

Devenir des micropolluants adsorbables à travers les procédés de traitement des boues

■ S. BESNAULT¹, J.-M. CHOUBERT², C. MIÈGE², S. MARTIN-RUEL¹, N. NOYON, M. ESPERANZA¹,
H. BUDZINSKI³, K. LE MENACH³, L. DHERRET², P. BADOS², M. COQUERY²

Mots-clés : micropolluants, séchage, compostage, digestion anaérobie, lits de séchage plantés de roseaux, campagnes d'échantillonnage

Keywords: micropollutants, drying, composting, anaerobic digestion, reed bed, sampling campaigns

Introduction

Les procédés secondaires des stations de traitement des eaux usées (STEU) ont une bonne efficacité globale pour l'élimination des micropolluants bien qu'ils n'aient pas été conçus dans ce but [COQUERY *et al.*, 2011] : de nombreuses substances sont éliminées de la file eau, mais une grande partie de ces micropolluants s'accumule dans les boues. Environ 60 % des 127 substances prioritaires et émergentes analysées dans le cadre du projet Amperes⁴ ont été quantifiées dans les échantillons de boue, dont 40 % à une concentration supérieure à 0,1 mg/kg de matière sèche (MS) [COQUERY *et al.*, 2011]. Cependant, à l'heure actuelle, seuls quelques métaux font l'objet d'une réglementation européenne avec la directive 86/278/CEE relative à l'épandage des boues. Les concentrations en polychlorobiphényles (PCB) et en hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les boues sont réglementées en France par l'arrêté du 8 janvier 1998 fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages des boues sur

les sols agricoles [ARRÊTÉ du 8 janvier 1998]. Cette présence confirmée des micropolluants dans les boues démontre l'importance d'étudier le devenir de ces substances à travers les procédés de traitement des boues. Que deviennent-elles lorsque les boues sont traitées par un traitement thermique (séchage) ou un traitement biologique (digestion anaérobie, compostage, lit de séchage) ? Comment suivre un lot de boue à travers ces procédés ? Comment obtenir un échantillon représentatif ?

Le présent document présente les résultats de rendements d'élimination de micropolluants pour neuf installations de traitement des boues avec neuf procédés communément utilisés en France, en mentionnant précisément les conditions de fonctionnement et les concentrations mesurées dans les boues brutes, les boues traitées, les condensats ainsi que les supports carbonés ajoutés pour le compostage (déchets verts et refus de criblage). L'évaluation de cette diversité de procédés de traitement des boues permet d'appréhender le rôle de certains processus vis-à-vis des micropolluants hydrophobes, dont celui de la volatilisation (lors du chauffage) et de la biodégradation (selon aération, temps de séjour). Ce document présente également les méthodes d'échantillonnage, d'analyses chimiques et de traitement des données qui ont permis d'évaluer de façon robuste les concentrations et les rendements d'élimination des micropolluants par les procédés de traitement des

¹ Cirsee, Suez Environnement – 38, rue du Président-Wilson – 78230 Le Pecq.

² Irstea, UR MALY, centre de Lyon-Villeurbanne – 5, rue de la Doua – CS 70077 – 69626 Villeurbanne cedex.

³ Université Bordeaux – CNRS – EPOC/LPTC UMR5805 – 351, cours de la Libération – 33405 Talence cedex.

⁴ Amperes = Analyse de micropolluants prioritaires et émergents dans les rejets et les eaux superficielles (ANR PRECODD 2006-2009) (<https://projetamperes.cemagref.fr>). Numéro spécial TSM 2011 sur les résultats du projet de recherche [n° 1/2, p. 25-77].

boues étudiés. Les résultats ont été obtenus sur des installations en grandeur réelle.

Les micropolluants analysés dans cette étude ont été choisis selon leur occurrence dans les boues de STEU [COQUERY *et al.*, 2011 ; MARTIN-RUEL *et al.*, 2012], leurs propriétés physico-chimiques (substances adsorbables), leur toxicité et la législation ; mais aussi selon leurs limites de quantification (LQ) et la disponibilité de techniques analytiques fiables. Nous présentons des résultats de rendements d'élimination pour 79 substances. Les familles choisies sont les métaux (14), les hormones (5), les HAP (19), les alkylphénols (6), les PCB (8), les polybromodiphényléthers (PBDE) (18) et une dizaine d'autres substances (muscs, phtalates, bisphénol A...).

1. État des lieux des concentrations en micropolluants dans les boues retrouvées dans la littérature

Afin de sélectionner les substances à analyser dans les échantillons de boues, une revue bibliographique a été effectuée [BESNAULT et MARTIN, 2011]. Parmi les substances analysées dans le cadre de ce projet, les substances trouvées aux plus fortes concentrations dans les boues sont les métaux (jusqu'à une centaine de mg/kg MS), les alkylphénols et le di(2-éthylhexyl)phtalate (DEHP) (une cinquantaine de mg/kg MS).

Les HAP, les PBDE, les PCB, le benzothiazole et les organoétains sont généralement trouvés à des teneurs entre 0,1 et 1 mg/kg MS. Les hormones sont trouvées dans les boues à de très faibles teneurs (de l'ordre du µg/kg MS, voire du ng/kg MS).

1.1. Métaux

La contamination de la boue par des métaux peut avoir de nombreuses origines, humaines ou naturelles, comme la combustion d'énergie fossile, l'agriculture, les activités industrielles, le ruissellement sur les zones urbanisées, mais aussi les volcans ou l'érosion.

Dans le cadre du projet Amperes, les teneurs en métaux et autres micropolluants ont été mesurées dans les boues de 17 stations de traitement des eaux usées (STEU) en France [COQUERY *et al.*, 2011]. Les métaux définis comme substances prioritaires par la

directive cadre sur l'eau (DCE) [CE, 2013] ont été retrouvés dans les boues à des concentrations inférieures à 10 mg/kg MS pour le cadmium et le mercure et entre 10 et 100 mg/kg MS pour le nickel et le plomb. Aux États-Unis, dans la Targeted National Sewage Sludge Survey [EPA, 2009], le cadmium a été retrouvé entre 0,21 et 11,8 mg/kg MS, le mercure entre 0,17 et 8,3 mg/kg MS, le plomb entre 5,81 et 450 mg/kg MS et enfin le nickel entre 7,44 et 526 mg/kg MS. Pour les autres métaux pertinents, les teneurs moyennes relevées sont inférieures à 100 mg/kg MS pour le Mn et le Cr, 300 mg/kg pour le Cu et le Fe et 1 000 mg/kg MS pour le Zn. Ces ordres de grandeurs de concentrations sont cohérents avec les résultats obtenus par MAILLER et coll. [2014]. Ces concentrations trouvées dans les boues sont inférieures aux valeurs limites de concentrations en métaux lourds dans les boues destinées à l'utilisation en agriculture fixées par la directive boue du 12 juin 1986 [CE, 1986].

1.2. Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)

Les HAP sont des sous-produits d'une combustion incomplète. Ils peuvent être d'origine naturelle ou anthropique. À cause de leur nature hydrophobe, la plupart des HAP s'adsorbent sur les particules du sol et les sédiments. Ils sont par conséquent largement distribués à différents niveaux dans les sols, les sédiments et les boues d'épuration [MO *et al.*, 2001 ; JINRIES *et al.*, 2000].

