Seibert D., de Oliveira Bezerra C., Bergamasco R. 2019. Surface water pollution by pharmaceuticals and an alternative of removal by low-cost adsorbents: A review. *Chemosphere* 222, 766-780.
- Racamonde I., Rodil R., Quintana J.B., Villaverde-de-Sáa E., Cela R. 2014. Determination of benzodiazepines, related pharmaceuticals and metabolites in water by solid-phase extraction and liquid-chromatography-tandem mass spectrometry. *J. Chromat. A* 1352, 69-79.
- Ramirez A.J., Brain R.A., Usenko S., Mottaleb M.A., O'Donnell J.G., Stahl L.L., Wathen J.B., Snyder B.D., Pitt J.L., Perez-Hurtado P., Dobbins L.L., Brooks B.W., Chambliss C.K. 2010. Occurrence of pharmaceuticals and personal care products in fish: Results of a national pilot study in the United States. *Environ. Toxicol. Chem.* 28, 2587-2597.
- Rehrl A.-L., Golovko O., Ahrens L., Köhler S. 2020. Spatial and seasonal trends of organic micropollutants in Sweden's most important drinking water reservoir. *Chemosphere* 249, 126168.

- Ribeiro de Sousa D., Mozeto A., Lajarim R., Fadini P. 2018. Spatio-Temporal Evaluation of Emerging Contaminants and their Partitioning Along a Brazilian Watershed. *Environ. Sci. Poll. Res.* 25(5), 4607-4620.
- Richardson M.L., Bowron J.M. 1985. The fate of pharmaceutical chemicals in the aquatic environment. *J. Pharm. Pharmacol.* 37 (1), 1-12.
- Rieckermann J., Terzic S., van Nuijs A.L.N., de Voogt P. 2012. Comparing illicit drug use in 19 European cities through sewage analysis. *Sci. Tot. Env.* 432, 432-439.
- Riva F., Castiglioni S., Fattore E., Manenti A., Davoli E., Zuccato E. 2018. Monitoring emerging contaminants in the drinking water of Milan and assessment of the human risk. *Int. J. Hyg. Environ. Health* 221: 451-457.
- Rivera-Jaimes J.A., Postigo C., Melgoza-Alemán R.M., Aceña J., Barceló D., López de Alda M. 2018. Study of pharmaceuticals in surface and wastewater from Cuernavaca, Morelos, Mexico: occurrence and environmental risk assessment. *Sci. Tot. Env.* 613–614, 1263-1274.
- Sakhamuri S., Cummings S. 2019. Increasing trans-Atlantic intrusion of Sahara dust: a cause of concern? *Lancet Planet. Health* 3 (6), 242-243.
- Santos L.H., Gros M., Rodriguez-Mozaz S., Delerue-Matos C., Pena A., Barceló D., Montenegro M.C. 2013. Contribution of hospital effluents to the load of pharmaceuticals in urban wastewaters: identification of ecologically relevant pharmaceuticals. *Sci. Tot. Env.* 461–462, 302-316.
- Seifrtova M., Pena A., Lino C., Solich P. 2008. Determination of fluoroquinolone antibiotics in hospital and municipal wastewaters in Coimbra by liquid chromatography with a monolithic column and fluorescence detection. *Anal. Bioanal. Chem.* 391, 799-805.
- Sim W.J., Kim H.Y., Choi S.D., Kwon J.H., Oh J.E. 2013. Evaluation of pharmaceuticals and personal care products with emphasis on anthelmintics in human sanitary waste, sewage, hospital wastewater, livestock wastewater and receiving water. *J. Hazard. Mater.* 248–249, 219-227.
- Sim W.J., Lee J.W., Lee E.S., Shin S.K., Hwang S.R., Oh J.E. 2011. Occurrence and distribution of pharmaceuticals in wastewater from households, livestock farms, hospitals and pharmaceutical manufactures. *Chemosphere* 82, 179-186.
- Snyder S.A., Westerhoff P., Yoon Y., Sedlak D.L. 2003. Pharmaceuticals, Personal Care Products, and Endocrine Disruptors in Water: Implications for the Water Industry. *Environ. Engin. Sci.* 20 (5), 449-469.
- Souchet, L., Girandola, F., Kac-Dalva, D. (2007). Le double-pied-dans-laporte et les représentations sociales au service des économies d'énergie. 8<sup>e</sup> colloque international de l'Adrips. Aix-en-Provence, Juin.
- Soulier C., Gabet V., Lardy S., Lemenach K., Pardon P., Esperanza M., Miège C., Choubert J.-M., Martin S., Bruchet A., Coquery M., Budzinski H. 2011. Zoom sur les substances pharmaceutiques : présence, partition, devenir en station d'épuration. *TSM* 1(2), 63-77.
- Subedi B., Lee S., Moon H.-B., Kannan K. 2013. Psychoactive pharmaceuticals in sludge and their emission from wastewater treatment facilities in Korea. *Environ. Sci. Technol.* 47 (23), 13321-13329.
- Sui Q., Zhao W., Cao X., Lu S., Qiu Z., Gu X. 2016. Pharmaceuticals and personal care products in the leachates from a typical landfill reservoir of municipal solid waste in Shanghai, China: occurrence and removal by a full-scale membrane bioreactor. *J. Haz. Mater.* 323 (A), 99-108.
- Stangroom S.J., Collins C.D., Lester J.N. 1998. Sources of Organic Micropollutants to Lowland Rivers. *Environ. Technol.* 19 (7), 643-666.
- Stanley J.K., Ramirez A.J., Chambliss K., Brooks B.W. 2007. Enantiospecific sublethal effects of the antidepressant fluoxetine to a model aquatic vertebrate and invertebrate. *Chemosphere* 69, 9-16.
- Sousa J.C.G., Ribeiro A.R., Barbosa M.O., Pereira M.F.R., Silva A.M.T. 2018. A review on environmental monitoring of water organic pollutants identified by EU guidelines. *J. Haz. Mater.* 344, 146-162.
- Suarez S., Lema J., Omil F. 2009. Pre-treatment of hospital wastewater by coagulation–flocculation and flotation. *Bioresour. Technol.*, 100, 2138-2146.
- Tapie N., Devier M.H., Soulier C., Creusot N., Le Menach K., Aït-Aïssa S., Vrana B., Budzinski H (2011). Passive samplers for chemical substance monitoring and associated toxicity assessment in water. *Water Sci. Technol.*, 63, 2418-2426.
- Thomas K., Dye C., Schlabach M., Langford K.H. 2007. Source to sink tracking of selected human pharmaceuticals from two Oslo city hospital and a wastewater treatment works. *J. Environ. Monit.* 9, 1410-1418.

- Thomas K.V., Bijlsma L., Castiglioni S., Covaci A., Emke E., Grabic R., Hernandez F., Karolak S., Kasprzyk-Hordern B., Lindberg R.H., Lopez de Alda M., Meierjohann A., Ort C., Pico Y., Quintana J.B., Reid M., Rieckermann J., Terzic S., van Nuijs A.L.N., de Voogt P. 2012. Comparing Illicit Drug Use in 19 European Cities Through Sewage Analysis. *Sci. Tot. Env.*, 432, 432-439.
- Tixier C., Singer H.P., Oellers S., Müller S.R. 2003. Occurrence and fate of carbamazepine, clofibrac acid, diclofenac, ibuprofen, ketoprofen, and naproxen in surface waters. *Environ. Sci. Technol.* 37(6), 1061-1068.
- van der Aa N.G.F.M. 2011. Assessment of potential risks of 11 pharmaceuticals for the environment. Using environmental information from public databases. RIVM Letter Report 601711003/2011 <https://www.rivm.nl/bibliotheek/rapporten/601711003.pdf>
- van Nuijs A.L.N., Pecceu B., Theunis L., Dubois N., Charlier C., Jorens P.G., Bervoets L., Blust R., Neels H., Covaci A. 2009. Spatial and temporal variations in the occurrence of cocaine and benzoylecgonine in waste- and surface water from Belgium and removal during wastewater treatment. *Wat. Res.* 43, 1341-1349.
- van Wel J.H.P., Kinyua J., van Nuijs A.L.N., Salvatore S., Bramness J.G., Covaci A., Van Hal G. 2016. A comparison between wastewater-based drug data and an illicit drug use survey in a selected community. *Intern. J. Drug Pol.* 34, 20-26.
- Verlicchi P., Galletti A., Masotti L. Caratterizzazione e trattabilità di reflui ospedalieri: indagine sperimentale (con sistemi MBR) presso un ospedale dell'area ferrarese. 2008. In: Proc. SIDISA Conference Firenze.
- Verlicchi P., Al Aukidy M., Zambello E. 2012. Occurrence of pharmaceutical compounds in urban wastewater: Removal, mass load and environmental risk after a secondary treatment-A review. *Sci. Tot. Env.* 429, 123-155.
- Villarin M.C., Merel S. 2020. Paradigm shifts and current challenges in wastewater management *J. Haz. Mat.*, 390, 122139.
- Vrana B., Allan I.J., Greenwood R., Mills G.A., Dominiak E., Svensson K., Knutsson J., Morrison G. (2005). Passive sampling techniques for monitoring pollutants in water. *Trends Anal. Chem.*, 24(10), 845-868.
- Voloshenko-Rossin A., Gasser G., Cohen K., Gun J., Cumbal-Flores L., Parra-Morales W., Sarabia F., Ojeda F., Lev O. 2015. Emerging pollutants in the Esmeraldas watershed in Ecuador: discharge and attenuation of emerging organic pollutants along the San Pedro–Guayllabamba–Esmeraldas rivers. *Environ. Sci.: Proc. Imp.* 17, 41-53.
- Vystavna Y., Huneau F., Grynenko V., Vergels Y., Celle-Jeanton H., Tapie N., Budzinski H., Le Coustumer P. 2012. Pharmaceuticals in rivers of two regions with contrasted socio-economic conditions: Occurrence, accumulation, and comparison for Ukraine and France. *Wat., Air, Soil Poll.* 223 (5), 2111-2124.
- Wang Y., Li Y., Hu A., Rashid A., Ashfaq M., Wang Y. 2018. Monitoring, mass balance and fate of pharmaceuticals and personal care products in seven wastewater treatment plants in Xiamen City, China *J. Hazard. Mater.* 354, 81-90.
- Wahlberg C., Björlenius B., Paxéus N. 2011. Fluxes of 13 selected pharmaceuticals in the water cycle of Stockholm, Sweden. *Wat. Sci. Technol.* 63(8), 1772-1780.
- Webb, T.L., Sheeran, P. (2006). Does changing behavioral intentions engender behavior change? A meta-analysis of the experimental evidence. *Psychological Bulletin*, 132, 249–268.
- Weiss, K., Girandola, F., Colbeau-Justin, L. (2011). Les comportements de protection face au risque naturel : de la résistance à l'engagement. *Pratiques psychologiques*, 17(3), 251-262.
- Weissbrodt D., Mcardell C., Kovalova L., Hollender J., Siegrist H., 2008. Hospital Wastewater: mass flow analysis of pharmaceuticals and disinfectants. In: Proc. LET Conference Zurich CH.
- Wu M., Xiang J., Chen F., Fu C., Xu G. 2017. Occurrence and Risk Assessment of Antidepressants in Huangpu River of Shanghai, China *Environ. Sci. Poll. Res.* 24 (25), 20291-20299.
- Wu M., Xiang J., Que C., Chen F., Xu G. 2015. Occurrence and fate of psychiatric pharmaceuticals in the urban water system of Shanghai, China. *Chemosphere* 138, 486-493.
- Xiang J., Wu M., Lei J., Fu C., Gu J., Xu G. 2018. The fate and risk assessment of psychiatric pharmaceuticals from psychiatric hospital effluent. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 150, 289-296.
- Yao B., Yan S., Lian L., Yang X., Wan C., Dong H., Song W. 2018. Occurrence and indicators of pharmaceuticals in Chinese streams: a nationwide study *Environ. Poll.* 236, 889-898.
- Yargeau V., Taylor B., Li H., Rodayan A., Metcalfe C.D. (2014) Analysis of drugs of abuse in wastewater from two Canadian cities. *Science of the total environment.* 487, 722-730.

- Yassine M., Rifai A., Doumyati S., Trivella A., Mazellier P., Budzinski H., Al Iskandarani M. 2017a. Oxidation of danofloxacin by free chlorine-kinetic study, structural identification of by-products by LC-MS/MS and potential toxicity of by-products using in silico test, *Environ. Sci. Poll. Res.*, 24, 7982-7993,
- Yassine M.H., Rifai A., Hoteit M., Mazellier P., Al iskandarani M. 2017b. Study of the degradation process of ofloxacin with free chlorine by using ESI-LCMSMS: Kinetic study, by-products formation pathways and fragmentation mechanisms, *Chemosphere*, 189, 46-54, doi: 10.1016/j.chemosphere.2017.08.171.
- Yassine M., Fuster L., Devier M.H., Geneste E., Pardon P., Grelard A., Dufourc E., Al Iskandarani M., Ait-Aissa S., Garric J., Budzinski H., Mazellier P., Trivella A.S. 2018. Photodegradation of novel oral anticoagulants under sunlight irradiation in aqueous matrices, *Chemosphere* 193, 329-336,
- Zbinden, A., Souchet, L., Girondola, F., & Bourg, G. (2011). Communication engageante et représentations sociales : une application en faveur de la protection de l'environnement et du recyclage. *Pratiques psychologiques*, 17(3), 285-299.
- Zhang Y., Wang B., Cagnetta G., Duan L., Yang J., Deng S., Huang J., Wang Y., Yu G. Typical pharmaceuticals in major WWTPs in Beijing, China: occurrence, load pattern and calculation reliability. *Wat. Res.* 2018. 140, 291-300.
- Zouhri, B., Felliot-Rippeault, M., Michel-Guillou, E. Weiss, K. (2015). Representations of pesticides and social practices : the case of french farmers. *Environmental Science and Pollution Research*. DOI 10.1007/s11356-015-5055-9.
- Zouhri, B., Levasseur, E., Weiss., K., Valette, A. (2016). Quand les agriculteurs et étudiants pensent l'objet pesticide : analyse d'un discours. *Pratiques Psychologiques*, 22, (3), 221-237



Contents lists available at ScienceDirect

Science of the Total Environment

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/scitotenv](http://www.elsevier.com/locate/scitotenv)

## Applying sewage epidemiology approach to estimate illicit drug consumption in a tropical context: Bias related to sewage temperature and pH



Damien A. Devault<sup>a,b,\*</sup>, Yves Lévi<sup>b</sup>, Sara Karolak<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Laboratoire Matériaux et Molécules en Milieu Agressif, UA UMR ECOFOG, DSI, Campus Universitaire de Schoelcher, 97275 Schoelcher, France

<sup>b</sup> Public Health and Environment Laboratory, UMR 8079 Ecologie Systématique Evolution, Univ. Paris-Sud, CNRS, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, 91400 Orsay, France

### HIGHLIGHTS

- The wastewater in Martinique are acidic (pH 5–6.5) and warm (about 31 °C).
- Stability of six illicit drug residues and metabolites were studied.
- Cocaine and cannabis consumptions are underestimated in realistic conditions.

### GRAPHICAL ABSTRACT



### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 24 November 2016

Received in revised form 15 January 2017

Accepted 18 January 2017

Available online xxxx

Editor: Jay Gan

#### Keywords:

Illicit drugs

Cannabis

Half-life

Wastewater

Degradation

H<sub>2</sub>S

### ABSTRACT

Illicit drug consumption can be estimated from drug target residue (DTR) in wastewater, with the reliability of results being partly linked to DTR stability in the sewage network. However, wastewater temperature and pH drive the stability of molecules and, in this context, tropical conditions must be studied to specify the impact of residence time in the sewage network on DTR degradation. Warmth enhances biotic and abiotic processes such as degradation, leading to a decrease in oxygen content, and consequently, early diagenesis conditions in wastewater.

In this study, we conduct laboratory studies under acidic pH and high temperature (30 °C) conditions to determine the degradation half-lives of cocaine (COC), tetrahydrocannabinol, and heroine targets, allowing COC/benzoylcegonine (BZE) ratio variations to be predicted in sewage networks. A rapid COC degradation is observed, as already reported in the literature but without a short-term significant difference between 20 °C and 30 °C. Acidic pH seems to prevent degradation. Thus, theoretically, the use of COC as DTR is only reliable in acidic conditions, with the decrease in COC concentration being 6% at 8 h, but over 40% in other conditions. By contrast, the use of BZE as DTR to estimate COC consumption, which is performed in practice, can be undertaken with the same back-calculation equation as used in temperate countries. However, 11-nor- $\Delta^9$ -carboxytetrahydrocannabinol stability is more influenced by high temperature: concentration levels after 24 h are 20% lower at 30 °C than at 20 °C, corresponding to a 20% and 40% decrease, respectively. Based on a mean residence time of 8 h, underestimated cannabis consumption is close to 15% in tropical contexts, which is double that of temperate areas.

