

COCAÏNE DANS NOS RIVIÈRES : une approche méthodologique originale dans le domaine de la toxicologie environnementale

L. THEUNIS (1), A.L.N. VAN NUIJS (2), B. PECCEU (3), N. DUBOIS (4), P.G. JORENS (5), L. BERVOETS (6),
R. BLUST (7), H. NEELS (8), A. COVACI (2), C. CHARLIER (9)

RÉSUMÉ : Cette étude propose une approche originale permettant d'évaluer la consommation de cocaïne en Belgique par l'analyse des eaux usées. La cocaïne et son métabolite principal, la benzoylecgonine, ont été recherchés et quantifiés dans les eaux de 41 stations d'épuration et dans des eaux de surface de 28 cours d'eau répartis sur tout le territoire belge. Deux campagnes de prélèvements d'eaux usées réalisées à des moments différents de l'année ont permis une estimation de l'usage de cocaïne dans une population avoisinant 4 millions de Belges. Par extrapolation, la consommation annuelle totale de cocaïne en Belgique a été appréciée à plus de 1,75 tonne, soit environ 17 millions de doses.

Les quantités de cocaïne retrouvées dans les eaux usées sont les plus importantes le week-end et dans les grandes villes, même si tous les prélèvements analysés étaient positifs, ce qui fait de l'utilisation de la cocaïne en Belgique un véritable phénomène de société.

MOTS-CLÉS : *Consommation de cocaïne - Station d'épuration - Eaux usées - Benzoylecgonine*

INTRODUCTION

La cocaïne est la deuxième drogue la plus consommée au monde. Son usage «récréatif» a partout largement augmenté depuis 25 ans, essentiellement en raison de la réduction progressive et significative de son coût.

L'ONU DC (Organisation des Nations Unies contre la Drogue et le Crime) (1) estime que 14 millions de personnes dans le monde, soit 0,3% de la population âgée de 15 à 64 ans, consomment ou ont consommé de la cocaïne, au cours des 12 mois précédant l'évaluation. L'Amérique du Nord compte le plus grand nombre de consommateurs (6,4 millions d'usagers), suivie par l'Europe occidentale et centrale (3,9 millions). Des enquêtes statistiques et épidémiologiques ont révélé dans certaines villes européennes une nette augmentation de la consommation de cocaïne parmi les populations jeunes. En Espagne, depuis longtemps le principal point d'entrée de la cocaïne en Europe,

(1) Chercheur, (4) Ingénieur industriel, (9) Professeur, Chef de Service, Service de Toxicologie clinique, médico-légale, de l'Environnement et en Entreprise, CHU de Liège.

(2) Chercheur, (8) Professeur, Chef de Service, Centre de Toxicologie, Département des Sciences pharmaceutiques, Université d'Anvers. Centre de Toxicologie, Département des Sciences pharmaceutiques, Université d'Anvers.

(3) Chercheur, (6) Professeur ordinaire, (7) Professeur, Chef de Service, Laboratoire d'Ecophysiologie, Biochimie et Toxicologie, Département de Biologie, Université d'Anvers.

(5) Professeur, Département de Pharmacologie et de Toxicologie clinique, Université d'Anvers.

COCAINE IN BELGIAN RIVERS : AN ORIGINAL METHODOLOGICAL APPROACH IN THE FIELD OF ENVIRONMENTAL TOXICOLOGY

SUMMARY : This study presents an original approach for the estimation of cocaine use in Belgium based on measurements of urinary excretion products of cocaine in the local waste water and surface waters. The sampling campaign included 41 domestic waste water treatment plants and 28 rivers, covering the whole surface of Belgium. Estimation of cocaine use was calculated for ± 4 millions people and extrapolated for whole Belgium to 1,75 ton (± 17 millions of individual doses). Cocaine use is more important during week-end and in the main towns, but all samples were contaminated, which means that cocaine use is really a society problem in our country.