Les HAP sont classés selon leur nombre de cycles en HAP légers (jusqu'à trois cycles) et HAP lourds (plus de trois cycles) et ont différentes caractéristiques physico-chimiques et toxicologiques. À l'exception du naphthalène, ils sont très hydrophobes et leur solubilité dans l'eau est faible. Leurs coefficients de partition octanol-eau (K_{ow}) sont relativement élevés, confirmant leur important potentiel d'adsorption sur des particules en suspension dans l'eau ($\log K_{ow} > 4$, excepté pour le naphthalène et l'acénaphthène avec un $\log K_{ow} > 3,3$) [INERIS, 2005]. Les HAP lourds ont tendance à être plus facilement adsorbés sur les solides en suspension tandis que les HAP légers ont une capacité d'adsorption plus faible sur la matrice organique [TRABLY *et al.*, 2003].

Les HAP réglementés par la DCE [CE, 2013] ont été retrouvés très fréquemment dans les boues du projet Amperes (fréquence de quantification supérieure à 30 %, excepté pour l'anthracène) à des concentrations allant de 0,001 à 1 mg/kg MS. Les concentrations en six HAP retrouvées dans plusieurs échantillons de boues de la région parisienne par MAILLER et coll. [2014] sont globalement plus élevées que celles retrouvées dans le projet Amperes (entre 0,1 et 1 mg/kg MS). La teneur en HAP dans les boues varie également selon les pays.

Aux États-Unis, le HAP quantifié aux plus fortes concentrations est le pyrène avec 0,044 à 14 mg/kg MS dans les boues de l'étude de l'EPA [2009]. En Corée, l'acénaphthène est le HAP quantifié aux concentrations les plus faibles dans les boues de six STEU (0,074 mg/kg MS) tandis que le fluoranthène a été retrouvé à la concentration la plus élevée (1,41 mg/kg MS) [JU *et al.*, 2009].

En Chine, deux études dans différentes régions ont mesuré la somme des teneurs des 16 HAP prioritaires définis par l'EPA (sauf le naphthalène). Dans la province de Zhejiang, pour les boues de 15 STEU, cette teneur varie entre 33,23 et 82,04 mg/kg MS [HUA *et al.*, 2008], tandis que dans la province du Guangdong, elle varie entre 25,34 et 69,26 mg/kg MS [ZENG *et al.*, 2010]. Ces concentrations peuvent donc excéder les limites de l'arrêté du 8 janvier 1998 fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages des boues sur les sols agricoles.

1.3. Polychlorobiphényles (PCB)

Les polychlorobiphényles (PCB) sont des composés organiques avec un à dix atomes de chlore sur une molécule de biphényle. Ils ont été largement employés dans des applications industrielles comme les fluides hydrauliques, les fluides pour le transfert de chaleur, les plastifiants ou les retardateurs de flammes, à cause de leur stabilité chimique et thermique, de leur faible inflammabilité ainsi que de leur grande permittivité. Cependant, ils sont très peu biodégradables et se sont accumulés dans l'environnement [ABRAMOWICZ, 1990]. Leur toxicité a fait qu'ils ont été classés comme polluant organique persistant (POP) et interdits de production par le

Congrès des États-Unis en 1979 et la Convention de Stockholm sur les POP en 2001.

Les concentrations en PCB retrouvées dans les boues sont généralement faibles (moyenne de 0,19 mg/kg MS pour la somme des sept PCB indicateurs dans les boues de 506 STEU [DUCRAY et HUYARD, 2002] ; < 1 mg/kg MS pour CLARKE et SMITH [2011]) ; entre 0,01 et 0,1 mg/kg MS pour six PCB dans des échantillons de boue de région parisienne [MAILLER *et al.*, 2014] ; mais la somme de ces composés peut parfois atteindre des valeurs plus importantes (3,78 mg/kg MS au maximum pour la somme des sept PCB, selon DUCRAY et HUYARD [2002]), qui peuvent dépasser la valeur limite de l'arrêté du 8 janvier 1998 fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages des boues sur les sols agricoles (0,8 mg/kg MS pour la somme des sept PCB).

1.4. Phtalates

Les phtalates sont des plastifiants utilisés dans de nombreux produits de consommation courante. Le DEHP – di(2-éthylhexyl)phtalate – est un des phtalates les plus courants. Son utilisation comme additif dans les produits en polychlorure de vinyle (PVC) peut expliquer sa présence en teneurs élevées dans de nombreux échantillons de boues. Le DEHP a une faible solubilité et un coefficient de partition octanol-eau élevé, ce qui implique une bonne adsorption dans les boues.

Les teneurs de DEHP dans les boues varient entre 0,5 et 400 mg/kg MS avec une moyenne entre 30 et 60 mg/kg MS dans la plupart des études ayant mesuré ce composé [DUCRAY et HUYARD, 2002 ; BRIGHT et HEALEY, 2003 ; CHENG *et al.*, 2000 ; FAUSER *et al.*, 2003 ; MARTIN-RUEL *et al.*, 2010 ; EPA, 2009 ; MAILLER *et al.*, 2014]. Dans la revue de nombreuses publications réalisée par CLARKE et SMITH [2011], tous les auteurs ont rapporté des valeurs maximales de DEHP dans la boue inférieures à 400 mg/kg MS, excepté ABAD et coll. [2005] avec 3 514 mg/kg MS.

1.5. Alkylphénols

Les alkylphénols proviennent de l'alkylation des phénols et sont utilisés, par exemple, dans l'industrie comme additifs dans les carburants ou les lubrifiants. Ils sont très lipophiles et persistants et peuvent s'ac-

cumuler dans les sédiments et les sols. Les alkylphénols retrouvés dans l'environnement proviennent souvent de la dégradation d'alkylphénols éthoxylates, utilisés dans de nombreux produits domestiques, comme détergents ou pour le traitement des surfaces, qui perdent très facilement leur groupe éthoxylate. Les alkylphénols éthoxylates sont généralement retrouvés en teneurs plus élevées dans la boue brute (entre 6,5 et 74,7 mg/kg MS en moyenne) que les alkylphénols (entre 0,7 et 40 mg/kg MS en moyenne) [GONZALEZ *et al.*, 2010 ; DUCRAY et HUYARD, 2002 ; BENNIE *et al.*, 1998 ; FAUSER *et al.*, 2003 et MARTIN-RUEL *et al.*, 2010]. Quand les boues subissent un procédé de traitement, la teneur en alkylphénols devient supérieure à celle en alkylphénols éthoxylates [GONZALEZ *et al.*, 2010 ; MAILLER *et al.*, 2014].

1.6. Hormones

Les hormones stéroïdiennes naturelles ainsi que les hormones synthétiques utilisées notamment pour la contraception – estrone (E1), 17 β -estradiol (E2), estriol (E3) et 17 α -éthinyloestradiol (EE2) – arrivent dans l'environnement principalement par les fèces humaines ou animales [BIRKETT, 2003].