© 2017 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

Sewage epidemiology is an analytical approach to estimate the drug consumption in a population based on a back-calculation procedure.

\* Corresponding author at: Laboratoire Matériaux et Molécules en Milieu Agressif, UA - UMR ECOFOG, DSI, Campus Universitaire de Schoelcher, 97275 Schoelcher, France.  
E-mail address: [damien.devault@martinique.univ-ag.fr](mailto:damien.devault@martinique.univ-ag.fr) (D.A. Devault).

This method was initially proposed by Daughton (2001) and applied for the first time in Italy by Zuccato et al. (2005). It is now recommended by the European Monitoring Centre for Drugs and Drug Addiction (EMCDDA, 2016). Analysis is conducted directly in wastewater for the drug and/or metabolites as drug target residues (DTR). Calculations are based on the following equation:

$$Q = Q_{\text{day}}/U_{\text{ex}} \times M_{\text{ratio}} \times 1000/N_{\text{inh}} \quad (1)$$

where  $Q_{\text{day}}$  is the daily load of DTR (i.e., the molecule selected for its presence in sewage with a well-known excretion rate),  $U_{\text{ex}}$  is the excretion percentage for DTR,  $M_{\text{ratio}}$  is the parent drug/DTR molar ratio (if metabolite), and  $N_{\text{inh}}$  is the number of inhabitants in the sewage catchment area.

Drug metabolism, DTR in sewage, and population size are pivotal data for the back-calculation. Field studies (Pal et al., 2013; Van Nuijs et al., 2011, 2012) improved the method by ensuring the absence of effect from wastewater residence duration in the sewage network as well as from pH and temperature, but the scope observed corresponds mainly to Western European cities and practices in temperate climates.

Since 2013, our team has applied sewage epidemiology in Martinique Island (French West Indies) in a protocol framed by EMCDDA, following the European e-COST group "SCORE" works that develop and expand an existing pan-European interdisciplinary network (Devault et al., 2014;

Devault et al., 2016). Numerous questions have been raised about the application of sewage epidemiology in this local context, especially in relation to the physical characteristics of the sewage network and the chemical characteristics of the local wastewater. Indeed, sewer losses reach 50% of the volume in the studied sewage. Sewer pipes age/degrade more rapidly than in temperate countries due to an acidic pH (between 5 and 6.5) and year-round high wastewater temperatures (26–31 °C). These conditions can modify the fate of DTR.

Temperature effect has already been explored in several studies (McCall et al., 2016). As an example, Castiglioni et al. (2016) synthesized results to highlight the weak stability of cocaine (COC) and 6-monoacetylmorphine (6-MAM) compared to benzoylecgonine (BZE) and 11-nor- $\Delta^9$ -carboxytetrahydrocannabinol (THC-COOH). Senta et al. (2014) estimate that only morphine-3- $\beta$ -D-glucuronide has significantly different degradation rates between winter (10 °C) and summer (20 °C) conditions, being 16% and 33%, respectively, after a retention time of 4 h in the sewage network. Van Nuijs et al. (2012) who studied nine illicit drugs or metabolites (COC, BZE, ecgonine methyl ester [EME], amphetamine, methylenedioxymethamphetamine, methamphetamine, methadone, metabolite 2-ethylidene-1,5-dimethyl-3,3-diphenylpyrrolidine, and 6-MAM) observed significant concentration decreases after 26 h at 20 °C, especially for COC (around 60% loss) and EME (around 40% loss). Devault et al. (2016) observed a 25% increase in COC degradation mass between 18 °C and 31 °C, mostly for filtered wastewater samples.

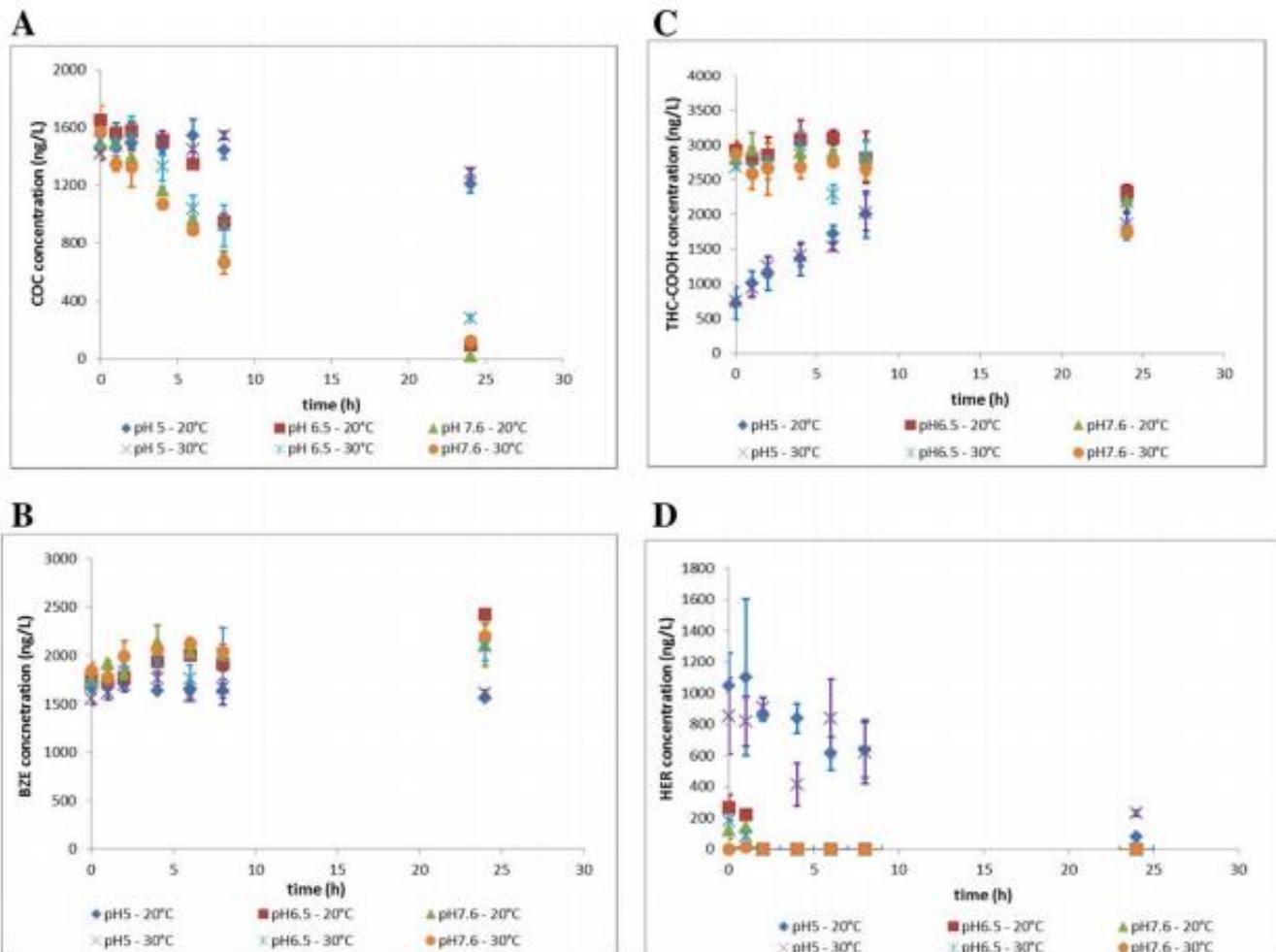


Fig. 1. Decreasing kinetics ( $h^{-1}$ ) of illicit drugs (ng/L) in wastewater for (●) pH 5, 20 °C; (■) pH 6.5, 20 °C; (▲) pH 7.6, 20 °C; (×) pH 5, 30 °C; (∗) pH 6.5, 30 °C; (◆) pH 7.6, 30 °C: (A) COC; (B) BZE; (C) THC-COOH; (D) HER; (E) 6-MAM; (F) MOR. Mean  $\pm$  standard deviation ( $n = 3$ ).

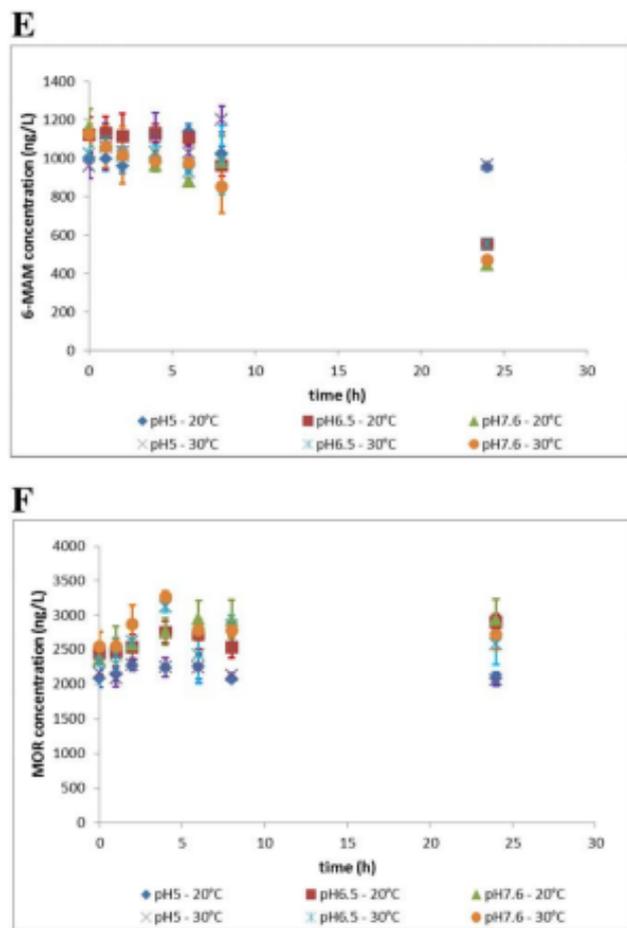


Fig. 1 (continued).

The physicochemical conditions of Martinique Island are consistent with tropical and sub-tropical low-land areas as well as the summer conditions in temperate countries (Wang & Li, 2015). The direct impact of temperature on degradation, biodegradation, adsorption, and flocculation has already been studied to define storage conditions before analysis (Van Nuijs et al., 2012; Bisceglia and Lippa, 2014; Senta et al., 2014). However, year-round sewage temperature in Martinique Island is around 26–31 °C, a condition rarely explored in previous studies: Devault et al. (2016) described a 25% higher degradation rate of COC residue content at 31 °C compared to 18 °C and observed that the degradation of COC residue content was surprisingly enhanced when wastewater was filtered before incubation. Sewage viscosity decreases with increased temperatures and improved sedimentation (Fitzpatrick et al., 2004). For slightly hydrophobic illicit drugs such as tetrahydrocannabinol and metabolites, adsorption to the particulate fraction could increase retention time because of suspended matter sedimentation and then promote their degradation before entering the wastewater treatment plant.

In most areas, sewage pH is known to be alkaline, mainly because of detergent release. However, a large amount of biodegradable organic matter, high temperatures, and slow flow speeds associated with oversized sewers can cause anaerobic conditions in wastewater and stimulate sulfate reduction in particular (Weng et al., 2015). This phenomenon in gravity sewage networks is well known in sedimentology as “early diagenesis.” Briefly, organic matter consumption by the aerobic metabolism of microorganisms will consume all water-dissolved oxygen (O<sub>2</sub>) content, while anaerobic microorganisms will continue to consume the available organic matter in the decreasing order of the

metabolism yield depending on the electron acceptors. Low speeds and high temperatures (i.e., low oxygen saturation concentration) promote such early diagenesis (Beurskens et al., 1994; Froelich et al., 1979; Hochard et al., 2010). This induces the acidification (Fig. 1S) and corrosiveness (Fig. 2S) of the aquatic environment as well as the production of toxic hydrogen sulfide gas (Lens et al., 1998). For example, in Martinique Island, the lifespan of sewer pipes is at least three times shorter than in temperate countries (Devault et al., 2011). Sulfate reduction is greater because of the high content of degradable organic matter, leading to an accrued dissolved O<sub>2</sub> consumption. With high temperatures, dissolved O<sub>2</sub> saturation is reduced (14 mg/L for 2 °C; <8 mg/L above 26 °C). Such conditions are similar to early diagenesis, which is supported by microorganisms (Devault et al., 2011). However, the pH value strictly limits the thermodynamic yield (Fig. 3S) by indirectly selecting the activity of specific bacteria and archaea (Beurskens et al., 1994; Burke et al., 2014; Devault et al., 2011; Froelich et al., 1979; Hochard et al., 2010; Philibert et al. 1998). Some authors have already studied the impact of pH on illicit drug stability (McCall et al., 2016), especially to define storage conditions before analysis: in wastewater, amphetamines and heroin (HER) are more stable at neutral pH (Van Nuijs et al., 2011, 2012), while COC is more stable at pH 2 (Gheorghie et al., 2008).

This paper aims to determine the combined effects of pH and temperature on the degradation of several DTR used to estimate illicit drug consumption based on wastewater analysis. Laboratory studies aimed to calculate the degradation constants and related half-lives of the molecules in order to compare the implementation of sewage epidemiology procedures in temperate and tropical contexts.

## 2. Material and methods

### 2.1. Chemicals and materials

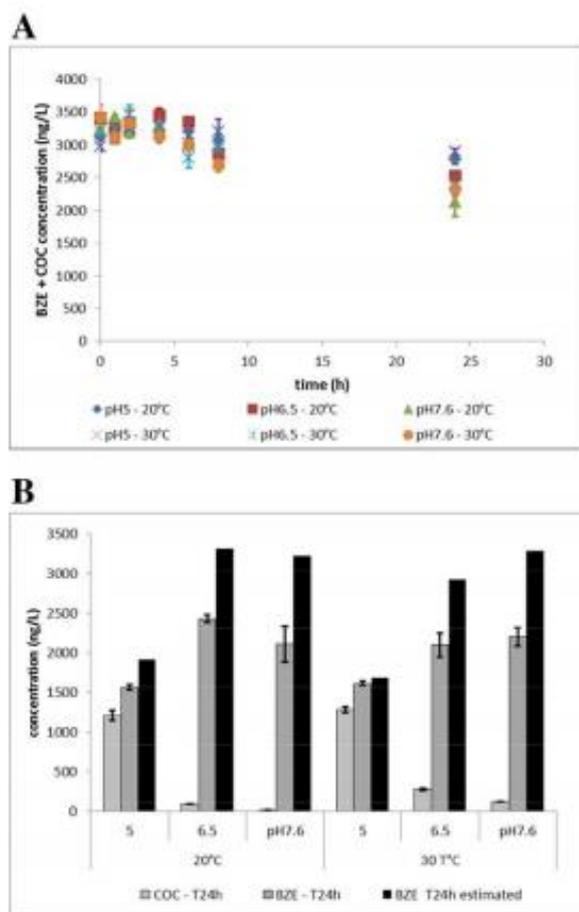
Standard solutions of cocaine (COC), benzoylecgonine (BZE), morphine (MOR), 6-monoacetylmorphine (6-MAM), heroin (HER), 11-nor- $\Delta^9$ -carboxytetrahydrocannabinol (THC-COOH), as well as COC-d3, BZE-d3, MOR-d6, 6-MAM-d3, HER-d9, and THC-COOH-d3, in either methanol or acetonitrile, were purchased from LGC Standards (Molsheim, France).

Methanol (MeOH) and acetonitrile (ACN) LC-MS grade (Chromasolv), formic acid (FA) (Normapur), ammonium formate (AF) (Normapur), and sulfuric acid 97.5% (JT Baker) were purchased from VWR (Fontenay-sous-Bois, France). Ultra-pure water was produced using the Milli-Q Plus water reverse osmosis purification system (Millipore SAS, Molsheim, France). pH measurements were taken on a Basic pH meter equipped with a pH/ATC electrode (Denver instrument).

Analyses were carried out with an EQUAN Max LC-MS system coupled with a triple quadrupole mass spectrometer Quantum Access Max equipped with Xcalibur software (ThermoFisher Scientific, Courtaboeuf, France). The on-line pre-concentration Gold aQ Hypersil column (20 × 2.1, 12  $\mu$ m) and analytical Gold Hypersil column (50 × 2.1, 1.9  $\mu$ m) were purchased from ThermoFisher Scientific.