KEYWORDS : *Cocaine consumption - Waste water treatment plant - Cocaine abuse - Benzoylecgonine*

on trouve la plus forte consommation et l'usage de la cocaïne y dépasse celui des Etats-Unis (1). La consommation de cocaïne a également augmenté au Royaume-Uni. Selon les données de British Crime, le nombre d'utilisateurs a quadruplé au cours de la dernière décennie, principalement à Londres, passant de 0,6% en 1996, à 2,4% de la population âgée de 16 à 59 ans en 2006 (1). L'Italie est le troisième marché de cocaïne en Europe. Avec ses quelque 800.000 usagers, il représente près d'un cinquième de la consommation de cocaïne en Europe (1).

L'usage de la cocaïne semble ainsi être un phénomène qui prend de l'ampleur dans beaucoup de pays. On s'en rend compte par des estimations indirectes, à partir de statistiques générales basées sur des sondages parmi la population, des interviews de consommateurs, des données de centres médicaux et des statistiques policières (2). Il est évident que ces diverses approches sont tronquées et ne permettent pas une évaluation correcte des chiffres de la consommation (3, 4). Notre démarche, via l'analyse des eaux résiduelles, présente deux intérêts majeurs, d'abord fournir des évaluations plus fiables de la consommation de cocaïne, ensuite détecter rapidement des changements dans les tendances de consommation au niveau local et/ou régional.

Une petite partie, environ 10%, de la cocaïne consommée n'est pas métabolisée et est éliminée telle quelle dans les urines. Le produit majoritairement excrété dans les urines (environ 45%) est la benzoylecgonine (BE), métabolite de la cocaïne qui peut également être employé comme indicateur de la consommation de cette drogue.

Dans l'analyse des eaux usées, deux approches existent : soit quantifier la cocaïne résiduelle en considérant qu'elle représente 10% de la quantité consommée, soit quantifier la BE, beaucoup plus stable, et calculer ensuite la concentration de cocaïne correspondante (2, 5-9). C'est cette deuxième technique qui a été retenue. En intégrant ensuite les données relatives au débit au moment du prélèvement d'eau et au nombre de personnes desservies par la station d'épuration, la quantité quotidienne de cocaïne consommée peut être calculée.

MATÉRIEL ET MÉTHODES

PRÉLÈVEMENTS

La teneur en benzoylecgonine a été mesurée dans des échantillons d'eaux usées - en Flandre, en Wallonie et à Bruxelles - provenant de 41 stations d'épuration et dans les eaux de surface de 28 cours d'eau sélectionnés (fleuves et rivières) :

- les 41 plus grandes stations de traitement des eaux usées de la population belge, desservant chacune plus de 10.000 habitants, ont été retenues;
- les prélèvements dans les eaux de surface ont été effectués en tenant compte de la facilité d'accès aux valeurs de débit des cours d'eau, pour permettre les calculs en équivalents cocaïne par jour. Ces prélèvements, correspondant à 43 points des 28 fleuves choisis, ont été réalisés en amont et en aval des agglomérations fortement peuplées en Belgique.

La technique de prélèvements utilisée pour les eaux de surface est dite ponctuelle et ne fournit qu'une image momentanée de la teneur en BE. Au niveau des stations d'épuration, l'échantillonnage a été réalisé à l'aide d'un dispositif automatique donnant une image représentative de la situation au cours de 24 heures.

Puisque la stabilité de la BE dans l'environnement est fortement dépendante de la température, nous avons effectué deux campagnes de prélèvements : l'une couvrant la période allant de l'été à l'automne 2007, l'autre durant l'hiver 2007-2008 afin de mettre en évidence d'éventuelles variations saisonnières. De plus, les prélèvements ont été effectués le mercredi et le dimanche, ce qui a permis d'apprécier la variation de la consommation au cours de la semaine, entre jours ouvrables et week-end.

ANALYSES PAR CHROMATOGRAPHIE LIQUIDE

Sur le plan analytique, la technique a consisté en une filtration de l'échantillon pour éliminer les sédiments, suivie d'une étape de concentra-

tion. Après extraction, l'échantillon est injecté sur chromatographe en phase liquide de type UPLC (Waters®), couplé à un spectromètre de masse (Quattro Premier, Waters®). La séparation s'effectue sur une colonne de type Acquity (2,1 mm x 100 mm, 1,7 µm) (Waters®).

Pour la BE et son standard interne (BE-d3), les transitions 290→168 et 293→171 sont enregistrées.

Le temps de rétention de la benzoylecgonine est de 3,68 min.