Leurs teneurs moyennes dans les boues sont relativement faibles (quelques $\mu\text{g/kg}$ MS), mais ces substances, même en faibles teneurs, peuvent avoir des effets toxiques, car ce sont des perturbateurs endocriniens. L'E1 et l'E2 ont été retrouvés en teneurs un peu plus élevées que l'EE2 et l'E3 [EPA, 2009 ; SOULIER *et al.*, 2011 ; TERNES *et al.*, 2002]. MULLER *et coll.* [2010] ont trouvé des teneurs de l'ordre du ng/kg MS pour les quatre hormones. L'estrone peut être un produit de dégradation d'autres hormones, en particulier du 17 β -estradiol [YU *et al.*, 2007].

1.7. Polybromodiphényléthers (PBDE)

Les polybromodiphényléthers (PBDE) sont des composés organo-bromés utilisés comme retardateurs de flamme dans de nombreuses applications. Les PBDE sont classés selon le nombre moyen d'atomes de brome de la molécule. La famille des PBDE est composée de 209 substances possibles, qui sont appelées congénères. Les PBDE sont hydrophobes et ont tendance à s'accumuler dans les sédiments.

Ils sont plus ou moins volatils selon leur degré de bromation. Les PBDE faiblement bromés (un à cinq atomes de brome) sont considérés comme plus dangereux pour l'environnement, car ils ont une tendance élevée à la bio-accumulation.

Certains PBDE sont retrouvés systématiquement dans les boues d'épuration analysées dans différents pays (décabromodiphénylthane [deBDéthane] et décabromodiphényléther [décaBDE ou BDE-209]) [RICKLUND *et al.*, 2008]. Les teneurs en décaBDE, le congénère quantifié en concentrations les plus élevées, sont relativement faibles en Europe, de 2 à 4800 g/kg MS, excepté un cas en Espagne. En revanche, aux États-Unis les gammes de teneurs sont de 5 à 100 fois plus élevées (150 à 17 000 $\mu\text{g/kg}$ MS) [CLARKE et SMITH, 2011 ; EPA, 2009]. Les BDE 47, 99 et 209, qui représentent la majorité des PBDE trouvés dans les boues, ont des concentrations variables selon les pays, mais sont généralement trouvés en plus fortes concentrations dans les boues des États-Unis [CLARKE *et al.*, 2008].

1.8. Autres composés

Les benzothiazoles sont des composés organo-sulfurés utilisés comme pesticides, herbicides et médicaments. La molécule la plus simple est le benzothiazole. Le benzothiazole est un liquide incolore, très toxique et récalcitrant. Très peu d'études existent sur la présence et le devenir du benzothiazole dans les boues. MARTIN-RUEL *et coll.* [2010] ont trouvé une teneur moyenne de 0,18 mg/kg de MS dans les boues de 17 STEU en France.

Les pesticides ne sont pas fréquemment quantifiés dans les boues, excepté le diuron, l'alachlore et l'aldrine, qui ont été retrouvés à des teneurs moyennes entre 0,1 et 1 mg/kg de MS dans les boues de 17 STEU françaises [COQUERY *et al.*, 2011]. D'autres pesticides, comme le chlorfenvinphos ou l'endosulfan (plutôt apolaires), ont été retrouvés dans certains échantillons de boues, mais généralement à des teneurs inférieures à 0,1 mg/kg MS [COQUERY *et al.*, 2011].

Peu de données existent sur la présence de produits pharmaceutiques dans les boues. La plupart sont polaires et ne s'accumulent pas naturellement dans

les boues ; en effet, quand ils sont analysés, ils sont généralement trouvés à de faibles teneurs. Cependant, des teneurs supérieures à 0,1 mg/kg MS ont été trouvées pour la fluoxétine, le paracétamol, le propranolol et l'amitriptyline dans les boues du projet Amperes [SOULIER *et al.*, 2011]. L'étude de l'EPA [2009] a mesuré plus de 70 produits pharmaceutiques dans les boues et trouvé des teneurs faibles pour la plupart des substances, comme la triméthoprim (0,012-0,2 mg/kg MS) ou la clarithromycine (0,0087-0,62 mg/kg MS). En revanche, quelques autres substances ont été retrouvées à des teneurs plus élevées, comme la carbamazépine (0,009 à 6,03 mg/kg MS) ou la cimétidine (0,004 à 8,33 mg/kg MS). Les muscs, utilisés en parfumerie et soins, sont lipophiles et ont des ratios de biodégradation faibles [SHEK *et al.*, 2008]. Les teneurs de muscs dans les boues sont variables selon le composé. Dans des boues de Hong-Kong, le galaxolide a été retrouvé à 30 mg/kg MS tandis que seulement 0,11 mg/kg ont été mesurés pour le phantolide [SHEK *et al.*, 2008]. GUO *et coll.* [2010] ont mesuré des muscs dans des boues coréennes et ils ont calculé le pourcentage des divers muscs dans les boues de différents pays, confirmant que le galaxolide est le musc retrouvé en plus grandes proportions.

De nombreuses études existent donc dans la littérature sur les concentrations en micropolluants trouvées dans les boues de STEU. Néanmoins, elles ne différencient pas souvent les boues avant ou après traitement. Il existe très peu de résultats disponibles sur le devenir des micropolluants à travers les procédés de traitement des boues obtenus grâce à un suivi des installations de traitement des boues et à des bilans matières. C'est pourquoi nous nous sommes attelés à cet aspect dans le projet Armistiq⁵.

2. Matériel et méthodes

Les analyses de micropolluants ont été réalisées par trois laboratoires reconnus pour les performances de leurs techniques analytiques dans les matrices

chargées du domaine de l'assainissement. Les métaux et les hormones ont été analysés au laboratoire LAMA d'Irstea Lyon-Villeurbanne. Les HAP, AKP, PCB et PBDE ont été analysés par le laboratoire EPOC-LPTC de l'université Bordeaux 1. Enfin, les autres substances ont été analysées par le laboratoire d'analyse PAS du Cirsee Suez Environnement au Pecq.

Après prélèvement sur site, les échantillons de boues sont centrifugés (pour les boues liquides), congelés, lyophilisés et broyés. Les échantillons de boues lyophilisés permettent de quantifier la concentration en micropolluants dans la boue (exprimée en µg/kg MS, sauf métaux en mg/kg MS).

Les techniques de préparation, d'extraction et d'analyse et les limites de quantification (LQ) pour chaque famille de substances sont présentées de façon concise dans le *tableau I*. Huit méthodes analytiques ont été appliquées pour les analyses de ces micropolluants, dont une extraction en phase solide, ou assistée par micro-ondes, suivie de GC-MS (chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse) ou LC-MS/MS (chromatographie liquide couplée à la spectrométrie de masse) pour les composés organiques ; et l'ICP-MS (spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif) après minéralisation acide (eau régale) assistée par micro-ondes pour les métaux et l'AAS (spectrométrie d'absorption atomique) après préconcentration sur piège d'or, directe et automatisée, pour le mercure.

Les performances des méthodes d'analyses ont été évaluées et validées en termes de LQ, rendement d'extraction pour les substances organiques, répétabilité et reproductibilité.

Au total, 79 micropolluants (*tableau I*) ont été analysés dans les échantillons de boue, de refus de criblage, de déchet vert et de condensat.

2.1. Procédés de traitement des boues étudiés

Le *tableau II* rassemble les caractéristiques de tous les procédés de traitement des boues étudiés et décrit les échantillons prélevés pour chaque installation étudiée.