### 2.2. Incubation experiments

Laboratory studies were conducted using raw urban wastewater, i.e., unfiltered and unsterilized, sampled at the intake of the Evry city wastewater treatment plant south of Paris, France. Temperature and pH conditions were driven in order to obtain three pH batch values of 5, 6.5, and the native value (pHi) (i.e., 7.6), each at 20 °C (room temperature) and 30 °C using a thermostat (BioConcept, Froilabo, Meyzieu, France). pH was adjusted with the progressive addition of 10-fold diluted 97.5% sulfuric acid directly in 5 L-jars, followed by vigorous shaking before pH measurement. Then, 80 mL of stored wastewater (pH adjusted or pHi) were filled in 150 mL glass bottles; each condition was triplicated. Each of the 18 bottles was then spiked with 1  $\mu$ g/L COC,



**Fig. 2.** (A) Variation of the sum of COC and BZE concentrations (ng/L) in wastewater at (♦) pH 5, 20 °C; (■) pH 6.5, 20 °C; (▲) pH 7.6, 20 °C; (×) pH 5, 30 °C; (◊) pH 6.5, 30 °C; (●) pH 7.6, 30 °C. (B) COC concentrations, BZE concentrations, and estimated sum of BZE and COC at 24 h. Mean ± standard deviation ( $n = 3$ ).

BZE, THC-COOH, HER, 6-MAM, and MOR, leading to concentrations between 1 and 3 µg/L according to the estimated in situ concentration of each molecule (Devault et al., 2014 and 2016). DTR analysis was conducted at the beginning of the kinetics to determine the exact DTR concentrations.

All batches were kept in the dark and shaken with a stir bar in order to maintain aerobic conditions.

Samples were taken after 0, 1, 2, 4, 6, 8, and 24 h of incubation time. pH was controlled at each sampling.

### 2.3. Analytical methods

All 5 mL samples were filtered using 1.0/0.45 µm Chromafil® GF/PET disposable syringe filters. Filtered samples were then half-diluted with ultra-pure water, spiked with 400 ng/L deuterated standards and stored at 4 °C before analysis.

Chromatographic separation was performed at a 0.6 mL/min flow rate using a separation gradient elution composed of solvents acetonitrile (A), ammonium formate buffer, 5 mmol/L, pH 4 (B), and ultra-pure water (C) with the following program: 0–2 min, 2% solvent A and 98% solvent B; 2–4 min, increase to 90% solvent A and 10% solvent B; 4–6.5 min, 90% solvent A and 10% solvent C; 6.5–7.5 min, 2% solvent A and 98% solvent B.

Before analytical separation, during the on-line concentration process, 1 mL diluted sample was injected and charged on the pre-concentration column at a 0.7 mL/min flow rate using an ultra-pure

water–acetonitrile (95–5 v/v) mobile phase. After 1.2 min, a change led to the elution from the pre-concentration column to the analytical column by the separation mobile phase.

Mass spectrometry was performed with electrospray ionization in positive and negative switching mode, with the following conditions being applied:

- For the positive mode (all compounds except THC-COOH): capillary voltage, 2.5 kV; source temperature, 300 °C; desolvation temperature, 300 °C; desolvation gas flow rate, 800 L/h.
- For the negative mode (THC-COOH and THC-COOH-d3): capillary voltage, –2.5 kV; source temperature, 300 °C; desolvation temperature, 300 °C; desolvation gas flow rate, 800 L/h.

Quantitative analyses were carried out in the selected multiple reaction monitoring mode in accordance with the European requirement 2002/657/CE for analytical procedures with two transitions for each compound. Calibration standards dissolved in ultra-pure water were prepared in the range 100–2000 ng/L for all compounds, corresponding to 200–4000 ng/L in the sample before preparation (Table 1), and then injected using the pre-concentration process as for samples.

### 2.4. Die-away curves

Kinetics was drawn and fitted by die-away curves assuming pseudo-first-order kinetics as follows (Senta et al., 2014):

$$C = C_0 \times e^{-kt} \quad (2)$$

where  $C$  and  $C_0$  represent concentrations at times  $t$  and  $t_0$ , respectively, and  $k$  is the degradation constant. Degradation rates were estimated after linearization using Eq. (3):

$$\ln \frac{C}{C_0} = -kt \quad (3)$$

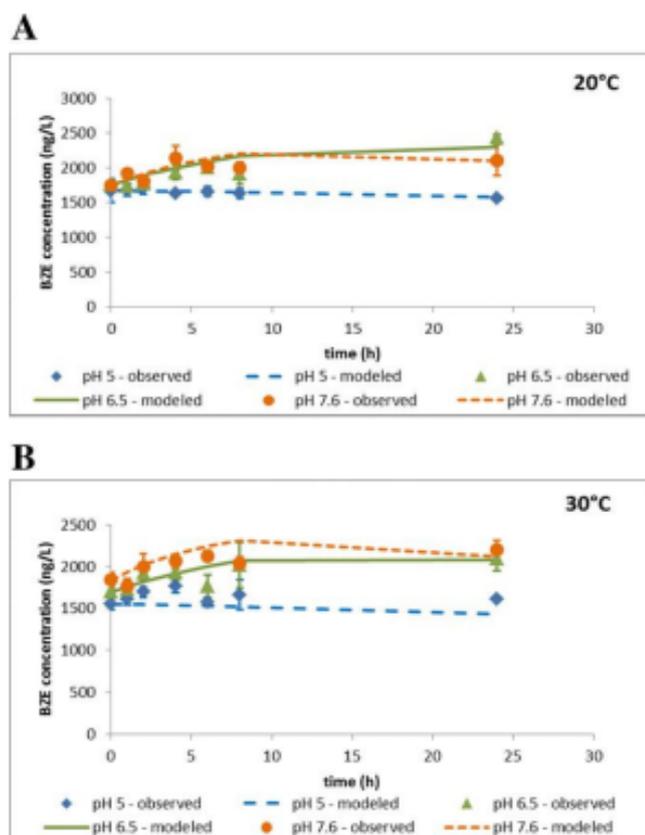
Half-lives were deduced from the degradation rate using Eq. (4):

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{k} \quad (4)$$

## 3. Results and discussion

Illicit drug and metabolite degradation kinetics is detailed in Figs. 1A to 1F, with the variant pH values and temperatures. On this basis, degradation kinetics is drawn according to Eq. (3) for COC, THC-COOH, HER, and 6-MAM (Table 2) to estimate rates from the slope ( $1/k$ ) and related half-lives. Calculation was not made for two molecules: for THC-COOH at pH 5 because of the increasing variation of concentrations; for 6-MAM regardless of the pH, because of the weak concentration variation that prevented us from obtaining a decreasing trend. It was not possible to estimate the degradation kinetics of BZE because of its concomitant formation with COC degradation. However, the estimation of BZE concentrations based on COC degradation kinetics will be proposed and compared to the observed concentrations. The same occurred for MOR, which is a metabolite of HER and 6-MAM.

COC concentrations followed two distinct kinetic trends depending on pH conditions (Fig. 1A). Regardless of the temperature, COC concentration decreased at pH 7.6 and pH 6.5 and, after 24 h, 80% degradation was observed. At pH 5, regardless of the temperature, the amount of COC degradation was <15% after 24 h. The COC kinetic constant ( $k$ ) value (Table 2) depends mainly on pH conditions with a tenfold increase between pH 5 and pH 7.6. Half-lives are significantly higher at pH 5 (68.0 h and 85.5 h) compared to the two other pH, being close to 7 h at pH 7.6 and 11 h at pH 6.5. In parallel, the concentration of



**Fig. 3.** BZE concentration variation during incubation: measured and estimated profiles using the following BZE degradation  $k$  values: (A)  $0.010 \text{ h}^{-1}$  (pH 5),  $0.015 \text{ h}^{-1}$  (pH 6.5),  $0.025 \text{ h}^{-1}$  corresponding to  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  estimation (pH 7.6); (B)  $0.010 \text{ h}^{-1}$  (pH 5),  $0.020 \text{ h}^{-1}$  (pH 6.5),  $0.030 \text{ h}^{-1}$  (pH 7.6) corresponding to  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  estimation. Mean  $\pm$  standard deviation ( $n = 3$ ) for measured concentrations.

BZE increased at pH 7.6 (+20%) and pH 6.5 (+25% to 38%), but remained stable at pH 5 (Fig. 1B).

Over the 24 h experiment and considering a 10% measurement uncertainty, the sum of BZE and COC concentrations appears higher at pH 5 (mean 2836 ng/L) than at the two other pH (mean 2450 ng/L at pH 6.5 and 2230 ng/L at pH 7.6) (Fig. 2A). Fig. 2B presents the concentrations of COC and BZE over 24 h with the estimation of BZE concentrations based on the simultaneous degradation of COC: while the observed and estimated concentrations are similar at pH 5, the observed values are 25% to 35% lower than the estimations at pH 6.5 and pH 7.6.

For THC-COOH metabolite of THC, we observed a linear increase in concentration at pH 5 (Fig. 1C). In this acidic condition, initial concentrations are 25% less than those observed for the two other pH conditions and increased progressively from 0 h to 24 h. After 24 h, THC-COOH concentrations were 20% lower at  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  than at the ambient temperature, without any difference for the different pH values. THC-COOH  $k$  values (Table 2) are similar regardless of pH and temperature

**Table 1**

Monitored drugs and deuterated internal standards, acronyms, and quantification limits (QLs) (ng/L).

| Monitored molecules  | Deuterated internal standard | Acronym  | QL (ng/L) |
|----------------------|------------------------------|----------|-----------|
| Heroin               | Heroin-d9                    | HER      | 40        |
| 6-Monoacetylmorphine | 6-Monoacetylmorphine-d3      | 6-MAM    | 40        |
| Morphine             | Morphine-d6                  | MOR      | 40        |
| Cocaine              | Cocaine-d3                   | COC      | 20        |
| Benzoylcegonine      | Benzoylcegonine-d3           | BZE      | 10        |
| THC-COOH             | THC-COOH-d3                  | THC-COOH | 5         |

**Table 2**

Degradation rates ( $\text{h}^{-1}$ ) calculated from incubation experiments using Eq. (3) and related half-life times calculated using Eq. (4).

|          |        |                             | $R^2$ | $k$ ( $\text{h}^{-1}$ ) | $t_{1/2}$ (h) |
|----------|--------|-----------------------------|-------|-------------------------|---------------|
| COC      | pH 5   | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.944 | 0.010                   | 68.0          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.922 | 0.008                   | 85.5          |
|          | pH 6.5 | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.895 | 0.060                   | 11.6          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.959 | 0.068                   | 10.2          |
|          | pH 7.6 | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.979 | 0.095                   | 7.3           |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.992 | 0.102                   | 6.8           |
| THC-COOH | pH 5   | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.909 | 0.012                   | 57.9          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.885 | 0.022                   | 30.8          |
|          | pH 6.5 | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.929 | 0.013                   | 54.8          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.960 | 0.021                   | 33.0          |
|          | pH 7.6 | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.989 | 0.111                   | 6.2           |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.866 | 0.054                   | 12.9          |
| HER      | pH 5   | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.974 | 0.030                   | 22.3          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.966 | 0.027                   | 25.6          |
|          | pH 6.5 | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.978 | 0.038                   | 18.3          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.994 | 0.036                   | 19.3          |
|          | pH 7.6 | $20 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.978 | 0.038                   | 18.3          |
|          |        | $30 \text{ }^\circ\text{C}$ | 0.994 | 0.036                   | 19.3          |

– except for pH 5 – leading to half-lives exceeding 30 h for  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  and 50 h for  $20 \text{ }^\circ\text{C}$ .

HER concentrations rapidly decreased to an undetectable level after 2 h at pH 7.6 and pH 6.5 (Fig. 1D). At pH 5, HER degradation slowed and remained constant at 8% and 25% of the initial content at  $18 \text{ }^\circ\text{C}$  and  $30 \text{ }^\circ\text{C}$ , respectively, after 24 h. At pH 5 and both temperatures, HER degradation half-lives are around 10 h. These results are consistent with the data of Baker and Kasprzyk-Hordern (2011) who observed a 79.4% decrease in HER concentration after 12 h in wastewater at pH 7.4 and  $19 \text{ }^\circ\text{C}$ . The authors also reported a 97.5% degradation after 72 h at  $2 \text{ }^\circ\text{C}$ . HER is known to be easily degraded and unsuitable for back-calculation (McCall et al., 2016), and thus, its fate is not often reported (Van Nuijs et al., 2012; Senta et al., 2014). The slightly more pronounced scattering observed for this molecule may be due to its low stability, which can impair the analysis despite storing the samples at  $4 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Except at pH 5, 6-MAM concentrations halved after 24 h (Fig. 1E), leading to half-lives close to 22 h at pH 6.5 and 19 h at pH 7.6. MOR concentrations remained stable at pH 5 and slightly increased for the other two pHs (Fig. 1F).

### 3.1. Effect of temperature and pH on molecular fate

In this study, a rapid degradation of COC is confirmed in accordance with previous research (González-Marino et al. 2010; Heuett et al. 2015; Pal et al., 2013; Senta et al., 2014; Van Nuijs et al., 2011, 2012), but without any significant difference between  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  and  $30 \text{ }^\circ\text{C}$ . THC-COOH stability appeared to be influenced by high temperature: concentration levels after 24 h were 20% lower at  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  than at  $20 \text{ }^\circ\text{C}$ .

For COC, a linear increase in degradation rates as a function temperature is observed, leading to a significant variation in half-lives from 7 h at pH 7.6 to >48 h at pH 5. The degradation rate of COC into BZE seems to be compensated by the slower decrease in BZE, which explains the stability of the sum of COC and BZE concentrations in the first part of the kinetics. Indeed, the mean sum of COC and BZE concentrations (calculated for the six incubation conditions) is 2915 ng/L after 8 h with a 7% r.s.d. (relative standard deviation) and 2505 ng/L after 24 h with an 11% r.s.d. After 24 h, the observed BZE concentrations at pH 5 are close to the estimations, i.e., BZE + amount of degraded COC, but 25% and 35% lower than the estimations at pH 6.5 and pH 7.6, respectively (Fig. 2A). This result is in agreement with the data of Bisceglia and Lippa (2014) who observed a constant sum of BZE and COC during the first hours of their experiment at  $9 \text{ }^\circ\text{C}$ ,  $23 \text{ }^\circ\text{C}$ , and  $30 \text{ }^\circ\text{C}$  in filtered wastewater. Senta et al. (2014) estimated a 35 h degradation half-life for COC

at pH 7.5 and 20 °C (Table 3). However, similar studies conducted at pH 7.5 and around 20 °C showed a significant difference in the degradation percentage after 12 h, ranging between 8% and 50% (Castiglioni et al., 2016).

The estimated variation in BZE concentration, taking into account the COC degradation into BZE and the degradation of cumulative BZE, was calculated by assuming a degradation constant of  $0.01 \text{ h}^{-1}$  at the first attempt. The adjustment to the observed concentration data then allowed us to define the following BZE degradation  $k$  values:  $0.010 \text{ h}^{-1}$  (pH 5),  $0.015 \text{ h}^{-1}$  (pH 6.5), and  $0.025 \text{ h}^{-1}$  (pH 7.6) at 20 °C, and  $0.010 \text{ h}^{-1}$  (pH 5),  $0.020 \text{ h}^{-1}$  (pH 6.5), and  $0.030 \text{ h}^{-1}$  (pH 7.6) at 30 °C. The observed curves for BZE variation are similar to the modeled curves (Fig. 3A and B) regardless of the incubation conditions: this allows half-life times to be estimated at around 69 h for pH 5 and 24 h for pH 7.6.

THC-COOH degradation is accelerated by high temperatures with half-life values at 20 °C being twice those at 30 °C. However, the temperature effect could not be studied in acidic conditions, because the kinetics observed at pH 5 presents, during the first 8 h, increasing concentrations. Indeed, filtered wastewater samples were spiked and stored for one night at 4 °C before the beginning of kinetics, and THC-COOH may have adsorbed on suspended matter in the acidic condition (Khan and Nicell, 2012; Senta et al., 2014), leading to the progressive release of concentration at the beginning of kinetics.

HER degradation is very rapid, and kinetics was only drawn for the acidic condition, leading to short half-life values close to 6 h. It should be noted that HER concentrations appeared scattered (Fig. 1D), preventing a reliable estimation of degradation kinetics. 6-MAM concentrations remained stable at pH 5 and decreased slowly at the other pH: no increase was observed, as expected from HER degradation. Kinetics was drawn for pH 6.5 and pH 7.6, leading to lower half-life values for pH 7.6 (18.3 h at 20 °C and 19.3 h at 30 °C) than for pH 6.5 (22.3 h at 20 °C and 25.6 h at 30 °C). MOR concentration increased slightly at the beginning of incubation and remained stable after 5 h, thus preventing any estimation of degradation kinetics. This can be explained by the formation of MOR due to HER and 6-MAM degradation. The cleavage of morphine glucuronide conjugates to labile morphine can also explain the stability of MOR concentrations, although this phenomenon occurs in the first phase of elimination in sewage networks (D'Ascenzo et al., 2003; Ternes, 1998).

Senta et al. (2014) determined an 87 h half-life time for 6-MAM degradation, five times higher than the value estimated in this study under the same conditions (Table 3). A large variation in the results of similar degradation studies is also observed for 6-MAM (Castiglioni et al., 2016). This observation underlines the fact that the microbial diversity, the nature of organic matter, and other local specificities of wastewater content could affect the fate of molecules in wastewater on the same scale as thermic or pH conditions.

