



Caractérisation des flux de Cu et de Zn tout au long du continuum aliment – animal – déjections – effluents dans les systèmes porcins

Emma GOURLEZ (1,2,3), Fabrice BELINE (2), Jean-Yves DOURMAD (1), Alessandra MONTEIRO (3), Fabrice GUIZIOU (2), Anne LE BIHAN (2), Francine DE QUELEN (1)

(1) UMR PEGASE, INRAE, Institut Agro, 35590 Saint-Gilles

(2) UR OPAALE, INRAE, 35044 Rennes

(3) Animine, 10 rue Léon Rey Grange, 74960 Annecy

francine.dequelen@inrae.fr

Caractérisation des flux de Cu et de Zn tout au long du continuum aliment – animal – déjections – effluents dans les systèmes porcins

L'objectif de cette étude était de déterminer le devenir du cuivre (Cu) et du zinc (Zn) tout au long du continuum allant de l'alimentation animale jusqu'aux effluents traités afin d'identifier les leviers à mettre en œuvre pour réduire leurs impacts environnementaux. Les niveaux de Cu et de Zn dans l'alimentation, les principales modalités de gestion des effluents, ainsi que l'interaction entre les deux, ont été étudiés. Pour cela, des fèces de 24 porcs en finition nourris avec quatre régimes alimentaires différents, ont été collectées : un régime sans supplémentation en Cu et Zn (NS) ; deux régimes supplémentés en oxydes (O_{REG}) ou en sulfates (S_{REG}) à des niveaux réglementaires et un régime supplémenté en oxydes à un niveau intermédiaire (O_{INT}). Les échantillons de fèces ont ensuite été soumis à deux types de traitement : une digestion anaérobie et un compostage. Les teneurs en Cu et Zn des fèces obtenues variaient respectivement entre 38 et 188 mg Cu et entre 191 et 728 mg Zn par kg de matière sèche, selon le régime alimentaire. Après traitements, la dégradation d'une fraction importante de la matière organique concentrait les teneurs en Cu et Zn par rapport à la matière sèche. Ainsi, les teneurs étaient multipliées par deux, quel que soit le régime alimentaire. Pour tous les régimes alimentaires, la digestion anaérobie entraînait une diminution de la part extractible à l'eau du Cu et du Zn, et donc de leur disponibilité dans les sols. Le compostage ne modifiait pas la part extractible à l'eau du Cu mais diminuait celle du Zn. Cette étude montre que l'alimentation est le principal levier de réduction des teneurs en Cu et Zn des effluents d'élevage. Les traitements testés sont, quant à eux, des outils de pilotage des flux de Cu et de Zn pour réduire leur impact environnemental.

Characterization of Cu and Zn flows along the feed – animal – excreta – waste continuum in pig systems

The aim of this study was to determine the fate of copper (Cu) and zinc (Zn) along the continuum from feed to treated waste in order to identify mechanisms that can be used to reduce their environmental impacts. The contents of Cu and Zn in pig feed, the waste management strategy and their interactions were studied. Faeces were collected from 24 finishing pigs fed one of four diets: a finishing basal diet with no Cu or Zn supplementation (NS), two diets with Cu and Zn supplementations as oxides (O_{REG}) or sulphates (S_{REG}) at EU regulatory levels, and an intermediate diet with Cu and Zn supplementation as oxides (O_{INT}). Two types of manure treatment were applied: anaerobic digestion (AD) and composting. The Cu and Zn concentrations of the faeces obtained varied from 38-188 and 191-728 mg/kg dry matter (DM), respectively, depending on the diet. After manure treatment, the degradation of much of the organic matter significantly increased the Cu and Zn concentrations per kg DM, doubling them, regardless of the dietary concentration and the form of Cu and Zn supplemented. For each diet, AD decreased the water-extractible fraction of Cu and Zn and thus their availability when applied to soil. Composting did not influence the water-extractible fraction of Cu but did decrease that of Zn. This study shows that diet is the main mechanism for reducing Cu and Zn concentrations in livestock waste. The treatments tested are tools for managing Cu and Zn flows in order to reduce their environmental impacts.