Les prélèvements ont été faits sur des installations grandeur réelle, sur une durée compatible avec la durée du traitement.

⁵ Armistiq = Amélioration de la réduction des micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées domestiques (soutien Onema 2010-2013), coordonné par Irstea et réalisé avec l'université de Bordeaux 1 et Suez-Environnement (<http://armistiq.irstea.fr/armistiq>).

Familles de substances	Substances	Préparation/Extraction + techniques analytiques	Limites de quantification (LQ) $\mu\text{g/kg MS}$ (sauf métaux mg/kg MS)
Métaux (14)	Aluminium, titane, chrome, manganèse, fer, nickel, cuivre, zinc, arsenic, sélénium, argent, cadmium, plomb, mercure	Min.MO + ICP-MS (sauf Hg, AAS automatisé)	0,01 à 6,7
Hormones (5)	17 β -estradiol, 17 α -éthynylestradiol, estriol, 17 α -estradiol, estrone	ASE/SPE+ HPLC-MS/MS	1 à 30
Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) (19)	Naphtalène, dibenzothiophène, phénanthrène, anthracène, acénaphthylène, acénaphtène, fluorène, fluoranthène, pyrène, benzo(a)anthracène, chrysène + triphénylène, 2,1 benzo-naphtothiophène, benzo(b+j+k)fluoranthène, benzo(e)pyrène, benzo(a)pyrène, pérylène, indéno(c-d)pyrène, dibenzo(a,h+a,c)anthracène, benzo(g,h,i)peryène	ASE/SPE ou EMO + GC-MS	3 à 10
Alkylphénols (AKP) (6)	4-nonylphénol monoéthoxylate, 4-nonylphénol diéthoxylate, acide 4-nonylphénoxyacétique, 4-nonylphénol, 4- <i>tert</i> -octylphénol, 4- <i>tert</i> -butylphénol	SPE/EMO + HPLC-MS/MS ou GC-MS	10 à 50
Polychlorobiphényles (PCB) (8)	CB 50+28, CB 52, CB 101, CB 118, CB 153, CB 138, CB 180	EMO + GC-MS/GC-ED	0,5
Polybromodiphényléthers (PBDE) (18)	BDE 7, BDE 15, BDE 17, BDE 28, BDE 47, BDE 49 +71, BDE 66, BDE 71, BDE 85, BDE 99, BDE 100, BDE 153, BDE 154, BDE 183, BDE 206, BDE 207, BDE 208, BDE 209	EMO + GC-MS	0,3 à 1
Autres (9)	Benzothiazole, <i>tert</i> -butylphénol, galaxolide, tonalide, dibutylphthalate, pentachlorophénol, triclosan, DEHP, bisphénol A	ASE/SPE + GC-MS	200 à 2000

ASE : Extraction accélérée par solvant ; EMO : extraction sous champ de micro-ondes ; SPE : extraction sur phase solide ; Min.MO : minéralisation dans un four à micro-ondes ; HPLC-MS/MS : chromatographie liquide haute performance couplée à la spectrométrie de masse en tandem ; GC-MS : chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse ; ICP-MS : spectromètre de masse couplé à un plasma inductif ; AAS : spectrométrie d'absorption atomique.

Tableau 1. Micropolluants analysés, méthodes analytiques et limites de quantification (LQ)

Ces procédés ont été choisis parce qu'ils sont représentatifs des procédés de traitement des boues fréquemment employés en France et qu'ils mettent en place une grande variété de mécanismes (biodégradation aérobie ou anaérobie, volatilisation...). Les installations ont été choisies car elles avaient un fonctionnement normal et des caractéristiques variées (deux types de sècheurs thermiques, trois types de compostage, deux lits de séchage plantés de roseaux avec différentes fréquences d'alimentation et de repos).

2.2. Échantillonnage et conditionnement

Comment faire un bilan sur une installation de traitement des boues, comment prélever un échantillon représentatif ?

Les précautions de terrain nécessaires pour le dosage des substances organiques prioritaires et émergentes empêchent l'utilisation de matériel classique (en plastique notamment), afin d'éviter une contamination. Dès que cela a été possible, du matériel en verre et en Téflon a été utilisé pour les prélèvements. Pour les flacons de boues dédiées à l'analyse des métaux et pour les paramètres majeurs (matière sèche, matières volatiles) des flacons en plastique classiques ont été utilisés. Pour les autres micropolluants, pour des raisons de commodité de remplissage des flacons avec de la boue pâteuse, la solution retenue a été d'utiliser des barquettes en aluminium.

L'objectif des essais étant de suivre un lot de boue, pour toutes les installations pour lesquelles cela a été possible, les prélèvements de boue ont été effectués

Le challenge de l'analyse des micropolluants organiques dans les boues

Le développement de méthodes d'analyse des micropolluants dans les boues et leur application en routine est particulièrement complexe, pour diverses raisons.

Les échantillons de boues, parce que solides, nécessitent une préparation longue et contraignante avec des étapes de lyophilisation, broyage et homogénéisation. La lyophilisation est incompatible avec l'analyse des micropolluants volatils (non analysés dans cette étude) et peut entraîner des pertes des micropolluants partiellement volatils. Si l'on souhaite analyser les micropolluants volatils, il convient de travailler sur des boues humides.

Par rapport à des échantillons d'eaux, il est nécessaire pour les micropolluants organiques de mettre en œuvre des techniques supplémentaires permettant l'extraction de la phase boue solide vers une phase liquide (un solvant organique). Ces techniques peuvent être l'extraction assistée par micro-ondes (sous forte température et un champ micro-onde) ou l'extraction accélérée par solvant (sous forte température et forte pression).

Par ailleurs, les boues sont des matrices beaucoup plus riches en matière organique que les eaux usées et les eaux de rivière. Les extractions par solvants organiques, mentionnées ci-dessus, ne

sont pas sélectives. Elles ne permettent pas d'éliminer cette matière organique qui interfère et perturbe l'identification et la quantification des micropolluants organiques et entraîne l'encrassement des instruments analytiques (avec la nécessité d'une maintenance plus fréquente). Pour cette raison, une, voire plusieurs étapes de purification particulièrement poussées des extraits de boue sont nécessaires avant analyse chromatographique.

Ces interférents organiques sont les principaux responsables des « effets matrice » observés lors de l'analyse des micropolluants organiques par les techniques chromatographiques. Les effets matrices peuvent entraîner des faux positifs (identification et quantification d'un micropolluant non présent dans la boue) ou faux négatifs (présence masquée d'un micropolluant dans la boue). Ces effets matrice peuvent aussi biaiser la quantification des micropolluants, avec une surévaluation ou une sous-évaluation des concentrations mesurées. Un exemple d'effet matrice est illustré sur la *figure 1* : lors de l'analyse des alkylphénols, le signal des traceurs internes p-n NP C13 et d8 (voir ci-après), analysés par HPLC-MS/MS, est atténué dans un extrait de boue par rapport à un extrait de sable (peu riche en matière organique).