### 3.2. Validating "sewage epidemiology" in tropical climates

Drug consumption estimations calculated from molecular concentrations in wastewater are dependent on their residence time in sewage and the physicochemical characteristics of wastewater during transport in the sewage network. In Martinique Island, mean wastewater temperature is 26–30 °C at sea level during the day, while pH varies between 5,

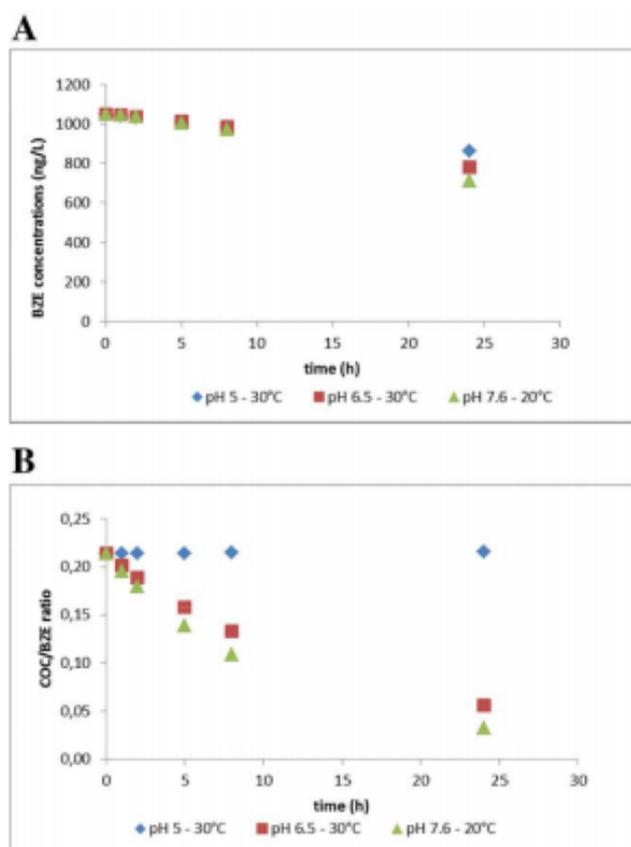


Fig. 4. Estimation of degradation kinetics in three conditions: pH 5 and pH 6.5 at 30 °C and pH 7.6 at 20 °C with respective  $k$  values of  $0.01 \text{ h}^{-1}$ ,  $0.02 \text{ h}^{-1}$ , and  $0.025 \text{ h}^{-1}$  for BZE and  $0.008 \text{ h}^{-1}$ ,  $0.068 \text{ h}^{-1}$ , and  $0.095 \text{ h}^{-1}$  for COC. (A) BZE concentration variation with time; (B) COC/BZE ratio variation with time.

especially in stagnant areas like the pumping station basin, and 6.5 when the stream reaches maximal speed.

Concerning the estimation of COC consumption, the degradation of the parent molecule in wastewater is accelerated by the high temperatures in comparison to Western European countries, but acidic pH limits the degradation, as the half-life of COC appeared slightly higher in warm and acidic conditions (10.2 h) compared to temperate conditions (7.3 h). This difference is especially marked as the pH decreases. By contrast, BZE degradation seems comparable in tropical and temperate climates, with half-life values close to 30 h. Three kinetics were modeled here, pH 5 and pH 6.5 at 30 °C and pH 7.6 at 20 °C, using the related half-lives for COC and BZE and an initial COC/BZE ratio in accordance with metabolism data (i.e., 1050 ng/L of BZE and 225 ng/L of COC). The variation in BZE concentration is similar in the three conditions for the first 24 h (Fig. 4A). The COC/BZE ratio remains constant for pH 5, but decreases in the other conditions (Fig. 4B). Thus, it seems that the acidic characteristic of sewage in tropical areas compensates for the high temperature: the use of BZE as DTR to estimate COC consumption appeared reliable, mostly when sampling occurs in the first

Table 3

Comparison between the results of Senta et al. (2014) and the present study. Grayed area: absence of correspondence between pH and temperature conditions.

|                     |       | 10 °C, pH 7.5 |                             |      | 20 °C, pH 7.5 |                             |      | 30 °C, pH (7.62) |                             |      |
|---------------------|-------|---------------|-----------------------------|------|---------------|-----------------------------|------|------------------|-----------------------------|------|
|                     |       | $r^2$         | $k \text{ (h}^{-1}\text{)}$ | t1/2 | $r^2$         | $k \text{ (h}^{-1}\text{)}$ | t1/2 | $r^2$            | $k \text{ (h}^{-1}\text{)}$ | t1/2 |
| Senta et al. (2014) | COC   | 0.850         | 0.004                       | 173  | 0.990         | 0.020                       | 35   |                  |                             |      |
|                     | 6-MAM | 0.870         | 0.005                       | 139  | 0.954         | 0.008                       | 87   |                  |                             |      |
| Present article     | COC   |               |                             |      | 0.979         | 0.095                       | 7.3  | 0.992            | 0.102                       | 6.8  |
|                     | 6-MAM |               |                             |      | 0.978         | 0.038                       | 18.3 | 0.994            | 0.036                       | 19.3 |

10 h after release into the sewage network, with a 20% underestimation being noted after 24 h. The estimation of COC consumption will lead to the same value, although the COC/BZE ratio decreases in both tropical and temperate climates. The use of COC seems reliable only in very acidic conditions, with the decrease in COC concentration being 6% at 8 h for pH 5, but over 40% in the other conditions after 8 h.

THC-COOH is the DTR used to back-calculate cannabis consumption. High temperatures accelerate the degradation, but half-life times remain high, being over 30 h at 30 °C, which prevents a sizeable underestimation of consumption when sampling is made on the day of release into the sewage network. Indeed, considering a mean residence time of 8 h, the underestimation is 9% at 20 °C ( $k = 0.012 \text{ h}^{-1}$ ) and 15% at 30 °C ( $k = 0.021 \text{ h}^{-1}$ ). For a longer residence time in slightly acidic wastewater (pH 6.5), underestimation will increase to 25% after 12 h and 40% after 24 h; however, in more acidic wastewater as often observed in Martinique, the decrease will be limited.

Concerning opiates, 6-MAM is the DTR used to back-calculate HER consumption. MOR can also be used as a DTR, but this molecule is related to HER consumption as well as to licit and illicit MOR use, thus leading to confusing results. Degradation of 6-MAM is not influenced by temperature: half-lives are close to 19 h at pH 7.6 and over 22 h at pH 6.5. Calculation was not possible at pH 5 because of the stability of the concentration. Thus, considering a mean residence time of 8 h, HER consumption will be 30% underestimated, but slightly less so in tropical condition where wastewater pH is lower. However, it should be noted that contrary to COC and BZE, the decrease in HER was not associated with an increase in 6-MAM and/or MOR due to a probable concomitant degradation. Separate degradation kinetics should be drawn to explain the behavior of each molecule.

#### 4. Conclusion

The stability of DTR to estimate drug consumption was studied to compare tropical and temperate climates, especially in terms of pH and temperature. The acidic property of tropical sewage counterbalances its high temperature: thus, considering a mean residence time of 8 h, the estimation of COC consumption based on BZE analysis is not biased. The estimation of cannabis consumption appeared slightly more underestimated in the tropical context: this is all the more critical, as the percentage of physiologic elimination of tetrahydrocannabinol into THC-COOH is very low. The underestimation is close to 15% in the tropical context based on a mean residence time of 8 h, which is double that of the temperate area. For a one-day residence time, the underestimation of THC-COOH will reach 40% in slightly acidic wastewater, but will be highly limited in more acidic wastewater as observed in tropical areas. COC estimation after a 24 h delay will be underestimated by 20% in both temperate (20 °C, pH 7.6) and tropical conditions (30 °C, pH 5).

#### Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.01.114>.

#### References

- Baker, D.R., Kasprzyk-Hordern, B., 2011. Critical evaluation of methodology commonly used in sample collection, storage and preparation for the analysis of pharmaceuticals and illicit drugs in surface water and wastewater by solid phase extraction and liquid chromatography-mass spectrometry. *J. Chromat. A* 1218 (44), 8036–8059.
- Beurskens, J.E.M., Dekker, C.G.C., van den Heuvel, H., Swart, M., de Wolf, J., Dolfin, J., 1994. Dechlorination of chlorinated benzenes by an anaerobic microbial consortium that selectively mediates the thermodynamic most favorable reactions. *Environ. Sci. Technol.* 28, 701–706.
- Bisceglia, K.J., Lippa, K.A., 2014. Stability of cocaine and its metabolites in municipal wastewater: the case for using metabolite consolidation to monitor cocaine utilization. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 21 (6), 4453–4460.
- Burke, V., Greskowiak, J., Asmuß, T., Bremermann, R., Taute, T., Massmann, G., 2014. Temperature dependent redox zonation and attenuation of wastewater-derived organic micropollutants in the hyporheic zone. *Sci. Total Environ.* 482–483 (1), 53–61.
- Castiglioni, S., Bijlsma, L., Covaci, A., Emke, E., Harman, C., Hernandez, F., Kasprzyk-Hordern, B., Ort, C., van Nuijs, A., de Voogt, P., Zuccato, E., 2016. Estimating community drug use through wastewater-based epidemiology. *European Monitoring Centre for Drugs and Drug Addiction, Assessing Illicit Drugs in Wastewater: Advances in Wastewater-Based Drug Epidemiology*. Publications Office of the European Union, Luxembourg, pp. 22–34.
- D'Ascenzo, G., Di Corcia, A., Gentili, A., Mancini, R., Mastropasqua, R., Nazzari, M., Samperi, R., 2003. Fate of natural estrogen conjugates in municipal sewage transport and treatment facilities. *Sci. Total Environ.* 302, 199–209.
- Daughton, C.G., 2001. Illicit drugs in municipal sewage: proposed new non-intrusive tool to heighten public awareness of societal use of illicit/abused drugs and their potential for ecological consequences. In: Daughton, C.G., Jones-Lepp, T. (Eds.), *Pharmaceuticals and Personal Care Products in the Environment: Scientific and Regulatory Issues*. Symposium Series. American Chemical Society, Washington, D.C., pp. 348–364.
- Devault, D.A., Delmotte, S., Macarie, H., Dolfin, J., Anschutz, P., 2011. How early diagenesis reveals in situ biodegradation of herbicides in sediment. In: Korteeramp, A. (Ed.), *Herbicides and Environment*. Intech, Vienna, pp. 443–468.
- Devault, D.A., Néfau, T., Pascaline, H., Karolak, S., Levi, Y., 2014. First evaluation of illicit and licit drug consumption based on wastewater analysis in Fort de France urban area (Martinique, Caribbean), a transit area for drug smuggling. *Sci. Total Environ.* 490, 970–978.
- Devault, D.A., Néfau, T., Levi, Y., Karolak, S., 2016. The removal of illicit drugs and morphine in two waste water treatment plants (WWTPs) under tropical conditions. *Environ. Sci. Pollut. Res.* <http://dx.doi.org/10.1007/s11356-015-6032-z>.
- European Monitoring Centre for Drugs and Drug Addiction, 2016, 2016. *Assessing illicit drugs in wastewater: advances in wastewater-based drug epidemiology*. Insights 22. Publications Office of the European Union, Luxembourg.
- Fitzpatrick, C.S., Fradin, E., Gregory, J., 2004. Temperature effects on flocculation, using different coagulants. *Water Sci. Technol.* 50 (12), 171–175.
- Froelich, P.N., Klinkhammer, G.P., Bender, M.L., Luedtke, N.A., Health, G.R., Cullen, D., Dauphin, P., Hammond, D., Hartman, B., Maynard, V., 1979. Early oxidation of organic-matter in pelagic sediments of the Eastern Equatorial Atlantic suboxic diagenesis. *Geochim. Cosmochim. Acta* 43, 1075–1090.
- Gheorghe, A., van Nuijs, A., Pecceu, B., Bervoets, L., Jorens, P.G., Blust, R., Neels, H., Covaci, A., 2008. Analysis of cocaine and its principal metabolites in waste and surface water using solid-phase extraction and liquid chromatography-ion trap tandem mass spectrometry. *Anal. Bioanal. Chem.* 391 (4), 1309.
- González-Marino, I., Quintana, J.B., Rodríguez, I., Cella, R., 2010. Determination of drugs of abuse in water by solid-phase extraction, derivatization and gas chromatography-ion trap-tandem mass spectrometry. *J. Chromatogr. A* 1217, 1748–1760.
- Heuett, N.V., Ramirez, C.E., Fernandez, A., Gardinali, P.R., 2015. Analysis of drugs of abuse by online SPE-LC high resolution mass spectrometry: communal assessment of consumption. *Sci. Total Environ.* 511, 319–330.
- Hochard, S., Pinazo, C., Grenz, C., Evans, J.L.B., Pringault, O., 2010. Impact of microphytobenthos on the sediment biogeochemical cycles: a modeling approach. *Ecol. Model.* 221 (13–14), 1687–1701.
- Khan, U., Nicell, J.A., 2012. Sewer epidemiology mass balances for assessing the illicit use of metamphetamine, amphetamine and tetrahydrocannabinol. *Sci. Total Environ.* 421, 144–162.
- Lens, P.N.L., Visser, A., Janssen, A.J.H., Hulshoff Pol, L.W., Lettinga, G., 1998. Biotechnological treatment of sulfate-rich wastewaters. *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* 28 (1), 41–88.
- McCall, A.-K., Bade, R., Kinyua, J., Lal, F.Y., Thai, P.K., Covaci, A., Bijlsma, L., van Nuijs, A.L.N., Ort, C., 2016. Critical review on the stability of illicit drugs in sewers and wastewater samples. *Water Res.* 88, 933–947.
- Pal, R., Megharaj, M., Kirkbride, K.P., Naidu, R., 2013. Illicit drugs and the environment: a review. *Sci. Total Environ.* 463–464, 1079–1092.
- Phillibert, J., Vignes, A., Bréchet, Y., Combrade, P., 1998. *Métallurgie, du minéral au matériau*. Eds Masson, Paris.
- Senta, I., Krizman, I., Ahel, M., Terzić, S., 2014. Assessment of stability of drug biomarkers in municipal wastewater as a factor influencing the estimation of drug consumption using sewage epidemiology. *Sci. Total Environ.* 487, 659–665.
- Temes, T.A., 1998. Occurrence of drugs in German sewage treatment plants and rivers. *Water Res.* 32, 3245–3260.
- Van Nuijs, A.L.N., Castiglioni, S., Tarcomnicu, I., Postigo, C., Lopez de Alda, M., Neels, H., Zuccato, E., Barcelo, D., Covaci, A., 2011. Illicit drug consumption estimations derived from wastewater analysis: a critical review. *Sci. Total Environ.* 409, 3564–3577.
- Van Nuijs, A.L.N., Abdellati, K., Bervoets, L., Blust, R., Jorens, P.G., Neels, H., Covaci, A., 2012. The stability of illicit drugs and metabolites in wastewater, an important issue for sewage epidemiology? *J. Hazard. Mater.* 239–240, 19–23.
- Wang, L., Li, T., 2015. Effects of seasonal temperature variation on nitrification, anammox process, and bacteria involved in a pilot-scale constructed wetland. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 22 (5), 3774–3783.
- Weng, H., Dai, Z., Ji, Z., Gan, C., Liu, C., 2015. Release and control of hydrogen sulfide during sludge thermal drying. *J. Hazard. Mater.* 296, 61–67.
- Zuccato, E., Chiabrand, C., Castiglioni, S., Calamari, D., Bagnati, R., Schiarea, S., Fanelli, R., 2005. Cocaine in surface waters: a new evidence-based tool to monitor community drug abuse. *Environ. Health* 4, 14.

# Applying sewage epidemiology in Caribbean context

Damien A. DEVAULT, Sara KAROLAK, Yves LEVI

Université Paris-Saclay, Groupe Santé Publique Environnement, Châtenay-Malabry, France UMR ESE 8079  
damien.devault@martinique.univ-ag.fr

**Introduction**

Estimation of illicit drug consumption using "sewage epidemiology" method is carried out since 2013 in Fort-de-France (Martinique, French West Indies). Sampling and calculation are made following the SCORE protocol. A maximum of four wastewater treatment plants (WWTP) were monitored in Fort-de-France conurbation allowing to distinguish four districts that differ each other from their social and economical environment. Local Drug Target Residue (DTR) concentrations and related cannabis and cocaine consumptions are, each year, among the highest reported. However, consumption estimation using the proposed equation has to be discussed concerning the Caribbean context: tropical weather, consumer pattern, sewage network leaks and high level of houses no connected to sewer.