La précision de la technique est excellente, avec des coefficients de variation de maximum 10% et une limite de quantification calculée à 5 ng/L.

EVALUATION DE LA CONSOMMATION

L'analyse des échantillons fournit des concentrations en benzoylecgonine exprimées en ng/L, qui peuvent être transformées en g/jour de cocaïne (équivalents COC) en tenant compte des poids moléculaires respectifs des deux molécules et du fait que la BE représente, après métabolisation, 45% de la cocaïne ingérée.

COC équivalents (g/jour) = $1/(0,45 \times 0,954) \times [\text{BE}]$
(g/jour)

$$= 2,33 \times [\text{BE}] \text{ (g/jour)}$$

Pour les prélèvements effectués dans les eaux usées (stations d'épuration), on calcule alors la consommation de cocaïne par jour pour 1.000 habitants en tenant compte du nombre d'individus desservis par chaque station d'épuration (Tableau I).

RÉSULTATS ET DISCUSSION

COURS D'EAU

Pour les fleuves et les rivières, les concentrations en BE obtenues dans notre étude sont similaires à celles publiées pour d'autres cours d'eau en Italie, en Espagne et en Angleterre (Tableau II), avec des valeurs maximales dans le Démer, la Dyle et la Senne. Au contraire, dans les régions peu peuplées, comme le Sud de la Belgique, la benzoylecgonine n'a pu être mise en évidence qu'en très faible concentration dans les cours d'eau (Fig. 1).

Dans la Senne, la Dyle et le Démer, où plusieurs prélèvements ont été analysés, les résultats en équivalents cocaïne sont les plus élevés en aval (valeurs maximales de 471, 37 et 102 g/jour). Deux explications sont possibles :

- Bruxelles compte 1,1 million d'habitants; or seuls 850.000 d'entre eux sont reliés à une station d'épuration. Il existe donc 250.000 personnes dont les rejets d'eaux usées passent directement des égouts dans la Senne, sans traitement épuratoire;

TABLEAU I. EXEMPLE DE CALCUL DE LA QUANTITÉ DE COCAÏNE CONSOMMÉE POUR DES PRÉLÈVEMENTS EFFECTUÉS DANS DES STATIONS D'ÉPURATION OU DANS DES COURS D'EAU

	Situation	Données pour les calculs	[BZE] (ng/L)	Equivalents COC (g/jour)	Equivalents COC (g/1.000 hab/ jour)
Station d'épuration	Charleroi	138.000 habitants Débit 78.657 m ³ /jour	1297	118,83	0,861
Cours d'eau	Lanaken (Meuse)		8,5	816,05	-

TABLEAU II. CONCENTRATION EN ÉQUIVALENTS COCAÏNE (NG/L) DANS LES EAUX DE SURFACE DES POINTS DE PRÉLÈVEMENT LES PLUS RICHES EN CETTE DROGUE SUR LA SENNE, LA DYLE ET LE DÉMER, ET COMPARAISON AVEC LES VALEURS PUBLIÉES POUR DES COURS D'EAU ITALIENS, ANGLAIS ET ESPAGNOLS

Cours d'eau	COC (ng/L)	Références
Démer	30	COWAT, 2008 (10)
Dyle	87	COWAT, 2008 (10)
Senne	102	COWAT, 2008 (10)
Tamise (Angleterre)	6	Zuccato et al., 2007 (6)
Arno (Italie)	3	Zuccato et al., 2007 (6)
Olona (Italie)	44	Zuccato et al., 2007 (6)
Lambro (Italie)	15	Zuccato et al., 2007 (6)
Pô (Italie)	0,8	Zuccato et al., 2007 (6)
Pô (Italie)	1,2	Zuccato et al., 2005 (2)
Llobregat (Espagne)	6	Huerta-Fontela et al., 2007 (7)

TABLEAU III. MOYENNE DES ÉQUIVALENTS COCAÏNE (G/JOUR POUR 1.000 PERSONNES) DANS LES EAUX USÉES DES STATIONS D'ÉPURATION D'ANVERS-SUD, GENK, ARLON, CHARLEROI, BRUXELLES ET LIÈGE, ET COMPARAISON AVEC LES VALEURS PUBLIÉES POUR DES VILLES ITALIENNES ET BELGES (LEUVEN)