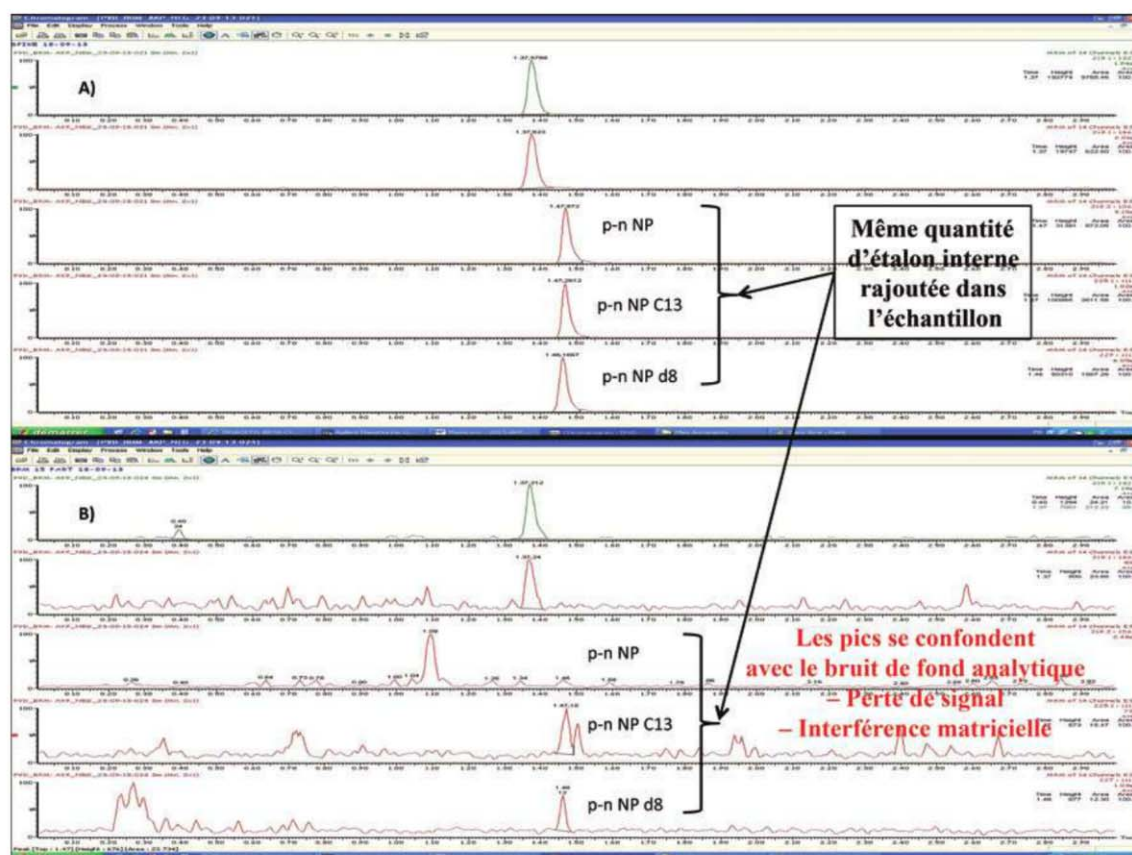


Figure 1. Illustration d'une perte de signal lors de l'analyse des alkylphénols pour les traceurs internes p-n NP C13 et d8, en spectrométrie de masse couplée à la chromatographie en phase liquide : A) analyse d'un extrait de sable ; B) analyse d'un extrait de boue de station d'épuration

Installation étudiée	Procédé	Temps de séjour de la boue	Caractéristiques	Échantillons	Réalisation des prélèvements Équipe (périodes d'intervention)
As	Sécheur haute température	5 h	Sécheur à palette indirect, à 120 °C <i>Capacité de traitement 15 000 t/an, boues en provenance de 15 STEU différentes</i>	2 boues d'entrée, 2 boues séchées, 1 condensat	Cirsee (juin 2010)
Bs	Sécheur basse température	1,8 h	Sécheur à bande direct, T° 72 °C <i>Capacité de traitement 180 000 t/an, boues en provenance d'une STEU urbaine de 2,8 millions EH</i>	2 boues d'entrée, 2 boues séchées, 1 condensat	Cirsee (septembre 2010)
Cs	Séchage solaire	28 jours	Serre Héliantis <i>Traitement des boues d'une STEU de 32 000 EH rurale</i>	6 échantillons de boue à 1, 5, 8, 13, 21 et 27 j	Cirsee (mai à juin 2011)
Ds	Digestion anaérobie (DA)	20 jours	T° 35-37 °C <i>Traitement des boues d'une STEU de 110 000 EH urbaine</i>	Boue flottée (3 éch.), boue digérée (3 éch.), 1 condensat de biogaz, 2 retours en tête après centrifugation	Cirsee (février 2011)
Es	Compostage tunnels	1 mois	Tunnels fermés ventilés, compostage accéléré <i>Traitement des boues du site Ds</i>	5 boues, mélanges ou compost, 1 refus de criblage, 1 déchet vert, 2 condensats	Cirsee (de mars à avril 2011)
Fs	Compostage casiers	2 mois	Casiers semi-fermés ventilés sous toiture avec recirculation d'air chaud <i>Capacité de production de 15 000 t/an de compost, boues en provenance de 10 STEU différentes</i>	8 boues, mélanges ou compost, 2 refus de criblage, 2 condensats	Cirsee (juin à août 2011)
Gs	Compostage andains	1,5 mois	Andains en extérieur, non ventilés <i>Capacité de production de 7 300 t de compost/an, boues en provenance de plusieurs STEU</i>	4 boues, mélanges ou compost, 1 refus de criblage, 1 déchet vert	Cirsee (mai à juin 2012)
Hs	Lits de séchage plantés de roseaux (LSPR)	10 ans	Filière à 8 cellules. 1 cellule étudiée, alimentée 2j, repos 14j. <i>Boues activées en amont, capacité nominale 3 000 EH, réseau séparatif</i>	Prélèvements en 1 seule verticale, en milieu et fond de lit (4 éch.)	Irstea (décembre 2010 ; septembre 2012)
Is	Lit de séchage planté de roseaux (LSPR)	10 ans	Filière à 8 cellules. 1 cellule étudiée, alimentée 2 semaines, repos 14 semaines. <i>Pas d'alimentation 4 mois, (épandage agricole), capacité nominale 13 000 EH, réseau unitaire</i>	Prélèvements en 3 verticales, en milieu et fond de lit. Mélange des boues du même horizon (4 éch.)	Irstea (décembre 2010 ; septembre 2012)

Tableau II. Caractéristiques des procédés de traitement des boues étudiés

sur une boue brute, puis sur le même lot de boue après le temps de séjour de l'installation (de quelques heures pour le séchage thermique à plusieurs mois pour le compostage). Quand les temps de séjour étaient longs dans les installations étudiées, des prélèvements intermédiaires ont été effectués.

Pour la digestion anaérobie, procédé fonctionnant en continu, il n'a pas été possible de suivre un lot de boue. Pour les lits de séchage plantés de roseaux (Hs et Is), les prélèvements ont été réalisés sur les mêmes horizons (milieu et fond), à 21 mois d'intervalle.

Des protocoles d'échantillonnage spécifiques ont été mis en place.

• Échantillonnage des boues solides et des boues pâteuses

Les prélèvements de boues ont été effectués sous forme d'échantillons ponctuels. Le nombre de prélèvements ponctuels permettant de reconstituer un échantillon représentatif du lot de boue suivi a été déterminé grâce à la norme ISO 5667-13 [ISO, 1998].