INTRODUCTION

Le cuivre (Cu) et le zinc (Zn) sont des nutriments essentiels pour les cultures, mais leur accumulation dans les sols agricoles peut avoir un impact négatif sur l'environnement. Ils peuvent effectivement s'accumuler dans les sols après l'épandage du lisier de porcs, entraînant à moyen ou long terme un risque de toxicité pour les micro-organismes et les plantes du sol (McGrath *et al.*, 1995). Le Cu et le Zn sont également des éléments essentiels pour la nutrition minérale des porcs, mais plus de 90 % du Cu et du Zn ingérés sont excrétés via les fèces, leur taux de rétention par les animaux étant faible (Dourmad *et al.*, 2015). La forme de Cu et de Zn dans les effluents, liée à leurs propriétés chimiques et physiques, est aussi un paramètre important à considérer, afin de prédire leur mobilité dans les sols et leur possible disponibilité pour les plantes, et ainsi leur risque de toxicité (Legros *et al.*, 2017). Selon Doelsch *et al.* (2008) et Legros *et al.* (2010), la forme majoritaire du Cu dans les effluents porcins est Cu(I)-S, et pour le Zn, les formes Zn²⁺-S et Zn²⁺-O. Selon la littérature, le Cu se trouve dans des fractions peu phytodisponibles et mobiles. Quant au Zn, il se trouve dans des fractions plus mobiles (Legros *et al.*, 2008). En considérant le continuum allant de l'alimentation animale jusqu'au retour au sol des effluents, deux leviers majeurs sont identifiés pour une gestion optimale des flux de Cu et de Zn dans le système d'élevage porcin. Le premier concerne l'alimentation via la modification des niveaux de Cu et de Zn et leur forme d'apport. Le second consiste à planifier une chaîne de traitement permettant d'adapter les caractéristiques de l'effluent final à des objectifs environnementaux. Plusieurs études ont évalué différentes stratégies d'alimentation et montrent qu'il est possible de réduire encore d'avantage le Cu et le Zn dans l'alimentation des porcs que les niveaux imposés par les réglementations actuelles (Peter *et al.*, 2001 ; Ma *et al.*, 2018 ; Ding *et al.*, 2021). Ces dernières années, la réglementation européenne a déjà permis une réduction considérable de l'ingestion et de l'excrétion du Cu et du Zn, en réduisant les niveaux alimentaires maximums autorisés. Par ailleurs, quelques études ont évalué l'effet des traitements sur le devenir du Cu et du Zn, comme la séparation de phases (Møller *et al.*, 2007 ; Loussouarn *et al.*, 2014), la digestion anaérobie (Marcato *et al.*, 2009 ; Legros *et al.*, 2017) et le compostage (Hsu et Lo, 2001) ; Santos *et al.*, 2018). Cependant, aucune étude n'a combiné stratégies alimentaires et traitements des effluents et aucune n'a étudié le comportement du Cu et du Zn sur l'ensemble du continuum aliment-porc-excrétions-effluents. Aussi, une meilleure compréhension du comportement de ces éléments tout au long de ce continuum en fonction de la composition des aliments et de la chaîne de gestion des effluents est nécessaire pour proposer des stratégies de réduction de l'impact environnemental du Cu et du Zn en production porcine. L'objectif de cette étude était ainsi de déterminer le devenir du Cu et du Zn tout au long du continuum alimentation-excrétions-effluents en étudiant l'effet (i) des teneurs et des formes d'apport en Cu et Zn des aliments et (ii) de la chaîne de gestion des effluents porcins (digestion anaérobie et compostage), ainsi que l'interaction entre les deux.

1. MATERIEL ET METHODES

1.1. Animaux et régimes alimentaires

Cette étude a été réalisée entre mars et juin 2022 au sein de l'unité expérimentale de physiologie et de phénotypage du porc

(doi : 10.15454/1.5573932732039927E12) d'INRAE située à Saint-Gilles (35, France). L'expérimentation a été autorisée par le Comité d'éthique en expérimentation animale de Rennes (autorisation sur les animaux vivants n° 2021041318055831).

1.1.1. Régimes alimentaires

Les porcs ont été assignés à quatre régimes alimentaires, basés sur la composition de la ration de base : NS, correspondant aux régimes de base, sans supplémentation en Cu et Zn ; O_{INT}, supplémenté avec des oxydes de Cu et Zn (Cu₂O et ZnO ; CoRouge® et Hizox®, Animine, France) avec des teneurs intermédiaires en minéraux ; O_{REG}, contenant une source d'oxyde de Cu et de Zn et S_{REG}, contenant des sulfates de Cu et de Zn (sources de référence) à des teneurs proches des teneurs maximales autorisées par la réglementation européenne (25 mg Cu et 120 mg Zn /kg d'aliments). Les concentrations en Cu et Zn des régimes ont été analysées (Tableau 1).

Tableau 1 – Teneurs en Cu et Zn des régimes expérimentaux (en mg/kg d'aliments)

	Régimes expérimentaux			
	NS	O _{INT}	O _{REG}	S _{REG}
Cu	4,9	7,1	21,0	22,1
Zn	32,6	53,4	111,0	110,0