Station d'épuration	Moyenne COC éq (g/jour/ 1.000 personnes)	Références
Anvers-Sud	1,4	COWAT, 2008 (10)
Genk	0,9	COWAT, 2008 (10)
Arlon	0,8	COWAT, 2008 (10)
Charleroi	0,76	COWAT, 2008 (10)
Bruxelles-Nord	0,7	COWAT, 2008 (10)
Liège	0,3	COWAT, 2008 (10)
Cagliari (Italie)	0,47	Zuccato et al., 2005 (2)
Cuneo (Italie)	0,21	Zuccato et al., 2005 (2)
Latina (Italie)	0,21	Zuccato et al., 2005 (2)
Varese (Italie)	0,32	Zuccato et al., 2005 (2)
Nosedo (Italie)	0,93	Castiglioni et al., 2006 (5)
Lugano (Italie)	0,75	Castiglioni et al., 2006 (5)
Leuven	0,38	Waumans et al., 2006 (11)

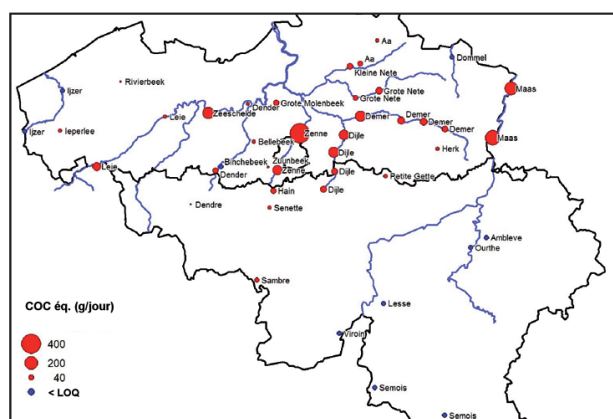


Figure 1. Equivalents cocaïne dans les eaux de surface (g/jour), prélèvements effectués durant l'été et l'automne 2007.

- pour la Dyle et le Démer, le manque d'efficacité des stations d'épuration serait plus vraisemblablement en cause.

STATIONS D'ÉPURATION

Les prélèvements effectués dans les eaux usées (stations d'épuration) étaient tous contaminés par de la benzoylcgonine. Les plus fortes teneurs en équivalents cocaïne (Tableau III, Fig. 2) ont été détectées au niveau des stations d'épuration de villes de forte densité de population telles Anvers (1,4 g/jour pour 1.000 habitants), Genk (0,9 g/jour pour 1.000 habitants), Charleroi (0,76 g/jour pour 1.000 habitants) et Bruxelles (0,7 g/jour pour 1.000 habitants), et plus particulièrement durant le week-end. Les résultats obtenus pour Arlon (0,8 g/jour pour 1.000 habitants) ont surpris avec une consommation de cocaïne non négligeable malgré la

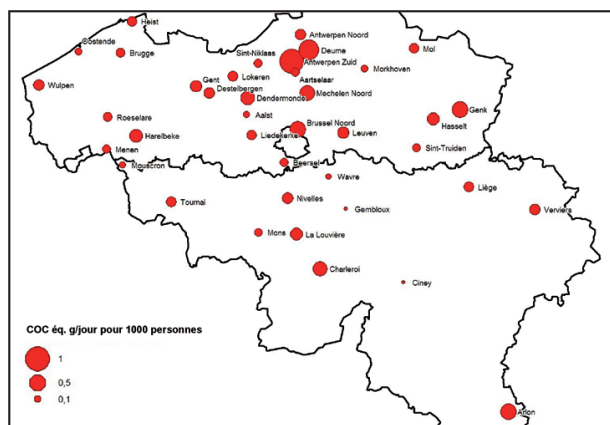


Figure 2. Equivalents cocaïne dans les eaux usées entrant dans les stations d'épuration, durant le week-end (g/jour pour 1.000 personnes).

faible densité de population. Ces résultats corroborent des études antérieures notamment réalisées en Italie (Tableau III).

Les valeurs assez faibles pour la région liégeoise (0,3 g/jour pour 1.000 habitants) s'expliquent par le fait que la station d'épuration considérée dans l'étude a été la station des Grosses Battes (desservant Chênée, Grivegnée, Angleur, Vaux-sous-Chèvremont et Embourg) située en amont de la ville.