Cette norme préconise, dans le cas d'un échantillonnage de gâteau de boue à partir de piles de stockage, de prélever dans toutes les couches de stockage, et pas uniquement dans les couches supérieures, un nombre d'échantillons minimal (n_{sp}) calculé à l'aide de la formule suivante :

Les contrôles qualité permettant d'assurer la fiabilité des résultats d'analyses

Pour s'assurer de l'absence de contamination des échantillons lors de l'étape de préparation des échantillons, des « blancs méthode » sont mis en œuvre régulièrement (une fois par série d'analyse).

Pour contrôler les effets matrice, ainsi que le bon déroulement du protocole analytique, des traceurs internes de méthode, deutérés ou marqués au carbone 13 sont utilisés. Ces traceurs sont ajoutés à l'échantillon et subissent les étapes d'extraction, de purification et d'analyse. Les rendements de récupération de ces traceurs sont suivis et peuvent éventuellement servir à corriger les résultats d'analyse. Dans le cas où il n'y a pas de traceur disponible, les échantillons doivent être dupliqués et dopés avec les micropolluants ciblés pour contrôler leurs rendements. Pour contrôler les effets matrice, les échantillons sont analysés non dilués et dilués (par 5 et/ou 10) et les résultats sont comparés.

Des contrôles de solution étalons, préparés indépendamment de la gamme d'étalonnage, sont régulièrement analysés pour vérifier la justesse de la droite d'étalonnage ainsi que l'absence de dérivation pendant la série analytique. Par ailleurs, des blancs de phase mobile sont injectés régulièrement pour contrôler tout risque d'effet mémoire.

Comme recommandé dans la décision de la commission européenne [CE, 2002], deux transitions d'ionisation sont utilisées pour chaque composé en chromatographie couplée à la spectrométrie de masse, l'une servant à la quantification et l'autre pour la confirmation.

Enfin, des analyses de matériaux de référence internes ou certifiés sont réalisées régulièrement pour s'assurer de la justesse des résultats rendus et calculer les incertitudes de mesure.

$$n_{sp} = \frac{\sqrt{V}}{2} \quad [\text{arrondi au nombre entier le plus proche}]$$

avec V : volume de la pile de stockage, exprimé en m^3 .

Il est recommandé que la valeur de n_{sp} se situe entre 4 et 30. En pratique, le nombre d'échantillons ponctuels a été fixé à 10 au minimum.

Si l'échantillonnage est périodique (sortie d'un sécheur, par exemple), un intervalle d'échantillonnage maximum de t minutes est recommandé. Il est calculé à l'aide de la formule suivante :

$$t = \frac{60Q}{Gn} \quad \text{avec } Q : \text{masse du lot (en tonnes)}$$

$$G : \text{débit maximal (en tonnes/heure)}$$

$$n : \text{nombre d'échantillons}$$

Les échantillons de boue ont ensuite été mélangés et réduits selon la méthode du quartage décrite dans la norme ISO 5667-13 [ISO, 1998]. L'échantillon a été bien mélangé en le mettant en tas sur une surface plane propre et dure pour former un cône. Ce tas est ensuite retourné, par exemple à l'aide d'une pelle métallique, pour former un nouveau cône et cette opération est répétée trois fois. Chaque tas conique doit être formé en déposant chaque pelletée de matériau au sommet du cône de façon à ce que les proportions qui glissent sur les côtés soient distribuées aussi régulièrement que possible, et que le centre du cône ne soit pas déplacé. Le tas doit ensuite être divisé en quarts, qui doivent être uniformes en épaisseur et en



Figure 2. Méthode du quartage appliquée à un compost

diamètre en tenant compte du fait de la forme irrégulière (figure 2). On garde les quarts diamétralement opposés et on les remélange. Ce processus est répété jusqu'à ce que les deux derniers quarts produisent la masse d'échantillon nécessaire.

• Échantillonnage des boues liquides

Le calcul du nombre de prélèvements ponctuels permettant de reconstituer un échantillon représentatif du lot de boues suivi est également appliqué. Dans ce cas, chaque prélèvement ponctuel de boue liquide est effectué avec un bécher en verre placé au bout d'une canne de prélèvement et transféré dans une bonbonne en verre avec une éprouvette en verre afin d'homogénéiser le mélange. L'échantillon contenu

dans la bonbonne en verre est mélangé à l'aide d'un moteur et d'une pale en téflon. Le contenu de la bonbonne est transféré dans les flacons pour les analyses avec une pompe péristaltique connectée à des tuyaux téflon où seule la partie de l'écrasement est en silicone. Pendant le conditionnement, une agitation mécanique vigoureuse est maintenue afin d'éviter la sédimentation des boues dans la bonbonne [CHOUBERT *et al.*, 2009].

• Pour les condensats et les retours en tête de digestion

Des prélèvements ponctuels ont été effectués pour les procédés avec des temps de séjour courts (séchage thermique et retours en tête de digestion après centrifugation) selon la même méthodologie que celle employée pour les boues liquides. Pour les procédés avec des temps de séjour plus longs (compostage casiers et tunnels), des préleveurs avec du matériel en verre et téflon ont été utilisés pour recueillir les condensats pendant la durée de la campagne. Les différents prélèvements ont été ensuite rassemblés et mélangés selon la même méthodologie que celle employée pour les boues liquides. Pour le compostage en andain, les lits de séchage plantés de roseaux (à l'air libre) ainsi que le séchage solaire, il n'a pas été possible de recueillir d'échantillons de condensat. Le condensat prélevé lors de la digestion anaérobie correspond à du condensat de biogaz.

Comment calculer les rendements ?

L'évaluation de l'élimination des micropolluants par les procédés de traitement des boues nécessite le calcul des rendements d'élimination (noté R_s), en prenant des précautions particulières. Nous avons appliqué des règles innovantes, qui consistent à prendre en compte l'incertitude associée à l'analyse et au prélèvement. Inspirée de CHOUBERT *et coll.* [2011] pour les procédés de traitements secondaires, la démarche a été adaptée pour les procédés de traitement des boues. Nous avons considéré un seuil de concentration égal à dix fois la LQ dans les boues délimitant deux niveaux d'incertitude sur les concentrations en micropolluant. Le calcul de rendements d'élimination n'a pas été effectué lorsque les concentrations d'entrée et de sortie étaient inférieures à ce seuil, car

l'incertitude de mesure était trop élevée pour donner une valeur fiable du rendement.

Des bilans matière ont été réalisés pour déterminer les flux de micropolluants éliminés entre l'entrée et la sortie des procédés étudiés, et aboutir au calcul de rendements d'élimination pour chaque micropolluant. Les calculs sont complexes en raison des spécificités de chaque traitement des boues considéré (continu, discontinu, avec ajout de structurant sous forme de déchets verts...), de la variabilité spatiale de l'accumulation de boues (compostage, lit de séchage), et des incertitudes liées à l'échantillonnage, au prétraitement des échantillons et à l'analyse. Les incertitudes associées à la mesure des concentrations en micropolluants dans une matrice aussi complexe que la boue peuvent être très élevées (jusqu'à 100 %). De plus, malgré les précautions prises pour prélever des échantillons représentatifs, le volume des boues (lots de boue suivis de plusieurs tonnes) ainsi que l'hétérogénéité de la composition des boues brutes peuvent également être des facteurs d'incertitude sur les rendements calculés. C'est pourquoi, nous avons choisi d'exprimer les résultats en gammes de rendements, et de ne pas donner de valeurs exactes de rendements. Les rendements sont donc présentés en gammes de couleurs : orange pour $R_s < -30\%$, indiquant une accumulation dans la boue, gris pour $-30\% < R_s < 30\%$, indiquant qu'il n'y a pas de changement significatif de la concentration dans la boue et bleu pour $R_s > 30\%$ indiquant une réduction de la concentration en micropolluants dans la boue (élimination).