1.1.2. Animaux et dispositif expérimental

L'expérience a été menée en trois répétitions de huit porcs (deux porcs par régime alimentaire et par répétition). Vingt-quatre porcs en finition Piétrain × (Landrace × Large White) ont été affectés aux quatre régimes alimentaires en fonction du poids vif (PV) initial et de l'origine génétique. Seuls des mâles entiers ont été utilisés afin de faciliter la collecte séparée des fèces et de l'urine. Les porcs ont d'abord été logés dans des cases individuelles pendant 15 jours (de 58,7 ± 6,1 kg PV à 75,3 ± 7,7 kg PV) et ont été nourris avec le régime NS, correspondant à une phase de déplétion (Phase I), afin de diminuer leurs réserves en Cu et Zn et ainsi homogénéiser ces niveaux de réserves entre tous les animaux. Ensuite, une phase de 10 jours d'adaptation aux différents régimes expérimentaux a été mise en place (phase II, jusqu'à 81,2 ± 9,0 kg PV). Finalement, les porcs ont été logés individuellement pendant 10 jours dans des cages de digestibilité en acier inoxydable permettant un contrôle des quantités ingérées et la collecte séparée de l'urine et des fèces, dans une salle à environnement climatique contrôlé (24 °C) (jusqu'à 91,5 ± 9,0 kg PV). Après une période d'adaptation de 3 jours à la cage de digestibilité (phase III), les excréta ont été totalement collectés quotidiennement sur une période de 7 jours (phase IV). Tous les porcs ont reçu leur alimentation sous forme de granulés deux fois par jour (8h30 et 15h30) en deux repas égaux. Pendant toute la durée de l'expérience, les animaux ont été nourris selon un plan d'alimentation basé sur leur poids métabolique (140 g/kg PV^{0,6} par jour). Pendant la phase de collecte, les refus alimentaires ont été collectés et pesés chaque jour.

1.2. Collecte des effluents

Pendant l'essai de digestibilité (7 jours), l'urine de chaque porc a été collectée quotidiennement et pesée à la fin de l'expérimentation. À la fin de la collecte, un échantillon d'urine représentant 2 % de la collecte totale a été prélevé par porc et centrifugé (1500 × g, 10 min, 4 °C), le surnageant a été récupéré et stocké à -20 °C jusqu'à analyse. Les fèces ont également été collectées quotidiennement par porc, pesées et stockées à 4 °C.

À la fin de la période de collecte, les fèces ont été mélangées et homogénéisées pour chaque porc. Une partie des fèces a été sous-échantillonnée pour l'analyse de la matière sèche (MS) et des cendres, puis lyophilisée, broyée (1 mm) et stockée à 4°C jusqu'à analyse des minéraux. Les fèces restantes ont été mélangées et homogénéisées par régime alimentaire et stockées à -20°C jusqu'aux essais de digestion anaérobie, ou stockées à 4°C jusqu'aux essais de compostage *in vitro*.

1.3. Traitement des effluents

1.3.1. Digestion anaérobie

La digestion anaérobie (DA) a été réalisée dans des bioréacteurs de 500 ml en utilisant un bioréacteur par régime alimentaire (NS, O_{INT}, O_{REG}, S_{REG}) avec un volume de travail de 200 mL. Chaque bioréacteur a été rempli avec 175 mL de digestat, provenant d'une unité expérimentale de méthanisation, pour fournir des micro-organismes anaérobies et 25 mL d'un mélange de fèces + eau (ratio 1:1). Au début de l'expérimentation et après chaque remplissage, la phase gazeuse a été purgée avec de l'azote. La température du bioréacteur a été maintenue à 38°C durant toute l'expérimentation. Chaque réacteur a été alimenté de manière semi-continue pendant 90 jours avec un mélange d'eau et de fèces (1:1), en prélevant 50 g de digestat et en ajoutant 50 g du mélange d'eau et de fèces hebdomadairement, ce qui a conduit à un temps de séjour hydraulique (HRT) de 28 jours. Le pH a été contrôlé une fois par semaine et la production de gaz mesurée chaque jour, afin de vérifier le bon fonctionnement du processus. À la fin de l'expérience, le digestat de chaque bioréacteur a été collecté (durée des essais > 3 × HRT).

1.3.2. Compostage

Les essais de compostage ont été menés uniquement sur les fèces des régimes alimentaires NS, O_{REG} et S_{REG}. Des mélanges de fèces et de paille ont été préparés. La paille a été utilisée pour structurer le produit et faciliter ainsi son aération et a été ajoutée avec un ratio massique fèces:paille de 9:1. La paille contenait 2,67 mg de Cu et de 23 mg de Zn /kg MS. Ainsi, la paille représentait 25 % de la MS et moins de 4 % du Cu et du Zn du mélange. Le dispositif expérimental comprenait six cellules de respirométrie. Chaque mélange (4 kg par cellule) a été analysé en duplicat et a été disposé dans une cellule de respirométrie sans compactage. Chaque cellule a été aérée pendant 5 semaines à 75 L/h. Le mélange a été retourné deux fois au cours de l'essai (après 16 et 26 jours). Les concentrations en O₂ et CO₂ des flux d'air entrant et sortant ont été contrôlées fréquemment, afin de vérifier le bon fonctionnement du processus. Toutes les cellules ont été maintenues à 40 °C afin de comparer la biodégradabilité des différents mélanges dans les mêmes conditions optimales. À la fin du test de respirométrie, les mélanges ont été retirés de leurs cellules, pesés et échantillonnés pour analyses. Un bioréacteur aérobie

de compostage (O_{REG}) a été retiré des résultats, car les bonnes conditions de compostage n'ont pas été atteintes en raison d'une défaillance de l'appareil.