**Sewage epidemiology is focused on a key equation:**

$$Q = Q_{day} \times U_{ex} \times M_{ratio} \times 1000 / N_{inh}$$

Daily DTR load    DTR excretion rate    drug/DTR mass ratio    Connected population

**Potential evaluation bias:**

Kinetic and molecule stability issues  
→ §3 and 4

Calculation of connected population and its representativeness of the whole population → §2

**1. A hub of world trafficking of cocaine**

75 % of the cocaine for European market transit directly via the Caribbean  
15 % of the cocaine for north-American market transit via the Caribbean  
78 % of crack seizures performed in France are made in French West Indies



Main global cocaine flows, 2008 (UNODC, World Drug Report, 2009) and trafficking mode in Caribbean for cocaine fret.

**2. Sewer porosity and weak extent of sewage system**

- 55% of Martinique people live in house no connected to sewage system (named "NCSR").
- 10% of NCSR have individual sanitation devices complying with sanitary standards.
- 30% of NCSR have on-site sanitation uncared for.
- 30% of NCSR have patchwork-fashioned on-site sanitation
- 30% of NCSR have no individual sanitation → 16.5% of the population directly discharge their sewage in surface waters.

Sewer rapid aging (x3 /metropolitan France standard) is due to seims, hurricanes but over all to sulfato-reduction. Unbridled urbanism, unawareness population and oversized equipment promoting sulfato-reduction achieve to weaken sewers.

→ Sewer leakages minimize illicit drug loads at the entry of WWTPs: Do illicit drugs leak in the same range than organic matter involved in connected population estimation based on BOD5?

→ the part of untreated wastewater enhanced the environmental contamination with DTR and the ecological risk related.

**3. Tropical temperature**

Wastewater temperature is about 30°C in Fort-de-France area.

The fate of DTR at such high temperatures is scarcely studied [1].

Degradation in the network upstream the WWTP could be enhanced: BZE and THC-COOH fates in raw water during 8 hours at 18°C and 31°C, does not show significant difference [2].

→ **Temperature doesn't interfere in DTR concentrations.** They can be used for calculation without correcting factor.

[1] Bsoegle KJ, Lipka KA. 2014. Stability of cocaine and its metabolites in municipal... Environ Sci Poll Res 21(6):4453-60.  
[2] Devault et al., 2015. Illicit drug removal in two WWTPs exposed to a tropical context. Environ Sci Poll Res submitted  
[3] Devault et al. 2014. First evaluation of illicit and hot drug consumption based on wastewater ... Sci Tot Env 490 970-8.  
[4] Come et al. 1995. Hair Testing for Drugs of Abuse. Intem Res Stand Technol 95:3727-31-120.  
[5] Huestis et al., 2007. Cocaine and metabolites urinary excretion after controlled... Jour Analyst Toxicol 31(8): 462-468.

**4. Local consumption specificities**

- **Cocaine consumption:** crack represents 98% of cocaine consumption [3]. In this case, the BZE Uex is lower, between 14.8% to 28% [4,5].

→ "intranasal" sewage epidemiology SCORE results for cocaine are to be multiplied by 2.5 for crack consuming prevalence.

- **A third of crack consumers are alcoholic.** Mixing intranasal cocaine and alcohol consumptions induce cocaethylene excretion by consumers. Although the low LoQ and the high cocaine consumption level, cocaethylene was not detected in the samples → it brings pharmacokinetic data into question.

- **Cannabis consumption** is estimated with a median value close to 40g/d/1000inhab. 10 fold higher than in metropolitan France, one of the most cannabis consuming country.

→ This high level of THC consumption induces high loads of DTR excreted and the need of studying more this neglected compound and its related metabolites.

- **No difference of consumption levels** was observed throughout the week, i.e. working and non-working days, whatever the social level of connected areas, highlighting a trivialized consumption of cannabis as of cocaine.

**Social levels:**



Cocaine consumption estimation (2013) based on intranasal route (Uex = 0.45).

SCORE monitoring performed in Martinique highlights the adaptation needed for applying sewage epidemiology in sub-tropical to equatorial countries. The results obtained in Fort-de-France allow to prefigure the consumption data in Caribbean on the way of cocaine trafficking.

**Acknowledgements :** for the teams of the WWTPs investigated and the sanitation company. This study is a part of SENEUR project, supported by the French National Water Agency, the Water Office of Martinique, Fort-de-France conurbation administration and Regional Health Agency of Martinique.

# Annexe 3

Tableau A3-1 : Concentrations en stupéfiants mesurées dans les eaux de réseaux (ng/L). (LQ = limite de quantification)

|        |          |     |          | Temps    | BZE   | CET    | COC  | EDDP  | META | MOR  | NOR   | THC-COOH |       |
|--------|----------|-----|----------|----------|-------|--------|------|-------|------|------|-------|----------|-------|
|        |          |     |          | j        | ng/L  | ng/L   | ng/L | ng/L  | ng/L | ng/L | ng/L  | ng/L     |       |
| LQ     |          |     |          | 3,4      | 37,7  | 0,6    | 0,6  | 2,7   | 0,3  | 60,4 | 159   | 8,2      |       |
| Reseau | CAMPUS   | C 3 | 2        | 14-04-18 | 3,1   | 209    | <LQ  | 11,6  | <LQ  | <LQ  | 335   | <LQ      | 600   |
|        | CHU CLA  | C 1 | 1        | 03-03-18 | 3,0   | 153    | <LQ  | 6,5   | 6,6  | 4,7  | 32,3  | <LQ      | 48,1  |
|        |          | C 1 | 2        | 03-03-18 | 3,0   | 524    | <LQ  | 16,0  | <LQ  | 13,9 | 91,8  | <LQ      | 181   |
|        |          | C 2 | 1        | 30-03-18 | 11,1  | 10 923 | 1,5  | 573   | 10,2 | 2,3  | 314   | 1 436    | 253   |
|        |          | C 2 | 2        | 30-03-18 | 11,1  | 48 578 | 5,3  | 1 511 | 24,7 | 6,8  | 964   | 2 886    | 952   |
|        |          | C 3 | 1        | 14-04-18 | 3,1   | 1 221  | <LQ  | 219,0 | 2,9  | 0,0  | <LQ   | <LQ      | 1,2   |
|        |          | C 3 | 2        | 14-04-18 | 3,1   | 3 177  | <LQ  | 416   | 6,5  | 1,7  | 215   | 1 026    | 72,9  |
|        | CHU MEYN | C 2 | 1        | 22-03-18 | 3,0   | 105    | <LQ  | 11,5  | 35,1 | 13,9 | 244   | <LQ      | 97,9  |
|        |          | C 2 | 2        | 22-03-18 | 3,0   | 1 366  | <LQ  | 26,2  | 74,1 | 35,0 | 734   | <LQ      | 350   |
|        |          | C 3 | 1        | 12-04-18 | 3,0   | 313    | <LQ  | 50,1  | 0,8  | <LQ  | 525   | 344      | 218   |
|        |          | C 3 | 2        | 12-04-18 | 3,0   | 4 777  | <LQ  | 130   | <LQ  | <LQ  | 1 465 | 984      | 552   |
|        | LYC BEL  | C 1 | 1        | 03-03-18 | 3,0   | 6,2    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | 61,4  | <LQ      | 29,3  |
|        |          | C 1 | 2        | 03-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 57,3  |
|        |          | C 2 | 1        | 24-03-18 | 3,0   | 23,9   | <LQ  | 0,3   | <LQ  | <LQ  | 164   | <LQ      | 154   |
|        |          | C 2 | 2        | 24-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | 827   | <LQ      | 655   |
|        |          | C 3 | 1        | 14-04-18 | 3,0   | 0,0    | <LQ  | 0,0   | <LQ  | <LQ  | 88,7  | <LQ      | 556   |
|        |          | C 3 | 2        | 14-04-18 | 3,0   | 30,8   | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | 184   | <LQ      | 1 068 |
|        | LYC DUC  | C 1 | 1        | 02-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 1 | 2        | 02-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 1 | 1        | 08-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 1 | 2        | 07-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 2 | 1        | 23-03-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | 1,6   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 3 | 1        | 13-04-18 | 2,9   | 62,7   | <LQ  | 0,5   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 3 | 2        | 13-04-18 | 2,9   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 3 | 2        | 13-04-18 | 2,9   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        | LYC DILL | C 1 | 1        | 01-03-18 | 2,9   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 1 | 2        | 01-03-18 | 2,9   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 2 | 1        | 06-06-18 | 18,0  | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 2 | 2        | 06-04-18 | 18,0  | <LQ    | <LQ  | 0,8   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
|        |          | C 3 | 1        | 12-04-18 | 3,0   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |
| C 3    |          | 2   | 12-04-18 | 3,0      | <LQ   | <LQ    | <LQ  | <LQ   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      |       |
| PRISON | C 1      | 1   | 02-03-18 | 3,0      | 4 286 | <LQ    | 134  | 18,5  | 2,8  | <LQ  | <LQ   | 1 187    |       |
|        | C 1      | 2   | 02-03-18 | 3,0      | 9 526 | <LQ    | 571  | 97,7  | 8,7  | <LQ  | 584   | 4 007    |       |
|        | C 2      | 1   | 23-03-18 | 3,0      | 2 781 | <LQ    | 130  | 29,2  | 4,0  | <LQ  | <LQ   | 520      |       |
|        | C 2      | 2   | 23-03-18 | 3,0      | 7 201 | <LQ    | 257  | 64,7  | 9,0  | <LQ  | 511   | 1 685    |       |
|        | C 3      | 1   | 13-04-18 | 2,9      | 1 543 | <LQ    | 131  | 705   | 41,0 | 32,8 | 1 962 | 271      |       |
|        | C 3      | 2   | 13-04-18 | 2,9      | 1 761 | <LQ    | 133  | 277   | 21,1 | <LQ  | 1 107 | 611      |       |

# Annexe 3

Tableau A3-2 : Concentrations en stupéfiants mesurées dans les eaux des STEU échantillonnées (ng/L).

|           |          |           | Temps    | BZE  | CET      | COC  | EDDP   | META | MOR  | NOR   | THC COOH |       |     |       |
|-----------|----------|-----------|----------|------|----------|------|--------|------|------|-------|----------|-------|-----|-------|
|           |          |           | j        | ng/L | ng/L     | ng/L | ng/L   | ng/L | ng/L | ng/L  | ng/L     |       |     |       |
| LQ        |          |           | 3,4      | 37,7 | 0,6      | 0,6  | 2,7    | 0,3  | 60,4 | 159,0 | 8,2      |       |     |       |
| DILL<br>1 | ENT      | C1 1      | 01-03-18 | 2,9  | 1 582    | 0,3  | 27,1   | 3,5  | 0,1  | 75,7  | 22,7     | 185   |     |       |
|           |          | C1 2      | 01-03-18 | 2,9  | 645      | 1,6  | 76,0   | 10,4 | 0,9  | 127   | 186      | 297   |     |       |
|           |          | C2 1      | 22-03-18 | 3,0  | 2 509    | 1,9  | 80,1   | 2,1  | <LQ  | 145   | 384      | 643   |     |       |
|           |          | C2 2      | 22-03-18 | 3,0  | 11 131   | 6,8  | 289    | 7,6  | 0,9  | 596   | 1 630    | 2 629 |     |       |
|           |          | C3 1      | 12-04-18 | 3,0  | 2 085    | 0,9  | 54,6   | 4,3  | <LQ  | 120   | 164      | 685   |     |       |
|           |          | C3 2      | 12-04-18 | 3,0  | 21 839   | 5,0  | 534    | <LQ  | 1,0  | 310   | 647      | 942   |     |       |
|           | SOR      | C1 1      | 01-03-18 | 3,0  | 25,4     | <LQ  | 0,2    | 2,4  | 0,2  | <LQ   | <LQ      | 21,5  |     |       |
|           |          | C1 2      | 01-03-18 | 3,0  | 32,4     | <LQ  | <LQ    | 5,9  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 23,2  |     |       |
|           |          | C2 1      | 22-03-18 | 3,0  | 246      | <LQ  | 3,5    | 14,8 | 1,9  | <LQ   | <LQ      | 62,5  |     |       |
|           |          | C2 2      | 22-03-18 | 3,0  | 50,1     | <LQ  | 1,7    | 4,5  | 0,5  | <LQ   | <LQ      | 41,3  |     |       |
|           |          | C3 1      | 12-04-18 | 3,0  | <LQ      | <LQ  | <LQ    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           |          | C3 2      | 12-04-18 | 3,0  | <LQ      | <LQ  | <LQ    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 241   |     |       |
|           |          | DILL<br>2 | ENT      | C1 1 | 01-03-18 | 2,9  | 1 482  | 0,4  | 59,8 | 0,9   | 0,2      | 87,4  | 120 | 330   |
|           |          |           |          | C1 2 | 01-03-18 | 2,9  | 5 181  | 1,4  | 135  | 2,9   | 0,9      | 207   | 334 | 638   |
| C2 1      | 22-03-18 |           |          | 2,9  | 3 542    | 1,0  | 84,9   | 5,2  | 0,9  | 108   | <LQ      | 422   |     |       |
| C2 2      | 22-03-18 |           |          | 2,9  | 5 315    | 1,6  | 97,6   | 5,1  | 0,9  | 129   | 202      | 514   |     |       |
| C3 1      | 12-04-18 |           |          | 3,0  | 3 765    | 1,4  | 124    | 1,6  | <LQ  | 87,1  | 320      | 235   |     |       |
| C3 2      | 12-04-18 |           |          | 3,0  | 10 226   | 3,5  | 240    | 12,6 | 0,9  | 449   | 709      | 2 200 |     |       |
| SOR       | C1 1     |           | 01-03-18 | 3,0  | 16,7     | <LQ  | <LQ    | <LQ  | 0,4  | <LQ   | <LQ      | 7,1   |     |       |
|           | C1 2     |           | 01-03-18 | 3,0  | 41,1     | <LQ  | <LQ    | <LQ  | 1,7  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           | C2 1     |           | 22-03-18 | 3,0  | 127      | <LQ  | 2,2    | 24,5 | 10,0 | <LQ   | <LQ      | 6,2   |     |       |
|           | C2 2     |           | 22-03-18 | 3,0  | 136      | <LQ  | 1,5    | 24,4 | 5,7  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           | C3 1     |           | 12-04-18 | 3,0  | <LQ      | <LQ  | <LQ    | <LQ  | 1,0  | <LQ   | <LQ      | 10,2  |     |       |
|           | C3 2     |           | 12-04-18 | 3,0  | 82,7     | <LQ  | <LQ    | <LQ  | 0,6  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           | GAI      |           | ENT      | C1 1 | 02-03-18 | 3,0  | 1 426  | <LQ  | 96,2 | <LQ   | <LQ      | 240   | 308 | 989   |
|           |          |           |          | C1 2 | 02-03-18 | 3,0  | 4 820  | 1,3  | 183  | <LQ   | <LQ      | 402   | 479 | 1 472 |
| C2 1      |          | 23-03-18  |          | 3,0  | 3 204    | <LQ  | 137    | <LQ  | <LQ  | 102   | <LQ      | 516   |     |       |
| C2 2      |          | 23-03-18  |          | 3,0  | 21 144   | 1,9  | 576    | <LQ  | <LQ  | 391   | <LQ      | 1 883 |     |       |
| C3 1      |          | 12-04-18  |          | 3,0  | 2 238    | 0,7  | 156    | <LQ  | <LQ  | 163   | 255      | 580   |     |       |
| C3 2      |          | 13-04-18  |          | 3,0  | 6 070    | 1,5  | 408    | <LQ  | <LQ  | 354   | 542      | 1 281 |     |       |
| SOR       |          | C1 1      | 02-03-18 | 3,0  | 51,9     | <LQ  | 0,5    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 3,2   |     |       |
|           |          | C1 2      | 02-03-18 | 3,0  | 54,4     | <LQ  | 1,2    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           |          | C2 1      | 23-03-18 | 3,0  | 234      | <LQ  | <LQ    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           |          | C3 1      | 13-04-18 | 3,0  | 31,6     | <LQ  | 0,4    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           |          | C3 2      | 13-04-18 | 3,0  | 1 990    | 2,1  | 12,9   | 18,2 | 7,0  | <LQ   | 204      | 14,5  |     |       |
|           |          | GOD       | ENT      | C1 1 | 03-03-18 | 3,0  | 3 463  | 2,5  | 305  | <LQ   | <LQ      | 79,8  | 368 | 549   |
|           |          |           |          | C1 2 | 03-03-18 | 3,0  | 12 618 | 5,4  | 840  | <LQ   | <LQ      | 154   | 736 | 1 405 |
|           |          |           |          | C2 1 | 22-03-18 | 3,0  | 2 690  | 3,0  | 370  | <LQ   | <LQ      | 187   | 602 | 668   |
| C2 2      | 22-03-18 |           |          | 3,0  | 6 277    | 3,3  | 282    | <LQ  | <LQ  | 180   | 339      | 1 002 |     |       |
| C3 1      | 12-04-18 |           |          | 3,0  | 1 827    | 2,2  | 144    | <LQ  | <LQ  | 157   | 208      | 970   |     |       |
| C3 2      | 12-04-18 |           |          | 3,0  | 31 375   | 18,2 | 1 736  | <LQ  | <LQ  | 1 283 | 1 457    | 4 486 |     |       |
| SOR       | C1 1     |           | 03-03-18 | 3,0  | 94,7     | <LQ  | 1,4    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 18,8  |     |       |
|           | C1 2     |           | 03-03-18 | 3,0  | 180      | <LQ  | 3,9    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           | C2 1     |           | 22-03-18 | 3,0  | 743      | <LQ  | 16,2   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 21,0  |     |       |
|           | C2 2     |           | 22-03-18 | 3,0  | 1 021    | <LQ  | 17,6   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 145   |     |       |
|           | C3 1     |           | 12-04-18 | 3,0  | 771      | <LQ  | 6,0    | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | 26,2  |     |       |
|           | C3 2     |           | 12-04-18 | 3,0  | 1 441    | <LQ  | 15,3   | <LQ  | <LQ  | <LQ   | <LQ      | <LQ   |     |       |
|           | PDN      |           | ENT      | C1 1 | 03-03-18 | 3,0  | 3 499  | 1,6  | 119  | 1,9   | 0,1      | 209   | 227 | 540   |
|           |          |           |          | C1 2 | 03-03-18 | 3,0  | 8 428  | 3,6  | 233  | 4,4   | 0,9      | 494   | 636 | 1 173 |
| C2 J1.    |          |           |          | 1,0  | 3 030    | 1,2  | 80,9   | <LQ  | <LQ  | 172   | 322      | 620   |     |       |
| C2 J1.    |          |           |          | 1,0  | 3 210    | 1,1  | 79,2   | 1,2  | <LQ  | 167   | 339      | 333   |     |       |
| C2 J1.    |          |           |          | 1,0  | 1 824    | 0,7  | 59,9   | 1,0  | <LQ  | 122   | 218      | 226   |     |       |
| C2 J2.    |          |           |          | 2,0  | 4 224    | 1,5  | 217    | 1,7  | <LQ  | 224   | 402      | 613   |     |       |
| C2 J2.    |          |           |          | 2,0  | 4 295    | 1,4  | 188    | 1,7  | <LQ  | 218   | 361      | 641   |     |       |
| C2 J3.    |          |           |          | 3,0  | 3 140    | 2,0  | 238    | 1,9  | <LQ  | 230   | 420      | 632   |     |       |
| C2 J3.    |          |           |          | 3,0  | 3 316    | 2,1  | 254    | 1,9  | <LQ  | 223   | 487      | 495   |     |       |
| C3 1      |          | 14-04-18  |          | 3,0  | 3 140    | 1,6  | 104    | 2,3  | <LQ  | 222   | 340      | 790   |     |       |