3. Résultats et discussion

3.1. Concentrations en micropolluants dans les boues brutes, les boues traitées, les déchets verts et refus de criblage

Le *tableau III* présente les valeurs de concentrations en micropolluants mesurées dans les boues d'entrée (12 échantillons), les boues traitées (13 échantillons) et les déchets verts et refus de criblage (six échantillons). Tous les micropolluants ont été quantifiés au moins une fois dans les échantillons analysés (excepté le 17 α -éthinyloestradiol, jamais quantifié). Dans les boues d'entrée et les boues traitées, la plupart des

Famille de substances	Substances	Boues d'entrée (n = 12)					Boues traitées (n = 13)					Déchets verts et refus de criblage (n = 6)				
		Fréquence de quantification (%)	Concentration minimale	Concentration maximale	Concentration moyenne	Coefficient de variation (%)	Fréquence de quantification (%)	Concentration minimale	Concentration maximale	Concentration moyenne	Coefficient de variation (%)	Fréquence de quantification (%)	Concentration minimale	Concentration maximale	Concentration moyenne	Coefficient de variation (%)
Métaux	Aluminium	100	5 687	29 207	14 692	52	100	6 591	33 892	14 826	60	100	2 515	10 773	6 458	57
	Titane	100	313	2 403	738	93	100	333	2 447	660	84	100	265	512	398	23
	Chrome	100	21,4	74,0	43,7	35	100	23,5	69,9	46,7	31	100	8,4	82,2	41,2	78
	Manganèse	100	95	1 543	352	122	100	102	974	317	79	100	75	596	264	83
	Fer	100	7 854	70 507	27 595	80	100	9 226	98 677	31 181	83	100	3 692	24 486	11 638	70
	Nickel	100	15,3	50,4	26,6	41	100	16,4	45,8	27,4	36	100	6,7	18,3	11,3	43
	Cuivre	100	152	568	347	33	100	162	638	344	42	100	15	233	96	78
	Zinc	100	473	1 084	774	24	100	367	1 164	762	34	100	145	433	269	37
	Arsenic	100	2,61	28,64	9,07	97	100	3,04	31,34	9,29	104	100	1,38	4,45	2,95	46
	Sélénium	75	2,86	6,93	4,65	33	85	2,09	5,19	3,59	24	100	0,37	2,07	1,51	46
	Argent	92	3,75	16,13	8,25	55	92	2,41	15,64	7,60	65	50	0,77	0,98	0,89	12
	Cadmium	100	0,76	2,24	1,34	38	100	0,63	2,21	1,31	39	100	0,20	1,03	0,47	63
	Plomb	100	20,8	124,4	75,8	43	100	23,0	146,0	79,5	50	100	16,7	61,0	29,5	56
	Mercur	100	0,10	1,98	1,04	50	100	0,08	2,65	0,95	71	100	0,06	0,60	0,24	82
	Estrone	100	4,0	339,9	45,5	207	92	1,0	872,0	161,3	175	100	9,1	479,1	228,6	90
	Hormones	17β-estradiol	58	1,43	38,70	9,78	135	46	5,4	18,3	9,8	58	33	14,5	16,2	15,4
17α-éthynléstradiol		0	—	—	—	—	0	—	—	—	—	0	—	—	—	—
Estril		50	2,5	14,2	5,4	82	15	4,1	4,2	4,2	—	0	—	—	—	—
17α-estradiol		33	1,4	4,9	2,7	60	15	0,9	6,4	3,7	—	0	—	—	—	—
Naphtalène		75	1	225	51	134	77	10	62	25	61	50	8	19	13	45
Dibenzothiophène		100	4	69	20	99	92	3	39	18	65	100	7	33	16	58
Phénanthrène		100	21	339	136	71	100	16	399	154	82	100	102	306	171	44
Anthracène		100	4	47	18	63	100	4	121	27	133	100	13	50	32	44
Acénaphthylène		67	4	26	10	69	62	6	17	11	37	83	1	18	8	90
Acénaphthène		92	4	48	21	85	77	4	131	33	121	100	5	31	15	83
Fluorène		92	3	115	34	90	77	5	98	33	91	100	10	38	22	50
Fluoranthène		100	45	305	178	49	100	29	867	224	107	100	97	369	227	48
Pyrène		100	107	392	225	45	100	70	675	234	83	100	77	301	182	50
Benzo(a)anthracène		100	26	137	73	47	100	14	271	84	82	100	30	197	84	74
Chrysène + Triphénylène		100	43	1 242	208	158	100	44	815	169	126	100	47	227	131	47
2,1 Benzo-naphthothiophène		92	8	61	26	59	100	9	70	25	85	100	10	48	22	69
HAP	Benzo(b+h+i)fluoranthène	100	7	588	206	76	100	8	663	207	88	100	71	439	192	76
	Benzo(e)pyrène	100	34	240	86	67	100	38	243	89	71	100	26	171	74	79
	Benzo(a)pyrène	100	29	169	88	47	100	21	277	79	86	100	23	171	67	87
	Pérylène	83	7	78	29	79	85	6	79	27	77	100	7	65	26	86
	Indénol(c-d)pyrène	100	27	242	100	71	100	12	215	81	68	100	26	181	75	81
	Dibenzo(a,h + a)anthracène	92	3	42	16	80	100	3	57	16	95	100	4	48	18	96
	Benzo(g,h,i)pyrène	100	23	240	92	63	100	17	230	87	66	100	23	149	63	80
	4-NPTEO	100	364	14 431	4 074	108	100	112	10 587	2 454	138	100	57	764	227	121
	4-NP2EO	100	75	10 498	2 534	148	100	36	6 843	1 403	166	100	15	152	61	107
	4-NP	100	643	12 994	4 244	93	100	974	9 642	3 620	69	100	75	2 479	871	96
	4-t-OP	92	87	587	248	68	92	42	336	177	52	50	40	280	145	84
	4-NPTEC	33	169	666	486	45	31	30	457	205	96	0	—	—	—	—