1.4. Caractérisation des fractions de cuivre et zinc extractibles à l'eau

Les fractions extractibles à l'eau ont été déterminées sur les fèces brutes, les digestats, les mélanges de fèces et paille et les composts, pour chaque régime alimentaire considéré. Pour cela, les échantillons ont été mélangés avec de l'eau avec un ratio eau/produits solides de 5:1 (fèces, mélanges paille/fèces et composts) ou dans un rapport eau/digestat de 1:2 (préalablement mélangé avec de l'eau avant la DA dans un rapport 1:1). Ces mélanges ont été homogénéisés pendant une heure avant de récupérer le surnageant de chaque mélange par centrifugation (20000 × g, 15min, 20°C). Ces surnageants ont été analysés afin de déterminer la concentration en macro-éléments (Ca, Mg, P, K, Na) et en oligo-éléments (Cu, Mn, Zn). Après avoir soustrait la quantité d'éléments apportée par l'eau ajoutée (représentant une très faible quantité), la fraction obtenue dans le surnageant a été considérée comme la fraction extractible à l'eau du produit organique considéré.

1.5. Analyses chimiques

La concentration en MS de chaque échantillon (fèces brutes, digestat final, compost final) a été quantifiée après mise à l'étuve à 103°C pendant 24h et les concentrations en cendres, et en matière organique (MO) ont été déterminées après incinération au four à moufle à 550°C pendant 18h. Les analyses minérales (Ca, Mg, P, K, Na, Cu, Mn, Zn) ont été réalisées sur les échantillons d'urines et de fèces par porc, de paille, et de compost et de digestat sur un pool par régime, à l'aide d'un spectromètre d'émission optique à plasma à couplage inductif (ICP-OES, Agilent 5110). Pour les fèces et les effluents, les analyses ont été réalisées selon la norme NF-EN 16174 et un témoin de référence a été utilisé pour valider les résultats (ERM®, CC-144, Boues d'épuration). Pour les échantillons d'urines, les échantillons ont été acidifiés avec du HNO₃ (4 %) avant analyses à l'ICP-OES et un contrôle a été utilisé pour valider les résultats (Seronorm™, éléments traces Urine L-1). Toutes les analyses ont été effectuées en duplicat dans les laboratoires INRAE.

1.6. Statistiques

Les analyses statistiques ont été réalisées à l'aide du logiciel R studio (version 4.1.2, R Foundation, Vienne, Autriche). Des modèles linéaires à effets mixtes ont été utilisés avec la fonction "lm" du package "nlme". Pour les performances des animaux et les données de bilan d'ingestion et d'excrétion, les modèles prenaient en compte les effets du régime alimentaire et de la répétition, ainsi que leur interaction.

Tableau 2 – Effet des régimes expérimentaux sur les performances de croissance des porcs pendant les phases III et IV¹

	Régimes expérimentaux				Statistiques	
	NS	O _{INT}	O _{REG}	S _{REG}	Etr	P
PV initial, kg	82,4	79,4	82,3	82,7	2,7	0,438
PV final, kg	92,3	89,9	91,8	94,1	3,2	0,500
Aliment ingéré, kg/jour	2,19	2,15	2,15	2,15	0,06	0,780
GMQ, g/jour	951	1013	918	1091	100	0,211
IC, kg/kg	2,38	2,18	2,37	2,00	0,19	0,085

¹ GMQ = Gain Moyen Quotidien, IC = Indice de consommation, Etr = Ecart-type Résiduel, P = P-value de l'effet du régime alimentaire

Les différences ont été considérées comme significatives pour $P < 0,05$ et les tendances ont été mise en avant pour des valeurs entre $= 0,05$ et $0,10$. Pour chaque modèle construit, toutes les hypothèses (normalité de la variable prédite et normalité des résidus du modèle) ont été validées.

2. RESULTATS

2.1. Performances de croissances des animaux

Le PV initial et final, la consommation d'aliment, le GMQ et l'indice de consommation sont comprises respectivement entre 79,4 et 82,7 kg, 89,9 et 94,1 kg, 2,15 et 2,19 kg/jour, 918 et 1091 g/jour et 2,00 et 2,38 kg/jour (Tableau 2). Ces performances n'étaient significativement affectées ni par la teneur ni par la forme d'apport de Cu et de Zn du régime alimentaire ($P > 0,05$).

2.2. Composition des excréta

Comme attendu, plus la quantité de Cu et de Zn ingérée par les porcs était faible, plus la quantité excrétée l'était également ($P < 0,05$). Aucune différence significative entre les formes d'apport n'a été mise en évidence ($P > 0,10$) pour le Zn excrété dans les fèces. Les porcs nourris avec O_{REG} ont excrété plus de Cu (399 ± 49 mg /porc sur la période IV) que ceux nourris avec S_{REG} (348 ± 30 mg /porc sur la période IV) ($P < 0,05$), alors que les porcs avaient ingéré la même quantité de Cu sur la période IV (pas de différence entre les régimes O_{REG} et S_{REG}).