## Annexe 3

|  |     |    |   |          |     |       |     |      |     |     |     |     |       |
|--|-----|----|---|----------|-----|-------|-----|------|-----|-----|-----|-----|-------|
|  |     | C3 | 2 | 14-04-18 | 3,0 | 9 660 | 5,3 | 378  | 5,9 | 0,9 | 713 | 935 | 1 724 |
|  |     | C1 | 1 | 03-03-18 | 3,0 | 844   | <LQ | 5,1  | 1,0 | 0,4 | 132 | <LQ | 155   |
|  |     | C1 | 2 | 03-03-18 | 3,0 | 1 643 | <LQ | 6,0  | 4,3 | <LQ | 158 | <LQ | 166   |
|  | SOR | C2 | 1 | 24-03-18 | 3,0 | 3 013 | <LQ | 144  | 2,5 | <LQ | 190 | 235 | 330   |
|  |     | C2 | 2 | 24-03-18 | 3,0 | 4 135 | 1,5 | 328  | 9,7 | 1,5 | 352 | 564 | 360   |
|  |     | C3 | 1 | 14-04-18 | 3,0 | 5 697 | 1,4 | 68,1 | 8,2 | <LQ | 407 | 532 | 614   |

# Annexe 3

Tableau A3-3 : Concentrations en résidus de médicaments mesurées dans les eaux de réseaux (ng/L). (Dans ce tableau loq=limites de quantification).

|          |    |   | Temps    | ABA    | ACE    | AC FENO | ASP    | ALP    | AMI    | ATE    | ATO    | BEZ    | BIS    | BRO    | CAF    | CAR     | CETI   | CLEN   | CLON   | CLOP   | DIAZ   | DICLO  | DISO   | DOX    | FLUOX  | GEM    | IBU    | IMI    | KETO   | LORA   | LOSAR  | MEPRO  | METO   | NAPROX | NEFI   | NEVI   | NORD   | OXA    | PARA    | SALBU   | SILD   | SOT    | THEO    |         |        |      |       |
|----------|----|---|----------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|---------|--------|--------|---------|---------|--------|------|-------|
|          |    |   |          | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1  | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1  | ng.g-1 |      |       |
|          |    |   | LOQ      | 3,4    | 0,2    | 2,3     | 1,9    | 108,1  | 1,0    | 3,0    | 1,7    | 16,0   | 0,6    | 1,6    | 2,8    | 8,3     | 0,4    | 0,3    | 0,4    | 0,3    | 0,1    | 0,5    | 0,5    | 0,0    | 0,4    | 0,6    | 0,6    | 4,1    | 2,1    | 1,0    | 0,8    | 0,9    | 1,0    | 3,7    | 0,6    | 0,4    | 0,2    | 0,3    | 2,2     | 8,7     | 0,7    | 1,0    | 1,5     | 36,0    |        |      |       |
| CAMPUS   | C3 | 2 | 14-04-18 | 3,1    | 101,6  | 2,6     | <loq   | 1666,8 | <loq   | <loq   | 6,7    | 194,2  | <loq   | 4,9    | <loq   | 2016,3  | 1,9    | 61,1   | <loq   | <loq   | <loq   | 31,0   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 1671,5 | <loq   | 226,7  | <loq   | 1,5    | <loq   | 30,2   | 111,5  | <loq   | <loq   | <loq   | 1,8    | 5409,3  | 8,8     | <loq   | <loq   | <loq    | 5681,3  |        |      |       |
|          | C1 | 2 | 03-03-18 | 3,0    | <loq   | 70,8    | 2,0    | 2394,5 | <loq   | <loq   | 262,8  | <loq   | <loq   | 67,5   | 51,8   | 20476,3 | 2,8    | 14,8   | <loq   | <loq   | 7,5    | 3,2    | 66,9   | <loq   | <loq   | <loq   | 277,0  | <loq   | 103,8  | <loq   | 2,4    | <loq   | 58,3   | <loq   | <loq   | <loq   | 9,7    | 51,7   | 66820,0 | 1,5     | <loq   | 5,8    | 18911,1 |         |        |      |       |
| CHU CLA  | C2 | 2 | 30-03-18 | 11,1   | <loq   | 374,7   | 9,8    | 1638,8 | <loq   | <loq   | 660,7  | <loq   | <loq   | 282,2  | 163,4  | 53067,0 | 30,0   | 87,0   | <loq   | <loq   | 8,9    | <loq   | 621,8  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 149,4  | <loq   | 49,7   | <loq   | 24,3   | 1,0    | 338,5  | 19,8   | <loq   | <loq   | 10,3   | 459,9   | 69693,0 | <loq   | <loq   | 7,4     | 48814,4 |        |      |       |
|          | C3 | 2 | 14-04-18 | 3,1    | 2,0    | 140,8   | 20,6   | 4166,6 | <loq   | <loq   | 498,6  | <loq   | <loq   | 141,7  | 27,3   | 29856,9 | 6,5    | 18,9   | <loq   | <loq   | 4,9    | <loq   | 63,7   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 76,2   | <loq   | <loq   | 2,0    | <loq   | 125,3  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 90,9   | 41702,1 | <loq    | <loq   | 3,6    | 29577,1 |         |        |      |       |
| CHU MEY  | C2 | 2 | 22-03-18 | 3,0    | 64,2   | 120,8   | 19,1   | <loq   | <loq   | <loq   | 165,9  | <loq   | <loq   | 63,9   | <loq   | 5544,2  | 13,6   | 88,3   | <loq   | <loq   | 9,5    | 3,1    | 73,2   | <loq   | <loq   | 2,7    | <loq   | 128,8  | <loq   | 242,3  | <loq   | 8,8    | <loq   | 7,9    | 14,7   | <loq   | 2,9    | 1,6    | 27,1    | 17027,6 | 8,9    | <loq   | 41,3    | 6831,4  |        |      |       |
|          | C3 | 2 | 12-04-18 | 3,0    | 71,3   | 630,1   | 66,0   | <loq   | <loq   | <loq   | 177,7  | <loq   | 12,3   | 293,5  | <loq   | 4073,3  | 10,1   | 234,5  | <loq   | <loq   | 25,9   | 17,3   | 161,9  | <loq   | <loq   | 3,1    | <loq   | 396,6  | <loq   | 653,5  | <loq   | 18,4   | <loq   | 114,0  | 29,0   | <loq   | 0,8    | 4,1    | 44,3    | 15497,1 | 5,3    | 6,2    | 32,8    | 5898,5  |        |      |       |
|          | C1 | 2 | 03-03-18 | 3,0    | <loq   | <loq    | 1,7    | <loq   | <loq   | <loq   | 3,0    | <loq   | <loq   | 4,5    | <loq   | 1971,6  | 0,8    | 0,5    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 6,2    | <loq   | <loq   | <loq   | 24,7   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 0,4    | 5,4    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq    | 2839,9  | 0,7    | <loq   | <loq    | 4239,8  |        |      |       |
| LYC BELL | C2 | 2 | 24-03-18 | 3,0    | <loq   | <loq    | <loq   | 537,1  | <loq   | <loq   | 112,8  | <loq   | <loq   | 29,5   | <loq   | 17574,8 | 1,7    | 77,8   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 29,2   | <loq   | <loq   | 3,1    | <loq   | 2662,3 | <loq   | 1851,1 | <loq   | <loq   | <loq   | 7,3    | 316,8  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq    | 56501,7 | 5,3    | <loq   | 55,6    | 14756,6 |        |      |       |
|          | C3 | 2 | 14-04-18 | 3,0    | <loq   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | 98,7   | <loq   | <loq   | <loq   | 2,1    | <loq   | 8468,5  | 1,8    | 75,2   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 15,9   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 1617,3 | <loq   | 611,0  | <loq   | <loq   | 0,9    | 231,9  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq    | 14754,7 | 4,6    | <loq   | <loq    | 10882,1 |        |      |       |
|          | C1 | 2 | 02-03-18 | 3,0    | <loq   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 4,4     | <loq    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq    | <loq    | <loq   |      |       |
| LYC DUC  | C1 | 2 | 07-03-18 | 3,0    | 0,9    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq    | <loq    | <loq   |      |       |
|          | C3 | 2 | 13-04-18 | 2,9    | <loq   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 157,0   | <loq   | 1,8    | <loq    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq    | 1005,9  | <loq   | <loq | 499,8 |
|          | C1 | 2 | 01-03-18 | 2,9    | <loq   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 15,5    | <loq    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq    | <loq    | <loq   | 13,6 |       |
| LYC DILL | C2 | 2 | 06-04-18 | 18,0   | <loq   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 59,8    | <loq   | 1,1    | <loq    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq    | <loq    | 514,6  |      |       |
|          | C3 | 2 | 12-04-18 | 3,0    | 25,5   | <loq    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 222,7   | <loq   | 0,7    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 9,8    | <loq    | <loq    | <loq   | <loq   | <loq    | <loq    | 1480,3 |      |       |
|          | C1 | 2 | 02-03-18 | 3,0    | 119,8  | 36,2    | 50,6   | 2375,5 | <loq   | <loq   | 4,5    | 106,3  | <loq   | 7,4    | <loq   | 5611,5  | 118,3  | 132,0  | <loq   | <loq   | 0,7    | 6,9    | 174,1  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 98,3   | <loq   | 249,9  | <loq   | <loq   | 0,9    | 1,7    | <loq   | <loq   | <loq   | 2,6    | 19,1    | 16766,1 | <loq   | <loq   | <loq    | 8979,2  |        |      |       |
| FRISON   | C2 | 2 | 23-03-18 | 3,0    | 81,0   | 6,4     | 24,5   | 2829,2 | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 4,1    | <loq   | 3058,3  | 228,9  | 80,0   | <loq   | <loq   | 0,4    | 4,5    | 105,7  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 64,9   | <loq   | 178,0  | <loq   | 1,5    | <loq   | 3,2    | <loq   | <loq   | 2,2    | 19,2   | 11112,4 | <loq    | <loq   | <loq   | 6689,8  |         |        |      |       |
|          | C3 | 2 | 13-04-18 | 2,9    | 66,0   | 4,9     | 37,7   | 807,2  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 11,6   | <loq   | 3072,1  | 35,1   | 93,1   | <loq   | <loq   | <loq   | 5,2    | 225,2  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 67,7   | <loq   | 597,5  | <loq   | <loq   | <loq   | 5,6    | 2,4    | <loq   | <loq   | 2,6    | 14,4    | 7158,0  | <loq   | <loq   | <loq    | 3587,8  |        |      |       |

# Annexe 3

Tableau A3-4 : Concentration en résidus de médicaments mesurées dans les eaux des STEU (ng/L). (dans ce tableau loq=limites de quantification)