Au total, les deux campagnes de prélèvements ont permis d'évaluer la consommation de cocaïne d'environ 3,7 millions d'habitants (82,4% de la population bruxelloise, 37,4% de la population flamande et 15,3% de la population wallonne).

Les résultats obtenus ont été extrapolés à l'ensemble de la population belge composée des trois

Régions (Tableau IV), en prenant en compte la classe d'âge entre 15 et 45 ans dans laquelle les consommateurs de cocaïne sont les plus fréquemment rencontrés.

Au niveau national, on peut considérer que :

- durant la semaine, 1,03 g de cocaïne est consommée par jour par 1.000 habitants âgés de 15 à 45 ans;
- pendant le week-end, la consommation serait de 1,41 g en moyenne par jour;
- sur cette base on peut estimer la consommation annuelle belge totale à 1,75 tonne de cocaïne;
- il n'y a pas de différence significative entre la consommation de cocaïne dans le Nord et dans le Sud du pays.

CONCLUSION

Le projet COWAT (COcaïne in the WATER) (10) démontre qu'il est envisageable d'apprécier la consommation de cocaïne dans une région géographique donnée en procédant à l'analyse des eaux usées. Les résultats de ce travail indiquent que la consommation est plus importante durant le week-end, et dans les grandes villes. Au total, les deux campagnes d'échantillonnage réalisées ont permis de proposer qu'au vu de l'usage de cocaïne dans une population estimée à près de 4.000.000 de Belges, la consommation annuelle belge totale s'établirait à plus de 1,7 tonne de cocaïne, soit 17.000.000 doses. Puisque la benzoylecgonine a été retrouvée dans la

TABLEAU IV. EQUIVALENTS COCAÏNE EXTRAPOLÉS À LA POPULATION NATIONALE AINSI QU'À CELLE DES 3 RÉGIONS, ET CALCULÉS POUR LA CLASSE D'ÂGE DES 15-45 ANS

Belgique	COCeq (kg)	COCeq/1000 hab (g)	COCeq/1000 hab 15-45 ans (g)
jour semaine	4,349	0,436	1,03
jour week-end	5,96	0,612	1,41
année	1751		
Flandre	COCeq (kg)	COCeq/1000 hab (g)	COCeq/1000 hab 15-45 ans (g)
jour semaine	2,406	0,393	1
jour week-end	3,454	0,565	1,43
année	985		
Wallonie	COCeq (kg)	COCeq/1000 hab (g)	COCeq/1000 hab 15-45 ans (g)
jour semaine	1,348	0,392	0,99
jour week-end	1,662	0,484	1,22
année	523		
Bruxelles	COCeq (kg)	COCeq/1000 hab (g)	COCeq/1000 hab 15-45 ans (g)
jour semaine	0,596	0,578	1,29
jour week-end	0,844	0,819	1,83
année	243		

très grande majorité des échantillons d'eau prélevés dans tout le pays (100% des échantillons d'eaux usées et près de 75% des prélèvements d'eaux de surface), il est logique de conclure que la consommation de cocaïne constitue un phénomène très répandu qui exige qu'on lui porte toute l'attention nécessaire.

La cocaïne rejetée dans l'environnement se trouve principalement sous la forme de son métabolite, la benzoylecgonine. En raison des températures relativement basses des eaux dans les cours d'eau, la benzoylecgonine y est relativement stable. Les résultats obtenus sur les échantillons prélevés en hiver sont donc à considérer en priorité. Malgré tout, et en fonction de divers paramètres difficiles à maîtriser (BE immobilisée dans les égouts, influence des fortes pluies, WC chimiques lors de festivals, etc), il est possible que la concentration de benzoylecgonine soit sous-estimée et on pourrait alors considérer que la consommation de cocaïne est également sous-évaluée.