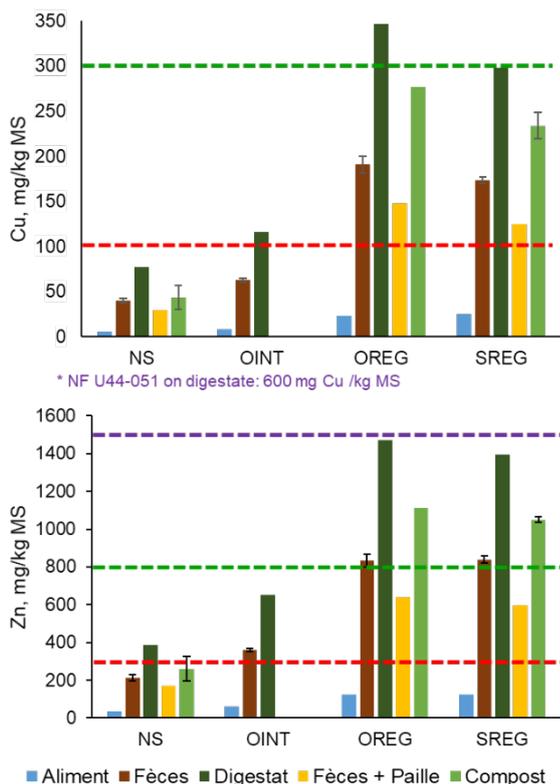


Figure 1 – Teneurs en cuivre (haut) et zinc (bas) dans les aliments, les fèces brutes et les effluents après digestion anaérobie et compostage

Ligne rouge = niveau maximum autorisé par l'Ecolabel ; Ligne verte = Règlement (UE) N°2019/1009 sur les engrais organiques ; Ligne violette=NF U44-051 sur le digestat.

Même si la quantité de Cu excrétée dans l'urine était très faible par rapport à celle excrétée dans les fèces, on observe une réduction de l'excrétion urinaire lorsque la teneur de l'aliment diminue ($P < 0,05$) avec des différences entre les sources d'apport ($S_{REG} > O_{REG} > O_{INT} = NS$).

2.3. Influence du traitement des effluents

La figure 1 présente les teneurs en Cu et Zn des produits tout au long du continuum aliments - excréments - effluents en fonction du régime alimentaire et du traitement des effluents (DA ou compostage). Les teneurs en Cu et en Zn des différents produits augmentent tout au long du continuum, quels que soit le régime alimentaire et le traitement. L'augmentation la plus importante des teneurs en Cu et en Zn est observée après la DA. Ainsi, en prenant comme exemple le régime O_{REG} , les teneurs en Cu et en Zn s'élevaient à respectivement $23,7 \pm 0,8$ et 126 ± 2 mg/kg MS dans les aliments, 191 ± 9 et 834 ± 33 mg/kg MS dans les fèces, et 347 ± 1 et 1472 ± 10 mg/kg MS dans le digestat (Figure 1). Les teneurs augmentent également après compostage, mais de manière moins importante que lors de la DA. En prenant toujours le traitement O_{REG} en exemple, les concentrations en Cu et Zn augmente ainsi respectivement de 148 ± 3 et 639 ± 12 mg/kg MS, dans le mélange fèces + paille, à 277 et 1111 mg/kg MS, dans le compost final (Figure 1).

Tableau 3 – Fractions de Cu et de Zn extractibles à l'eau dans les différents produits organiques (en %)

	Régimes expérimentaux			
	NS	O _{INT}	O _{REG}	S _{REG}
Cuivre				
Fèces	3,9	3,9	4,6	4,3
Digestat	0,6	0,4	0,3	0,4
Fèces + paille	4,3		4,5	4,4
Compost	2,6		4,1	5,8
Zinc				
Fèces	5,5	4,4	4,1	3,5
Digestat	1,7	0,6	0,7	0,6
Fèces + paille	3,1		2,9	3,3
Compost	1,1		0,7	1,2

Les fractions de Cu et Zn extractibles à l'eau mesurées au long du continuum dans les différents produits organiques sont présentées dans le tableau 3. Pour la DA, ces fractions diminuent après traitement. En prenant le régime O_{REG} en exemple, les fractions de Cu et de Zn extractibles à l'eau correspondent à 4,6 % du Cu total et à 4,1 % du Zn total dans les fèces brutes, tandis que dans le digestat ces fractions correspondent à seulement 0,3 % du Cu total et à 0,7 % du Zn total. Les résultats sont similaires pour les fèces des porcs ayant reçu les autres régimes. Au cours du compostage, la fraction de Cu extractible à l'eau reste assez constante, tandis que la fraction de Zn extractible à l'eau diminue. Ainsi, pour le régime O_{REG} , la fraction de Cu extractible à l'eau représente respectivement 4,5 % et 4,1 % du Cu total dans le mélange fèces + paille et dans le compost. Pour le Zn, pour ce même régime, la fraction de Zn extractible à l'eau passe de 2,9 % du Zn total dans le mélange fèces + paille à 0,7 % du Zn total dans le compost, les résultats étant similaire pour les autres régimes alimentaires.