|      |     | Temps         | ABA    | ACE    | AC FENO | ASP    | ALP    | AMI    | ATE    | ATO    | BEZ    | BIS    | BRO    | CAF    | CAR     | CETI   | CLEN   | CLON   | CLOP   | DIAZ   | DICLO  | DISO   | DOX    | FLUOX  | GEM    | IBU    | IMI    | KETO   | LORA   | LOSAR  | Mepro  | METO   | NAPROX | NEFI   | NEVI   | NORD   | OXA    | PARA    | SALBU   | SILD   | SOT    | THEO    |         |
|------|-----|---------------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|---------|---------|--------|--------|---------|---------|
|      |     |               | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1  | ng.g-1 | ng.g-1 | ng.g-1  | ng.g-1  |
| DILL | ENT | C1 2 01-03-18 | 2,9    | 19,5   | 25,7    | 6,3    | <loq   | <loq   | <loq   | 22,0   | <loq   | <loq   | 17,8   | <loq   | 7601,5  | 27,1   | 0,4    | <loq   | <loq   | 1,4    | <loq   | 66,1   | <loq   | <loq   | <loq   | 194,0  | <loq   | 73,5   | <loq   | 11,1   | <loq   | 8,5    | 69,6   | <loq   | <loq   | 0,5    | 11,1   | 7360,3  | 1,2     | <loq   | 26,9   | 4210,3  |         |
|      |     | C2 2 22-03-18 | 3,0    | 131,1  | 207,7   | 96,9   | 378,0  | <loq   | 3,5    | 313,6  | <loq   | <loq   | 87,7   | <loq   | 16483,7 | 79,9   | 45,8   | <loq   | <loq   | 3,2    | <loq   | 265,4  | <loq   | <loq   | 3,1    | 740,5  | <loq   | 387,7  | <loq   | 52,4   | <loq   | 32,0   | 183,1  | <loq   | <loq   | 1,1    | 77,9   | 13576,7 | 7,5     | 4,8    | 93,2   | 10994,4 |         |
|      |     | C3 2 12-04-18 | 3,0    | 71,3   | 345,8   | 137,2  | <loq   | <loq   | <loq   | 15,7   | 111,1  | 390,4  | <loq   | 90,3   | <loq    | 5496,2 | 64,4   | 21,0   | <loq   | <loq   | 0,4    | <loq   | 208,5  | 0,0    | <loq   | <loq   | 623,4  | <loq   | 370,2  | <loq   | 24,6   | <loq   | 68,6   | 103,2  | <loq   | 0,5    | 27,6   | 2106,2  | 2,5     | <loq   | 53,3   | 237,8   |         |
| SOR  |     | C1 2 01-03-18 | 3,0    | 0,2    | 5,2     | 6,3    | <loq   | <loq   | <loq   | 2,9    | <loq   | <loq   | 8,8    | <loq   | 16,3    | 27,2   | 18,3   | <loq   | <loq   | 0,2    | <loq   | 56,2   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 34,0   | <loq   | 1,8    | <loq   | 4,7    | 15,9   | <loq   | <loq   | 0,4    | 28,5   | <loq    | <loq    | <loq   | 20,9   | 39,6    |         |
|      |     | C2 2 22-03-18 | 3,0    | 0,6    | 12,4    | 12,6   | <loq   | <loq   | <loq   | 9,1    | <loq   | <loq   | 13,2   | <loq   | 15,3    | 72,0   | 37,4   | <loq   | <loq   | 0,2    | <loq   | 72,7   | <loq   | <loq   | <loq   | 16,3   | <loq   | 51,3   | <loq   | 8,5    | <loq   | 7,3    | 16,4   | <loq   | <loq   | 0,6    | 46,4   | <loq    | <loq    | <loq   | 27,3   | 72,3    |         |
|      |     | C3 2 12-04-18 | 3,0    | 2,0    | 25,2    | 126,0  | <loq   | <loq   | <loq   | 14,8   | <loq   | <loq   | 43,6   | <loq   | 74,5    | 117,6  | 109,0  | <loq   | <loq   | 0,3    | <loq   | 347,9  | 0,0    | <loq   | <loq   | 2,6    | <loq   | 350,7  | <loq   | 11,5   | <loq   | 20,4   | 64,1   | <loq   | <loq   | 1,6    | 154,9  | <loq    | 2,2     | 4,5    | 101,5  | 515,2   |         |
| DILL | ENT | C1 2 01-03-18 | 2,9    | 39,1   | 78,8    | 25,3   | 293,8  | <loq   | <loq   | 57,8   | 26,7   | <loq   | 23,5   | <loq   | 3399,4  | 40,8   | 22,6   | <loq   | <loq   | 0,7    | <loq   | 75,6   | 0,0    | <loq   | <loq   | 2,0    | 207,5  | <loq   | 101,6  | <loq   | 11,1   | 0,3    | 15,0   | 56,5   | <loq   | 0,7    | 0,4    | 18,6    | 3440,9  | 1,5    | <loq   | 30,3    | 2851,4  |
|      |     | C2 2 22-03-18 | 2,9    | 36,3   | 89,2    | 23,7   | 124,1  | <loq   | <loq   | 43,4   | 17,6   | <loq   | 25,0   | <loq   | 1547,2  | 28,8   | 15,2   | <loq   | <loq   | 0,8    | <loq   | 73,5   | 0,0    | <loq   | <loq   | 182,2  | <loq   | 76,0   | <loq   | 12,6   | <loq   | 18,0   | 37,7   | <loq   | 0,7    | 0,3    | 16,0   | 1309,9  | 1,3     | 1,2    | 24,3   | 844,2   |         |
|      |     | C3 2 12-04-18 | 3,0    | 79,0   | 130,5   | 191,2  | <loq   | <loq   | <loq   | 235,6  | <loq   | <loq   | 52,7   | <loq   | 12958,1 | 55,0   | 36,2   | <loq   | <loq   | 1,9    | <loq   | 317,5  | 0,0    | <loq   | <loq   | 3,2    | 787,7  | <loq   | 537,3  | <loq   | 22,1   | <loq   | 20,4   | 198,0  | <loq   | <loq   | <loq   | 50,6    | 10030,4 | 3,9    | 3,9    | 75,0    | 9532,5  |
| SOR  |     | C1 2 01-03-18 | 3,0    | <loq   | 13,6    | 2,8    | <loq   | <loq   | <loq   | 6,1    | <loq   | 4,8    | <loq   | 15,5   | 69,1    | 45,5   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 76,7   | 0,0    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 23,3   | <loq   | 1,0    | <loq   | 10,0   | 23,3   | <loq   | 1,9    | 0,8    | 52,1   | <loq    | <loq    | 1,4    | 47,2   | <loq    |         |
|      |     | C2 2 22-03-18 | 3,0    | 2,2    | 34,1    | 8,5    | <loq   | <loq   | 3,0    | 9,2    | <loq   | <loq   | 25,6   | <loq   | 32,5    | 218,2  | 146,8  | <loq   | <loq   | 1,1    | <loq   | 175,6  | 0,1    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 102,6  | <loq   | 4,5    | <loq   | 25,8   | 69,2   | <loq   | 4,2    | 2,4    | 144,0  | <loq    | <loq    | 3,9    | 102,5  | 84,5    |         |
|      |     | C3 2 12-04-18 | 3,0    | 0,8    | 21,5    | 10,7   | <loq   | <loq   | <loq   | 7,6    | <loq   | <loq   | 11,3   | <loq   | 20,7    | 122,1  | 110,9  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 190,1  | 0,1    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 85,2   | 1,8    | 1,9    | <loq   | 13,9   | 53,7   | <loq   | 1,3    | 2,1    | 83,2   | <loq    | <loq    | 2,5    | 68,3   | 69,2    |         |
| GAI  | ENT | C1 2 02-03-18 | 3,0    | 87,2   | 95,1    | 67,6   | <loq   | <loq   | 4,0    | 173,1  | <loq   | <loq   | 35,0   | <loq   | 4597,5  | 64,6   | 39,9   | <loq   | <loq   | 3,5    | 13,8   | 89,3   | 0,2    | <loq   | <loq   | 1,8    | 516,7  | <loq   | 279,2  | <loq   | 16,1   | <loq   | 21,3   | 51,2   | <loq   | 1,5    | 4,3    | 49,9    | 6338,2  | 2,9    | <loq   | 81,0    | 2182,2  |
|      |     | C2 2 23-03-18 | 3,0    | 82,0   | 208,4   | 84,6   | 1237,4 | <loq   | <loq   | 143,7  | <loq   | <loq   | 72,8   | <loq   | 8408,3  | 55,7   | 73,9   | <loq   | <loq   | 3,7    | 9,4    | 276,2  | 0,2    | <loq   | <loq   | <loq   | 399,9  | <loq   | 296,0  | <loq   | 1,3    | <loq   | 64,5   | 113,6  | <loq   | 2,5    | 3,7    | 71,0    | 5579,0  | 4,7    | <loq   | 79,3    | 5693,5  |
|      |     | C3 2 13-04-18 | 3,0    | 59,4   | 182,4   | 80,0   | <loq   | <loq   | <loq   | 109,6  | <loq   | 2,0    | 58,9   | <loq   | 6277,4  | 53,4   | 22,0   | <loq   | <loq   | 1,5    | 9,6    | 248,3  | 0,2    | <loq   | <loq   | <loq   | 601,7  | <loq   | 371,6  | <loq   | 1,8    | <loq   | 34,6   | 168,1  | <loq   | 0,7    | 2,5    | 53,9    | 5374,3  | 2,2    | <loq   | 60,0    | 4480,7  |
| SOR  |     | C1 2 23-03-18 | 3,0    | <loq   | 29,4    | 14,9   | 0,0    | <loq   | <loq   | 19,9   | <loq   | <loq   | 19,8   | <loq   | 28,5    | 128,0  | 80,1   | <loq   | <loq   | 0,4    | 20,0   | 147,8  | 0,4    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 50,5   | 1,8    | 2,3    | <loq   | 22,5   | 25,4   | <loq   | 3,1    | 7,9    | 174,2  | <loq    | <loq    | 2,4    | 75,6   | 69,1    |         |
|      |     | C2 1 13-04-18 | 3,0    | <loq   | 8,9     | 2,4    | <loq   | <loq   | <loq   | 7,2    | <loq   | <loq   | 5,1    | <loq   | 8,2     | 45,4   | 24,5   | <loq   | <loq   | <loq   | 6,1    | 75,7   | 0,1    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 9,6    | <loq   | 0,4    | <loq   | 9,7    | 1,8    | <loq   | 1,9    | 2,7    | 40,7   | <loq    | <loq    | 1,0    | 25,5   | 18,4    |         |
|      |     | C3 2 13-04-18 | 3,0    | <loq   | 25,9    | 8,8    | 97,0   | <loq   | <loq   | 1,6    | 19,1   | <loq   | <loq   | 19,4   | <loq    | 16,0   | 119,7  | 124,2  | <loq   | <loq   | 0,6    | 16,8   | 35,8   | 0,4    | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 33,0   | 1,5    | 3,5    | <loq   | 30,6   | 15,6   | <loq   | 5,5    | 5,4    | 168,4   | <loq    | 0,7    | 1,3    | 92,1    | 72,4    |
| GOD  | ENT | C1 2 03-03-18 | 3,0    | 34,9   | 347,4   | 68,2   | 480,9  | <loq   | <loq   | 137,0  | 88,3   | <loq   | 50,0   | <loq   | 6802,9  | 29,1   | 34,3   | <loq   | <loq   | 6,7    | <loq   | 216,0  | <loq   | <loq   | <loq   | 277,7  | <loq   | 168,0  | <loq   | 41,5   | <loq   | 21,6   | 69,6   | <loq   | <loq   | 0,7    | 23,1   | 8515,5  | 2,2     | <loq   | 57,9   | 4822,6  |         |
|      |     | C2 2 22-03-18 | 3,0    | 24,1   | 100,6   | 69,4   | 318,0  | <loq   | <loq   | 62,6   | <loq   | <loq   | 19,5   | <loq   | 2898,9  | 27,3   | 16,8   | <loq   | <loq   | 1,5    | <loq   | 122,7  | <loq   | <loq   | <loq   | 168,1  | <loq   | 110,6  | <loq   | 27,5   | <loq   | 8,3    | 22,6   | <loq   | <loq   | 0,4    | 18,8   | 4335,7  | 1,3     | 1,0    | 24,9   | 2372,9  |         |
|      |     | C3 2 12-04-18 | 3,0    | 119,8  | 1162,4  | 440,2  | 3155,6 | <loq   | <loq   | 389,4  | 255,0  | <loq   | 159,6  | <loq   | 25009,8 | 287,6  | 103,8  | <loq   | <loq   | 5,3    | <loq   | 992,5  | <loq   | <loq   | <loq   | 1812,9 | <loq   | 998,3  | <loq   | 129,1  | <loq   | 63,6   | 645,9  | <loq   | <loq   | <loq   | 58,8   | 35892,2 | 6,0     | 12,5   | 142,2  | 19382,7 |         |
| SOR  |     | C1 2 03-03-18 | 3,0    | 1,3    | 33,4    | 5,1    | <loq   | <loq   | <loq   | 20,3   | <loq   | <loq   | 11,3   | <loq   | 64,0    | 50,5   | 28,1   | <loq   | <loq   | 3,4    | <loq   | 99,2   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 43,3   | <loq   | 8,8    | <loq   | 18,5   | 12,0   | <loq   | <loq   | 1,1    | 60,1   | <loq   | <loq    | <loq    | 94,4   | 111,8  |         |         |
|      |     | C2 2 22-03-18 | 3,0    | 7,0    | 58,1    | 65,7   | <loq   | <loq   | <loq   | 57,2   | <loq   | <loq   | 55,2   | <loq   | 4971,1  | 197,4  | 159,2  | <loq   | <loq   | 1,5    | <loq   | 290,6  | <loq   | <loq   | 2,5    | <loq   | 59,6   | <loq   | 338,3  | <loq   | 57,5   | <loq   | 43,4   | 44,0   | <loq   | <loq   | 3,1    | 30,8    | 165,1   | 4,6    | 4,5    | 192,2   | 601,0   |
|      |     | C3 2 12-04-18 | 3,0    | 2,5    | 20,7    | 21,7   | <loq   | <loq   | <loq   | 21,1   | <loq   | <loq   | 15,7   | <loq   | 129,3   | 47,2   | 26,8   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 160,6  | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | <loq   | 96,1   | <loq   | 14,0   | <loq   | 12,4   | 27,3   | <loq   | <loq   | 0,5    | 38,9   | 25,1    | <loq    | 3,5    | 65,8   | 248,2   |         |
| FDN  | ENT | C1 2 03-03-18 | 3,0    | 93,0   | 310,3   | 67,7   | 221,7  | <loq   | 4,2    | 226,0  | 76,7   | 12,4   | 79,0   | <loq   | 11558,7 | 80,3   | 53,4   | <loq   | <loq   | 2,3    | <loq   | 187,3  | <loq   | <loq   | 3,3    | 6,6    | 443,4  | <loq   | 250,9  | <loq   | 24,3   | <loq   | 48,2   | 120,1  | <loq   | <loq   | 0,8    | 89,9    | 13274,4 | 2,5    | <loq   | 118,9   | 10568,0 |
|      |     | C2 J1-1       | 1,0    | 12,8   | 66,6    | 30,2   | 595,3  | <loq   | 1,4    | 72,0   | 5,9    | 4,1    | 21,5   | <loq   | 5011,5  | 18,4   | 18,1   | <loq   | <loq   | 0,5    | <loq   | 53,3   | <loq   | <loq   | <loq   | 1,1    | 198,9  | <loq   | 109,9  | <loq   | 7,7    | <loq   | 12,1   | 59,8   | <loq   | 0,5    | 0,3    | 24,9    | 12514,5 | 1,3    | <loq   | 57,4    | 7033,9  |
|      |     | C2 J1-2       | 1,0    | 12,1   | 70,4    | 29,2   | 372,8  | <loq   | <loq   | 6      |        |        |        |        |         |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |        |         |         |        |        |         |         |

## Annexe 3

Tableau A3-5 : Concentration en stupéfiants mesurées dans les eaux des rivières échantillonnées (ng/L).

|             |            |             | Temps | BZE      | COC    | THC-COOH |
|-------------|------------|-------------|-------|----------|--------|----------|
|             |            |             | j     | ng.L-1   | ng.L-1 | ng.L-1   |
|             |            |             | 7     | 14,8     | 0,5    | 7,2      |
| RIV CAS NAV | C1         | 2018/03/07  | 7     | <loq     | 2,0    | <loq     |
|             | C1         | 2018/03/07  | 7     | <loq     | 0,7    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 315,9    | 11,0   | 46,8     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 46,2     | 2,5    | 15,0     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 440,1    | 13,6   | 40,7     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 1 488,8  | 26,4   | 76,4     |
| RIV JAMB    | C2         | 2018/03//17 | 1     | 906,0    | 4,8    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/17  | 1     | 8 577,1  | 50,6   | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/17  | 1     | 13 708,3 | 66,2   | <loq     |
|             | C2         | 2019/03/19  | 3     | 622,8    | 4,7    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03'19  | 3     | 1 001,7  | 6,5    | 41,7     |
|             | C2         | 2018/03/19  | 3     | 1 023,6  | 7,9    | 32,3     |
|             | C2         | 2019/03/23  | 7     | 500,7    | 10,8   | 79,1     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 261,4    | 6,2    | 38,2     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 896,8    | 12,9   | 79,1     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 776,1    | 19,9   | 99,5     |
| C3          | 2018/04/15 | 7           | 866,0 | 18,4     | 114,1  |          |
| RIV LEZ     | C1         | 2018/03/06  | 7     | 147,0    | 0,2    | <loq     |
|             | C1         | 2018/03/06  | 7     | 11,9     | <loq   | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 32,9     | 0,4    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 63,0     | 0,9    | <loq     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 373,3    | 6,8    | <loq     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 188,5    | 4,3    | <loq     |
| RIV MAD     | C1         | 2018/03/07  | 7     | 99,4     | 2,9    | <loq     |
|             | C1         | 2018/03/07  | 7     | 82,5     | 1,6    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 51,3     | 2,0    | 27,5     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 123,6    | 7,0    | 17,4     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 135,2    | 4,2    | 41,2     |
|             | C3         | 2018/0415   | 7     | 248,9    | 10,3   | 95,8     |
| RIV MON     | C1         | 2018/03/05  | 7     | 25,9     | <loq   | <loq     |
|             | C1         | 2018/03/05  | 7     | 38,9     | 1,1    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 251,6    | 6,6    | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 60,4     | 1,3    | 11,3     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 49,2     | 1,9    | 13,1     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 41,2     | 1,6    | 7,2      |
| RIV SAL     | C1         | 2018/03/06  | 7     | 52,0     | 0,5    | <loq     |
|             | C1         | 2018/03/06  | 7     | 61,9     | <loq   | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/03  | 7     | 223,3    | <loq   | <loq     |
|             | C2         | 2018/03/23  | 7     | 26,8     | 2,1    | <loq     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 429,6    | 1,0    | 16,5     |
|             | C3         | 2018/04/15  | 7     | 263,7    | 1,1    | 11,4     |

# Annexe 3

Tableau A3-6 : Concentrations en résidus de médicaments mesurées dans les eaux des rivières échantillonnées (ng/L).