L'étude des cours d'eau présente certains avantages (facilité de prélèvement), mais il est beaucoup plus difficile d'estimer le nombre d'habitants dont les eaux usées, traitées ou non, y ont été déversées. Un autre inconvénient est l'ampleur du facteur de dilution. Il faut noter qu'à terme, et en vue de satisfaire la législation, tous les habitants en Belgique devront faire traiter leurs eaux usées avant leur rejet dans les cours d'eau, que ce soit par station d'épuration collective ou individuelle. Les chiffres proposés dans cette étude proviennent donc des résultats d'analyse des prélèvements d'eaux usées dans les stations d'épuration (données démographiques et de débit disponibles).

Grâce à la technique mise en œuvre dans le projet COWAT, la consommation de cocaïne en Belgique a donc pu être précisée. Un programme de surveillance pourrait être mis en place pour apprécier de façon régulière la consommation de cocaïne en Belgique. On pourrait ainsi enregistrer non seulement les variations dans la consommation de cocaïne dans le temps, mais également par région, et mettre rapidement en évidence l'existence d'une zone géographique particulièrement concernée par une consommation élevée. La méthodologie utilisée pour ce projet constitue une bonne structure pour les études sociologiques et pour la mise en place des campagnes de prévention contre la drogue. Les résultats obtenus dans ce travail relatif à la cocaïne, mais aussi les données fournies par un même type d'étude qui serait réalisée pour d'autres drogues peuvent être directement exploitables et utilisés par les preneurs de décision en matière de gestion des stupéfiants afin d'identifier les régions à problèmes et d'établir

ainsi des priorités dans la lutte contre le commerce des stupéfiants.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient le Service Public Fédéral de Politique Scientifique «Programme de recherche d'appui à la note politique fédérale relative à la problématique de la drogue», qui a financé cette étude (DR/00/047).

BIBLIOGRAPHIE

1. United Nations Office of Drugs and Crime (UNODC).— 2007. Annual Drug Report.
2. Zuccato E, Chiabrando C, Castiglioni S, et al.— Cocaïne in surface waters : a new evidence-based tool to monitor community drug abuse. *Environ Health*, 2005, **4**, 4-14.
3. Harrison L, Hughes A.— The validity of self-reported drug use : improving the accuracy of survey estimates. *NIDA Research Monograph*, 1997, **167**, 4196-4147.
4. European Monitoring Center for Drugs and Drug Addiction (EMCDA), 2008.— Methodological study to compare the effect of different methods of data collection on the prevalence of self-reported drug use in General Population Surveys.
5. Castiglioni S, Zuccato E, Crisci E, et al.— Identification and measurement of illicit drugs and their metabolites in urban wastewater by liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *Anal Chem*, 2006, **78**, 8421-8429.
6. Zuccato E, Castiglioni S, Bagnati R, et al.— Illicit drugs, a novel group of environmental contaminants. *Water Res*, 2007, **42**, 961-968.
7. Huerta-Fontela M, Galceran MT, Ventura F.— Ultraperformance liquid chromatography-tandem mass spectrometry analysis of stimulatory drugs of abuse in wastewater and surface waters. *Anal Chem*, 2007, **79**, 3821-3829.
8. Kasprzyk-Hordern B, Dinsdale RM, Guwy AJ.— Multi-residue method for the determination of basic/neutral pharmaceuticals and illicit drugs in surface water by solid-phase extraction and ultra performance liquid chromatography-positive electrospray ionisation tandem mass spectrometry. *J Chromatogr A*, 2007, **1161**, 132-145.
9. Gheorghe A, van Nuijs A, Pecceu B, et al.— 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*, 2008, **391**, 1309-1319.
10. Van Nuijs A, Pecceu B, Theunis L, et al.— Cocaïne et ses métabolites dans les eaux de surface et les eaux de stations d'épuration en Belgique (COWAT), Programme de recherche d'appui à la note politique fédérale relative à la problématique de la drogue, 2008.
11. Waumans D, Pauwels S, Brunel N, et al.— Quantification of cocaine and benzoylecgonine in wastewater by gas chromatography-mass spectrometry: mapping cocaine abuse in the Belgian university city of Leuven. The International Association of Forensic Toxicologists (TIAFT 2006), 2006, Ljubljana, Slovenia.

Les demandes de tirés à part sont à adresser au Pr. C. Charlier, Service de Toxicologie clinique, médico-légale, de l'Environnement en Entreprise, CHU Sart Tilman, Liège, Belgique.
E-mail : C.Charlier@chu.ulg.ac.be