3. DISCUSSION

3.1. Effet des stratégies alimentaires sur l'excrétion de cuivre et de zinc

Chez les porcs nourris avec des niveaux réglementaires européens de Cu et de Zn (O_{REG} et S_{REG}), les concentrations dans les fèces n'étaient pas différentes atteignaient respectivement

174 et 191 mg Cu /kg MS et 834 et 839 mg Zn /kg MS. D'autres études conduites sur des porcelets ont montré des résultats similaires concernant l'effet de la forme d'apport (Armstrong *et al.*, 2004). Les teneurs de Cu et Zn des fèces sont diminuées de 67 % et 52 % chez les porcs nourris avec O_{INT} comparativement à ceux nourris avec O_{REG} . La réduction (77 % pour Cu et 71 % pour Zn) est encore plus marquée chez les porcs recevant le régime NS sans supplémentation en Cu et Zn. Le principal facteur affectant l'excrétion du Cu et du Zn est donc la quantité de Cu et de Zn ingérée par l'animal, indépendamment de la forme d'apport dans l'aliment. Cela confirme que l'alimentation est le premier levier à mobiliser pour réduire la teneur en Cu et en Zn des effluents et réduire le risque de leur accumulation dans le sol. Dans cette étude, en conditions contrôlées, les performances des animaux n'ont pas été affectées par la réduction des teneurs en Cu et de Zn de l'aliment. Des résultats similaires ont été rapportés dans la littérature, en accord avec nos observations, après avoir supprimé ou diminué la supplémentation en Cu et en Zn dans l'alimentation de porcs en finition (Peter *et al.*, 2001 ; Ma *et al.*, 2018 ; Ding *et al.*, 2021). Toutefois, ces résultats sont à confirmer dans des exploitations commerciales avec des animaux en groupes et présentant des contextes sanitaires différents.

3.2. Effet du traitement sur les niveaux de Cu et Zn des effluents

Après traitement, les concentrations en Cu et Zn des produits obtenus, relativement à la MS, sont environ 1,8 fois supérieures aux concentrations initiales. Ces résultats sont en accord avec la bibliographie qui rapporte des accroissements de concentrations d'un facteur 2,5 dans le digestat de méthanisation (Marcato *et al.*, 2009 ; Legros *et al.*, 2017) ou dans le compost (Hsu et Lo, 2001 ; Saéz *et al.*, 2017). En effet, ces procédés transforment près de la moitié de la MO en méthane et CO_2 , dans le cas de la digestion anaérobie, ou en CO_2 , dans le cas du compostage, ce qui conduit à une forte réduction de la teneur en MS du produit final comparativement au produit initial. Comme le Cu et le Zn sont conservés au cours de ces processus, leur concentration augmente par rapport à la MS. En pratique, la mono-digestion de fèces, comme dans notre étude, est rare et les déjections porcines sont généralement mélangées à d'autres matières organiques. Dans ces situations la dilution du Cu et du Zn relativement à la MS résultant de l'ajout de co-substrats dans la chaîne de traitement peut permettre de limiter l'accroissement de la concentration en Cu et Zn dans le digestat final.

Les deux traitements étudiés permettent une valorisation plus efficace des effluents d'élevage et la conservation de plusieurs nutriments tels que l'azote (N), le phosphore (P), le potassium (K), le cuivre et le zinc (Marcato *et al.*, 2009 ; Amaral *et al.*, 2014). Ces effluents traités peuvent être utilisés comme engrais organiques et être exportés dans des régions déficitaires, afin d'éviter l'accumulation d'éléments tels que le Cu et le Zn dans les sols de régions excédentaires. Ces traitements ont également un impact sur la spéciation des éléments traces métalliques (ETM) et donc sur leur disponibilité pour les plantes. Dans notre étude, la digestion anaérobie diminue la fraction extractible à l'eau de Cu et Zn dans le digestat, et le compostage celle de Zn dans le compost. Ainsi, le Cu et le Zn sont moins solubles donc moins mobiles dans le sol après épandage de ces effluents. D'autres études ont montré l'impact de ces traitements sur la mobilité et la phytodisponibilité du Cu et du Zn pour les plantes. Selon Amaral *et al.* (2014), les

concentrations en Cu et Zn de la fraction définie comme faiblement disponible dans l'environnement augmentent après digestion anaérobie de 4,5 % à 16,7 % et de 3,0 % à 10,6 %, respectivement, et à la fin du processus de digestion, cette fraction est la plus concentrée en Cu et en Zn. Ces résultats sont confirmés par d'autres études (Marcato *et al.*, 2009 ; Legros *et al.*, 2017). Ceci indique que la digestion anaérobie réduit la phytodisponibilité du Cu et du Zn, c'est-à-dire la disponibilité de ces métaux pour les plantes, en les stabilisant dans des fractions moins solubles et moins disponibles. Dans notre étude, la part de Cu extractible à l'eau n'a pas été affectée par le compostage. Ce résultat n'est pas confirmé par la littérature. En effet, Hsu et Lo (2001) ont observé une augmentation de la teneur en Cu soluble durant les 18 premiers jours du compostage, suivie d'une diminution du Cu sous forme soluble dans le compost final. Ces auteurs ont observé un effet plus faible sur la partie soluble du Zn au cours du compostage, contrairement à notre étude. Finalement, l'ajout de matériaux organiques, comme la paille dans notre étude, peut réduire l'activité des ETM pendant le compostage et facilite leur transfert vers des formes plus stables. Ceci est lié à la formation de composés ayant une affinité pour la matière humique du compost (Santos *et al.*, 2018 ; Li *et al.*, 2019).