|            |    | Temps       | ABA                | ACE                | AC FENO            | ASP                | ATE                | BIS                | CAF                | CAR                | CETI               | DICLO              | GEM                | IBU                | KETO               | LOSAR              | METO               | NAPROX             | OXA                | PARA               | SALBU              | SOT                | THEO               |           |
|------------|----|-------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|-----------|
|            |    | j           | ng.L <sup>-1</sup> |           |
|            |    | loq         | 7                  | 0,01               | 1,04               | 0,07               | 53,50              | 0,67               | 1,50               | 20,48              | 0,22               | 0,44               | 0,05               | 1,26               | 0,54               | 0,28               | 1,72               | 0,26               | 0,17               | 4,68               | 0,47               | 0,34               | 89,17              |           |
| RIV CASNAV | C1 | 2018/03/07  | 7                  | 0,01               | <loq               | <loq               | <loq               | <loq               | <loq               | 10,98              | 0,32               | <loq               | 0,59               | <loq               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,03               | <loq               | <loq               | <loq               | <loq               | 4,13               |           |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 0,03               | <loq               | <loq               | <loq               | <loq               | <loq               | 23,38              | 0,25               | 0,04               | <loq               | 0,07               | <loq               | 11,06              |           |
|            | C3 | 2018/04/15  | 7                  | 1,83               | 10,90              | 4,06               | 207,51             | 21,21              | 4,72               | 2 283,08           | 7,44               | 2,93               | 13,63              | 0,12               | 47,17              | 20,61              | 0,85               | 3,19               | 17,35              | 7,67               | 2 543,22           | <loq               | 8,93               | 2 385,95  |
| RIV JAMB   | C2 | 2018/03//17 | 1                  | 2,95               | 7,04               | 1,56               | <loq               | 5,65               | 3,20               | 715,31             | 14,32              | 5,48               | 20,63              | 3,32               | 11,72              | 13,83              | 1,54               | 1,73               | 2,71               | 5,03               | 626,59             | <loq               | 6,20               | 695,01    |
|            | C2 | 2018/03/17  | 1                  | 33,23              | 46,84              | 13,35              | <loq               | 52,41              | 28,43              | 5 238,05           | 163,50             | 53,05              | 237,12             | 34,71              | 223,13             | 151,00             | 16,61              | 12,15              | 43,83              | 50,65              | 6 354,37           | 5,62               | 65,06              | 4 870,13  |
|            | C2 | 2018/03/17  | 1                  | 39,88              | 103,48             | 28,85              | <loq               | 71,85              | 59,70              | 9 239,20           | 191,76             | 60,79              | 304,48             | 40,12              | 313,54             | 199,82             | 28,36              | 20,16              | 38,61              | 55,49              | 10 544,97          | 5,91               | 124,61             | 10 240,13 |
|            | C2 | 2019/03/19  | 3                  | 2,77               | 16,64              | 0,95               | <loq               | 2,36               | 5,54               | 382,96             | 12,49              | 2,92               | 13,33              | 3,31               | 12,09              | 7,53               | 1,06               | 3,18               | 3,91               | 5,22               | 231,91             | 0,25               | 4,53               | 300,31    |
|            | C2 | 2018/03/19  | 3                  | 4,75               | 23,42              | 1,57               | <loq               | 6,90               | 6,58               | 1 759,00           | 18,31              | 5,35               | 22,09              | 4,62               | 24,47              | 11,81              | 3,20               | 5,84               | 5,28               | 7,37               | 434,94             | <loq               | 7,53               | 1 403,45  |
|            | C2 | 2018/03/19  | 3                  | 4,35               | 10,49              | 1,63               | 79,14              | 4,69               | 4,39               | 440,15             | 19,06              | 4,88               | 22,36              | 5,40               | 21,35              | 13,27              | 0,66               | 2,55               | 6,03               | 8,03               | 332,07             | <loq               | 7,68               | 405,45    |
|            | C2 | 2019/03/23  | 7                  | 5,06               | 11,64              | 2,30               | 95,68              | 3,52               | 5,49               | 387,27             | 23,84              | 6,68               | 19,18              | 6,70               | 31,39              | 23,25              | 1,88               | 2,71               | 6,85               | 11,60              | 183,92             | <loq               | 6,14               | 238,07    |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 2,94               | 10,20              | 1,73               | 61,35              | 2,32               | 4,53               | 208,27             | 16,11              | 4,07               | 13,34              | 4,55               | 11,67              | 13,74              | 0,45               | 2,81               | 3,13               | 6,46               | 37,22              | <loq               | 3,53               | 113,43    |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 6,35               | 14,43              | 3,63               | 177,69             | 7,75               | 6,79               | 518,59             | 32,59              | 9,36               | 24,55              | 8,67               | 39,38              | 25,62              | 2,37               | 3,45               | 7,66               | 13,66              | 269,74             | 0,20               | 8,50               | 335,35    |
|            | C3 | 2018/04/15  | 7                  | 3,50               | 11,87              | 3,56               | <loq               | 3,81               | 8,70               | 474,26             | 26,86              | 5,54               | 17,91              | 6,20               | 26,66              | 27,00              | 1,80               | 7,04               | 1,37               | 9,16               | 118,30             | <loq               | 6,29               | 269,91    |
| RIV LEZ    | C1 | 2018/03/06  | 7                  | <loq               | 0,21               | 0,07               | <loq               | 0,22               | 0,13               | 19,55              | 1,16               | 0,56               | 1,96               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,05               | 0,12               | 0,09               | 0,91               | 2,15               | <loq               | 0,70               | 6,65      |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 0,08               | 1,73               | 0,18               | <loq               | 1,24               | 1,02               | 515,09             | 8,63               | 3,05               | 10,32              | <loq               | <loq               | <loq               | 0,15               | 1,10               | 0,51               | 7,90               | <loq               | <loq               | 4,73               | 30,74     |
|            | C3 | 2018/04/15  | 7                  | 0,07               | 1,01               | 0,30               | <loq               | 0,48               | 0,60               | 40,62              | 4,06               | 1,91               | 5,90               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,11               | 0,71               | 0,41               | 3,75               | <loq               | <loq               | 2,00               | 17,97     |
| RIV MAD    | C1 | 2018/03/07  | 7                  | 0,61               | 1,69               | 0,97               | <loq               | 1,32               | 0,83               | 52,83              | 5,55               | 3,20               | 15,42              | <loq               | 3,37               | 4,68               | 0,90               | 1,11               | 1,97               | 5,24               | 9,47               | <loq               | 6,47               | 21,97     |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 1,21               | 5,39               | 2,43               | 93,04              | 1,45               | 2,76               | 105,96             | 19,80              | 13,53              | 25,54              | <loq               | 7,25               | 9,53               | 1,16               | 2,34               | 4,33               | 25,32              | 20,19              | <loq               | 14,17              | 45,29     |
|            | C3 | 2018/04/15  | 7                  | 0,52               | 5,59               | 3,27               | <loq               | 1,78               | 1,62               | 128,57             | 10,13              | 6,36               | 22,53              | <loq               | <loq               | 12,58              | 2,68               | 1,48               | 4,32               | 9,30               | <loq               | <loq               | 11,20              | 55,54     |
| RIV MON    | C1 | 2018/03/05  | 7                  | 0,26               | 0,37               | 0,41               | <loq               | 0,58               | 0,20               | 65,77              | 1,00               | 0,34               | 2,41               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,07               | <loq               | 0,63               | 0,48               | 38,11              | <loq               | 0,76               | 32,69     |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 0,56               | 1,24               | 0,51               | 205,78             | 0,78               | 0,46               | 250,47             | 2,53               | 1,23               | 4,67               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,08               | 0,54               | 0,72               | 2,28               | 17,66              | <loq               | 1,07               | 25,32     |
|            | C3 | 2018/04/15  | 7                  | 0,15               | 0,80               | 0,32               | <loq               | <loq               | 0,40               | 64,43              | 1,31               | 1,01               | 3,50               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,06               | 0,25               | 0,21               | 2,41               | 10,47              | <loq               | 0,70               | 12,40     |
| RIV SAL    | C1 | 2018/03/06  | 7                  | 0,26               | 1,38               | 0,95               | <loq               | 1,43               | 0,87               | 59,40              | 2,81               | 0,85               | 5,97               | <loq               | 3,05               | <loq               | 0,63               | 0,26               | 0,24               | 1,86               | 11,25              | <loq               | 3,33               | 39,82     |
|            | C2 | 2018/03/23  | 7                  | 0,36               | 2,38               | 0,37               | 132,80             | 1,43               | 1,28               | 431,72             | 7,07               | 1,27               | 6,63               | <loq               | <loq               | <loq               | 0,56               | 0,25               | 0,59               | 3,63               | 11,99              | <loq               | 6,15               | 56,08     |
|            | C3 | 2018/04/15  | 7                  | 0,58               | 2,68               | 0,61               | <loq               | 1,95               | 1,75               | 144,83             | 8,15               | 1,47               | 7,89               | <loq               | 4,61               | <loq               | 0,44               | 0,48               | 1,27               | 3,80               | 52,54              | <loq               | 6,58               | 70,76     |

## Annexe 4

### Questionnaire employé par l'équipe de l'Université d'Aix-Marseille

➤ **Note : Question permettant de faire les hypothèses de centralité, concernant la structure.**

Question : « Quand on vous dit « **Médicaments** » quels sont les 5 mots ou expressions qui vous viennent spontanément à l'esprit (*À noter rapidement, sans réfléchir*) :

Classez ensuite de 1 à 5 ces mots/expressions du plus important (1) au moins important (5). Veuillez noter votre chiffre en face de chaque mot dans les cases grises.

---

➤ **Note : Mesures d'implication du sujet**

**Voici maintenant une série de questions sur la santé. Veuillez répondre en cochant le chiffre correspondant le mieux à votre opinion.**

Je suis quelqu'un qui se sent concerné par les questions de santé

Pas du tout    1    2    3    4    5    6    7    Tout à fait

En général, ma santé est un sujet qui me préoccupe

Pas du tout    1    2    3    4    5    6    7    Tout à fait

Si vous avez des questions concernant votre santé ou la santé en général, auprès de qui ou par quel biais recherchez-vous des réponses ? (plusieurs réponses possibles)

- Votre médecin traitant
- Votre pharmacien
- La famille, votre entourage proche
- Les médias (Internet, télévision, radio, magazine, ...)
- Autre (*précisez*) : .....

➤ **Note : Mesure des attitudes**

**Voici maintenant une série de questions concernant vos opinions sur les médicaments. Pour chaque proposition, indiquez le chiffre qui correspond le mieux à votre opinion.**

Êtes-vous très favorable, plutôt favorable, plutôt pas favorable ou pas du tout favorable aux médicaments en général ?

Prendre des médicaments est pour vous :

|                |   |   |   |   |   |   |   |             |
|----------------|---|---|---|---|---|---|---|-------------|
| Inutile        | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | Utile       |
| Bénéfique      | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | Dangereux   |
| Conseillé      | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | Déconseillé |
| Une protection | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | Un danger   |

Vous arrive-t-il de prendre des médicaments sans prescription médicale ?

- oui                       non

Si oui, pour quel(s) type(s) de symptôme(s) ?.....

➤ **Note : Comportement de tri**

**Voici maintenant une série de questions concernant vos opinions sur la gestion des médicaments. Pour chaque proposition, indiquez le chiffre qui correspond le mieux à votre opinion.**

Je fais le tri dans mes médicaments chaque année

Pas du tout    1    2    3    4    5    6    7    Tout à fait

Je trie mes médicaments comme mes autres déchets (cartons, plastique...)

Pas du tout    1    2    3    4    5    6    7    Tout à fait

Pour moi, seuls les médicaments périmés sont recyclables

## Annexe 4

Pas du tout    1       2       3       4       5       6       7       Tout à fait

Pour moi, quand on trie les médicaments, il faut séparer l'emballage du contenu

Pas du tout    1       2       3       4       5       6       7       Tout à fait

Les médicaments qui ne sont plus utilisés doivent être rapportés chez le pharmacien

Pas du tout    1       2       3       4       5       6       7       Tout à fait

Dans ma pharmacie, on trouve des informations sur la récupération (recyclage) des médicaments non utilisés

Pas du tout    1       2       3       4       5       6       7       Tout à fait

Mon pharmacien ne récupère pas les médicaments non utilisés

Pas du tout    1       2       3       4       5       6       7       Tout à fait

---

**Pour finir, nous vous demandons de répondre à quelques questions nous permettant de vous situer dans le cadre de cette enquête. Répondez sincèrement, nous vous rappelons que ce questionnaire est ANONYME**

Quel âge avez-vous ? |\_\_|\_\_| ans

Vous êtes :  Une femme        Un homme

Quel est le diplôme le plus élevé que vous ayez obtenu ? (Cochez la réponse)

Diplôme avant le Baccalauréat

Baccalauréat

Au-delà du baccalauréat

Actuellement, quelle est votre situation (plusieurs choix possibles) :

Étudiant(e)

Inscrit(e) à Pôle Emploi avec ou sans allocations

Patron de l'industrie, du commerce

Agriculteur

Artisan, commerçant

Cadre supérieur, profession libérale, professeur, profession scientifique

Instituteur, profession intermédiaire, technicien, contremaître

Employé administratif ou de commerce, agent de service

Ouvrier qualifié, chauffeur, ouvrier agricole, ouvrier non qualifié

Retraité(e)

Pas sur le marché du travail (éducation des enfants...)

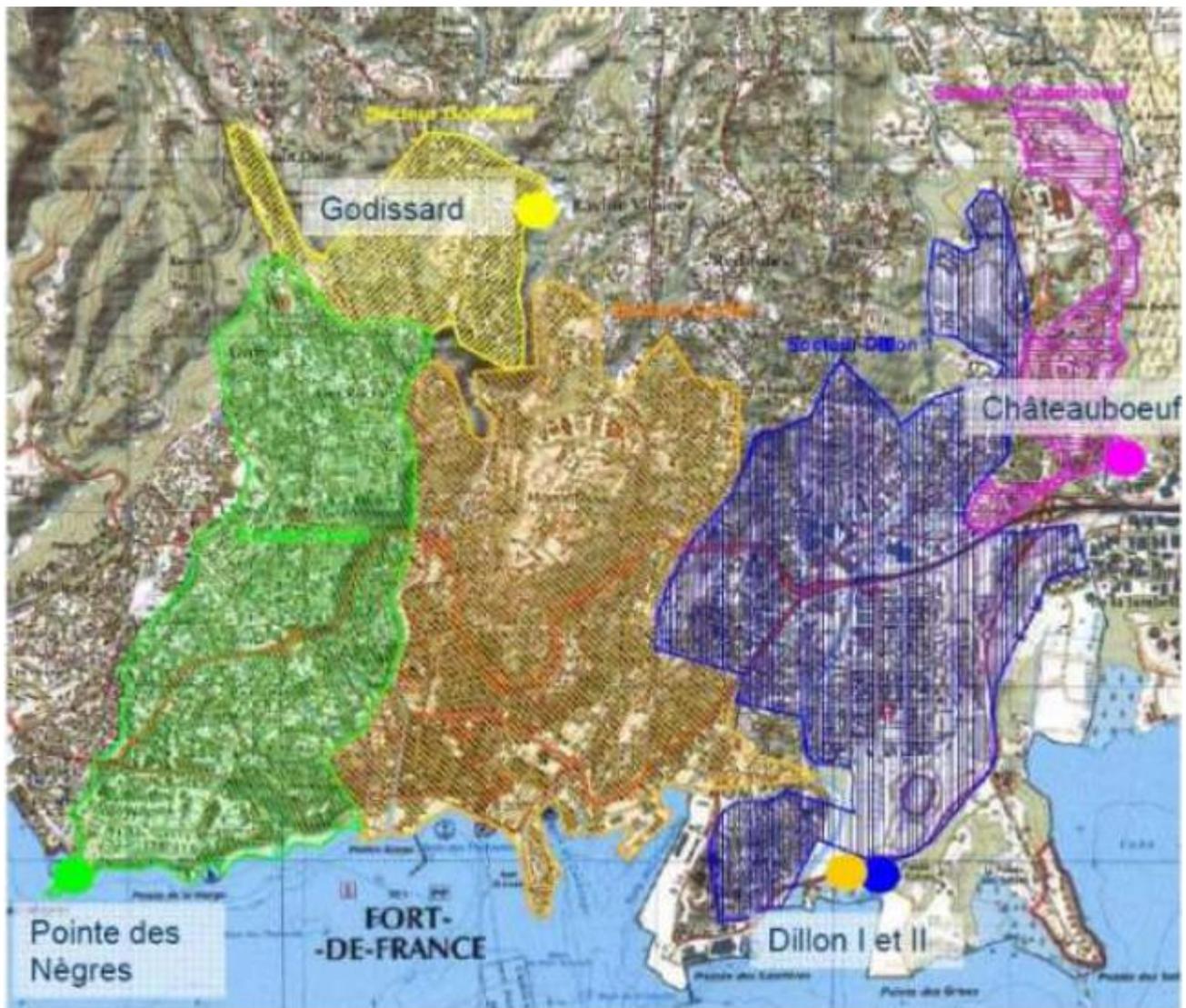
Avez-vous une (ou plusieurs) maladie(s) chronique(s), c'est-à-dire une maladie qui dure longtemps – au moins six mois – et qui peut nécessiter des soins réguliers ? (par ex : diabète, asthme, etc.)

Oui        Non

Si oui, laquelle (lesquelles) ?.....

## Annexe 5

Carte des bassins de collecte liés aux STEU (Dossier ODYSSI, SAFEGE, 2017)



# Annexe 6

Carte des STEU de Martinique (Observatoire de l'eau de Martinique)