3.3. L'alimentation et le traitement des effluents comme leviers pour atteindre les réglementations européennes sur le retour du Cu et du Zn au sol

D'après nos résultats, les réglementations actuelles qui définissent les teneurs en Cu et Zn dans les aliments porcins (correspondant à O_{REG} et S_{REG}) ne permettent pas dans le cas des filières de traitement que nous avons testées de respecter les teneurs maximales autorisées en Cu (300 mg/kg MS maximum autorisé) et en Zn (800 mg Zn /kg MS maximum autorisé) pour la commercialisation des engrais organiques en Europe (Règlement (UE) 2019/1009) (Figure 1). Pour le Cu, avec une moyenne de 325 mg/kg MS dans les digestats O_{REG} et S_{REG} , la teneur dépasse seulement légèrement le maximum autorisé, alors que pour le compost la valeur (250 mg/kg MS en moyenne) est inférieure. La situation est plus problématique pour le Zn, aussi bien pour les digestats (1420 mg Zn /kg MS en moyenne) que pour le compost (900 mg/kg MS, en moyenne), le maximum réglementaire étant dépassé. Pour les digestats, les teneurs en Cu et Zn restent cependant inférieures à la norme française (NF U44-051) qui autorise leur épandage agricole jusqu'à des teneurs maximales de 600 mg Cu et 1500 mg Zn /kg MS.

Avec les régimes alimentaires O_{INT} et NS, les teneurs en Cu et Zn du digestat et du compost sont fortement réduites et passent en deçà (largement pour Cu) des maximums autorisés par la réglementation européenne relative aux engrais organiques. Seuls le digestat et le compost issus des déjections des porcs nourris avec l'aliment sans supplémentation en Cu et Zn (NS) respectent les teneurs fixées par l'Ecolabel européen sur les engrais organiques (100 et 300 mg Cu et Zn /kg MS, Figure 1), qui est le label le plus restrictif à l'heure actuelle.

CONCLUSION

Cette étude a évalué le devenir du Cu et du Zn depuis l'alimentation, en passant par l'animal et ses excréments, jusqu'au produit organique après traitement à appliquer sur le sol. À notre connaissance, aucune étude n'avait auparavant travaillé à cette échelle sur l'ensemble de ce flux.

L'alimentation apparaît le principal levier pour réduire la teneur en Cu et Zn des effluents et donc le risque de leur accumulation dans les sols après épandage des effluents porcins. De plus, les résultats indiquent qu'il existe une marge de progression et qu'il serait possible, pour les porcs en finition, de réduire les teneurs dans l'aliment en deçà des maximums autorisés sans affecter les performances des animaux. La gestion du traitement des effluents peut être considérée comme un outil de pilotage et de valorisation des effluents d'élevage. Les traitements, tels que la digestion anaérobie ou le compostage, induisent une augmentation de la concentration en Cu et en Zn dans le produit organique final qu'il serait possible de contrebalancer par une modification de l'alimentation. Ces traitements ont également un impact sur la solubilité de Cu et Zn et sur leur phytodisponibilité, en diminuant leur mobilité dans les produits à épandre.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient l'ADEME pour le soutien financier apporté à ce travail dans le cadre de l'appel à projet GRAINE 2019 et du projet RECUIZ. Ce travail a été réalisé, dans le cadre d'une convention de thèse CIFRE, gérée par l'Association Nationale de la Recherche Technique (ANRT) et établie entre INRAE et la société Animine (Annecy, 74). Les auteurs remercient Etienne Labussière pour son aide lors de la conception et la mise en œuvre du protocole, et Baptiste Ringo étudiant de l'ESA d'Angers qui a contribué à l'expérimentation animale et aux analyses de laboratoire. Les auteurs remercient le personnel de l'unité expérimentale pour les soins apportés aux animaux, et la collecte des données et des échantillons. Les auteurs remercient Sylvie Picard pour son aide lors des analyses chimiques.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Amaral A.C., Kunz A., Radis Steinmetz R.L., Justi K.C., 2014. Zinc and copper distribution in swine wastewater treated by anaerobic digestion. *J. Environ. Manage.*, 141, 132-137.
- Armstrong T.A., Cook D.R., Ward M.M., Williams C.M., Spears J.W., 2004. Effect of dietary copper source (cupric citrate and cupric sulfate) and concentration on growth performance and fecal copper excretion in weanling pigs. *J. Anim. Sci.*, 82, 4, 1234-1240.
- Ding H., Zhang Q., Xu H., Yu X., Chen L., Wang Z., Feng J., 2021. Selection of copper and zinc dosages in pig diets based on the mutual benefit of animal growth and environmental protection. *Ecotoxicol. Environ. Saf.*, 216, 112177.
- Doelsch E., Legros S., Rose J., Masion A., Proux O., Hazemann J.L., Saint Macary H., Bottero J.Y., 2008. First Insights of Copper and Zinc Speciation within a Pig Slurry: An X-Ray Absorption Spectroscopy Study. In: P. Schlegel, S. Durosoy & A.W. Jongbloed (Eds), *Trace elements in animal production systems.*, 253-255. Wageningen Academic Publishers, The Netherlands.
- Dourmad J.Y., Levasseur P., Daumer M., Hassouna M., Landrain B., Lemaire N., Loussouarn A., Salaün Y., Espagnol S., 2015. Évaluation des rejets d'azote, phosphore, potassium, cuivre et zinc des porcs. *RMT Elevages et Environnement*, Paris, France, 26 p.
- Hsu J.H., Lo S.L., 2001. Effect of composting on characterization and leaching of copper, manganese, and zinc from swine manure. *Environ. Pollut.*, 114, 119-127.
- Ko H.J., Kim K.Y., Kim H.T., Kim C.N., Umeda M., 2008. Evaluation of maturity parameters and heavy metal contents in composts made from animal manure. *Waste management*, 28, 813-820.
- Legros S., Doelsch E., Masion A., Saint-Macary H., Bottero J.Y., 2008. First Insights of Copper and Zinc Speciation within a Pig Slurry: Sequential Extraction and Size Fractionation Studies. In: P. Schlegel, S. Durosoy & A.W. Jongbloed (Eds), *Trace elements in animal production systems.*, 250-252. Wageningen Academic Publishers, The Netherlands.
- Legros S., Chaurand P., Rose J., Masion A., Briois V., Ferrasse J-H., Saint Macary H., Bottero J-Y., Doelsch E., 2010. Investigation of copper speciation in pig slurry by a multitechnique approach. *Environ. Sci. Technol.*, 44, 6926-6932.
- Legros S., Levard C., Marcato-Romain C.E., Guisresse M., Doelsch E., 2017. Anaerobic digestion alters copper and zinc speciation. *Environ. Sci. Technol.*, 51, 10326-10334.
- Li R., Meng H., Lixin Z., Zhou H., Shen Y., Zhang X., Ding J., Cheng H., Wang J., 2019. Study of the morphological changes of copper and zinc during pig manure composting with addition of biochar and a microbial agent. *Bioresour. Technol.*, 291, 121752.
- Loussouarn A., Lagadec S., Robin P., Hassouna M., 2014. Raclage en « V » : bilan environnemental et zootechnique lors de sept années de fonctionnement à Guernevez. *Journées Rech. Porcine*, 46, 199-204.
- Ma Y.L., Lindemann M.D., Webb S.F., Rentfrow G., 2018. Evaluation of trace mineral source and preharvest deletion of trace minerals from finishing diets on tissue mineral status in pigs. *Asian-Australas J. Anim. Sci.*, 31(2), 252-262.
- Marcato C.E., Pinelli E., Pinelli E., Cecchi M., Winterton P., Guisresse M., 2009. Bioavailability of Cu and Zn in raw and anaerobically digested pig slurry. *Ecotoxicol. Environ. Saf.*, 72, 1538-1544.
- McGrath S.P., Chaudri A.M., Giller K.E., 1995. Long term effects of metals in sewage sludge on soils, microorganisms and plants. *J. Ind. Microbiol.*, 14, 94-104.
- Møller H.B., Jensen L.S., Tobiasen L., Hansen M.N., 2007. Heavy metal and phosphorus content of fractions from manure treatment and incineration. *Environ. Technol.*, 28, 1403-1418.
- NF U44-051, Avril 2006. Amendements organiques. Dénominations, spécifications et marquage. AFNOR. <https://www.boutique.afnor.org/fr-fr/norme/nf-u44051/amendements-organiques-denominations-specifications-et-marquage/fa125064/754>
- Peter C.M., Parr R.M., Parr E.N., Webel D.M., Baker D.H., 2001. The effects of phytase on growth performance, carcass characteristics, and bone mineralization of late-finishing pigs fed corn-soybean meal diets containing no supplemental phosphorus, zinc, copper and manganese. *Animal feed science and technology*, 94 (3-4), 199-205.
- Regulation (EU) 2019/1009 of the European parliament and of the council of 5 June 2019, <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/FR/TXT/?uri=CELEX%3A32019R1009>
- Saéz J.A., Clemente R., Bustamante M.A., Yañez D., Bernal M.P., 2017. Evaluation of the slurry management strategy and the integration of the composting technology in a pig farm - Agronomical and environmental implications. *J. Environ. Manage.*, 192, 57-67.
- Santos A., Fanguero D., Moral R., Pilar Bernal M., 2018. Composts produced from pig slurry solids: Nutrient efficiency and N-leaching risks in amended soils. *Front. Sustainable Food Syst.*, 2, 8.