Famille de substances	Substances	Boues d'entrée (n = 12)				Boues traitées (n = 13)				Déchets verts et refus de criblage (n = 6)						
		Fréquence de quantification (%)	Concentration minimale	Concentration maximale	Concentration moyenne	Coefficient de variation (%)	Fréquence de quantification (%)	Concentration minimale	Concentration maximale	Concentration moyenne	Coefficient de variation (%)	Fréquence de quantification (%)	Concentration minimale	Concentration maximale	Concentration moyenne	Coefficient de variation (%)
PCB	CB 50+28	100	3	18	7	61	100	2	11	5	63	83	0,4	2,4	1,6	50
	CB 52	100	4	35	11	81	100	2	17	8	77	50	0,9	2,7	1,8	51
	CB 101	100	6	135	26	136	100	3	110	18	155	67	0,9	5,1	2,6	68
	CB 118	100	4	48	16	75	100	2	25	12	70	67	0,6	7,8	3,9	85
	CB 153	100	6	369	52	196	100	3	292	38	203	100	3,4	12,6	6,1	54
	CB 138	100	5	330	48	189	100	2	263	35	198	100	3,4	14,5	6,2	68
	CB 180	100	4	319	37	242	100	1	264	29	247	100	1,8	5,3	3,2	44
	BDE 7	17	0,4	0,7	0,5	31	23	0,4	0,6	0,5	25	17	0,4	0,4	0,4	—
	BDE 15	33	0,6	1,5	1,2	40	23	0,5	1,4	1,1	47	17	1,0	1,0	1,0	—
	BDE 17	58	0,3	1,9	1,0	70	15	0,2	0,3	0,3	—	0	—	—	—	—
PBDE	BDE 28	75	0,4	2,8	1,0	78	85	0,2	2,1	0,8	78	0	—	—	—	—
	BDE 47	100	4,3	27,7	13,3	56	100	5,1	37,7	15,5	67	100	0,6	8,0	2,8	97
	BDE 49+71	100	0,3	15,6	2,9	147	100	0,4	38,3	4,4	234	33	0,2	0,7	0,5	—
	BDE 66	75	0,3	2,6	1,0	79	69	0,3	2,1	0,9	76	0	—	—	—	—
	BDE 71	67	0,3	0,8	0,5	35	38	0,3	2,4	1,1	82	17	0,3	0,3	0,3	—
	BDE 85	100	0,4	1,3	0,8	36	100	0,4	1,9	0,7	59	17	0,3	0,3	0,3	—
	BDE 99	100	5,2	41,3	19,1	57	100	8,3	51,5	20,1	65	100	0,5	8,1	3,1	86
	BDE 100	100	0,9	7,9	3,6	59	100	1,4	7,9	3,6	55	100	0,3	2,1	0,8	96
	BDE 153	100	0,5	10,0	3,1	83	100	1,1	7,2	2,6	66	50	0,2	1,2	0,6	86
	BDE 154	100	0,3	3,5	1,7	52	100	0,7	4,6	1,7	65	50	0,1	0,9	0,5	87
Autres	BDE 183	100	0,7	3,9	1,6	65	100	0,3	3,2	1,6	54	50	0,2	1,0	0,6	65
	BDE 206	75	9,0	51,3	22,3	61	69	3,4	26,4	15,2	51	83	2,3	10,3	5,0	69
	BDE 207	75	8,8	33,3	16,7	50	69	2,5	26,3	14,0	55	83	2,2	15,6	7,2	88
	BDE 208	67	1,5	16,3	6,0	89	69	1,2	14,2	5,6	80	83	1,1	11,3	3,6	119
	BDE 209	100	225,3	6622,5	1441,9	118	100	74,9	6459,6	1419,5	117	100	10,5	745,5	193,0	143
	Benzothiazole	25	200	276	249	14	31	194	318	247	23	0	—	—	—	—
	Tert-butylphénol	0	—	—	—	—	0	—	—	—	—	17	792	792	792	—
	Galaxolide	100	42481	2660523	291971	256	100	7136	857165	108945	207	100	2502	376372	108034	141
	Tonalide	100	1509	13689	4363	74	100	1234	8146	2951	69	100	486	3704	1736	69
	Dibutylphthalate	100	254	4220	964	116	62	315	1257	677	44	83	404	966	610	41
Pentachlorophénol	0	—	—	—	—	0	—	—	—	—	17	270	270	270	—	
Autres	Triclosan	100	1511	9034	4115	69	92	422	7290	3032	74	83	274	2113	1196	59
	DEHP	100	6216	93213	44172	78	100	1391	97736	31387	92	100	3885	41857	14183	99
	Bisphénol A	92	168	533	299	42	69	252	2204	869	83	100	82	6295	2392	115

Tableau III. Concentrations en micropolluants dans les boues d'entrée, les boues traitées et les déchets verts et refus de criblage en µg/kg matière sèche MS (sauf métaux mg/kg MS)

micropolluants ont été quantifiés dans plus de 75 % des échantillons, excepté les hormones autres que l'estrone, l'acénaphthylène, les BDE 7, 15, 17 71, 206, 207 et 208, le benzothiazole, le *tert*-butylphénol, le pentachlorophénol et le bisphénol A. Les fréquences de quantification des micropolluants dans les déchets verts et refus de criblage étaient systématiquement moins élevées que celles des boues d'entrée et des boues traitées, excepté en ce qui concerne le sélénium, le manganèse et les HAP. Tous les HAP (excepté le naphthalène et l'acénaphthylène) ont été quantifiés dans 100 % des échantillons de déchets verts et de refus de criblage, alors qu'ils n'ont pas toujours été quantifiés dans les boues.

Les niveaux de concentrations étaient le plus souvent comparables entre boues d'entrée et de sortie et ils sont cohérents avec les concentrations retrouvées dans la littérature (§ 1). Les concentrations en micropolluants dans les déchets verts et refus de criblage, bien que généralement inférieures à celles trouvées dans les boues, ne sont pas négligeables. Il est donc important de prendre en compte les apports en micropolluants provenant des déchets verts et refus de criblage pour faire un bilan matière sur une installation de compostage. Pour les HAP en particulier, l'apport dû aux déchets verts et refus de criblage peut être plus élevé que celui des boues dans le mélange final.

3.2. Concentrations dans les condensats

Tous les micropolluants analysés n'ont pas été quantifiés dans les sept échantillons de condensats (sites As, Bs, Ds, Es, Fs). Le mercure, les hormones, les CB 50+28 et 118, tous les PBDE excepté les BDE 47 et 99 et le pentachlorophénol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de condensats. Il est logique que l'on ne retrouve pas tous les micropolluants analysés dans les condensats car ceux-ci ont été choisis en partie pour leur caractère hydrophobe qui leur confère la propriété d'être facilement adsorbés dans les boues. Les gammes de concentrations des micropolluants quantifiés dans les condensats sont présentées dans la figure 3.

3.3. Devenir des micropolluants à travers les procédés de traitement des boues

Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau IV. Certains micropolluants sont partiellement éliminés lors du traitement des boues ($R_s > 30\%$), tandis que d'autres ont tendance à s'accumuler ($R_s < -30\%$) :

- aucun des procédés étudiés n'a permis d'éliminer les métaux, excepté le mercure qui a été partiellement volatilisé dans le sécheur à haute température. La conservation des métaux dans les procédés de traitement des boues est un moyen fiable pour vérifier la pertinence de la méthodologie de prélèvement ;
- le séchage solaire semble avoir permis une réduction de la concentration en hormones dans la boue, même si les concentrations en hormones étaient très faibles dans les boues d'entrée ;
- le séchage thermique à haute température semble avoir permis une réduction partielle des HAP dans les boues, mais le rendement a fortement varié selon la concentration en HAP en entrée ; les HAP ont également été partiellement éliminés par le lit de séchage planté de roseaux fonctionnant à 14 semaines de repos ;
- les procédés de traitement des boues évalués ont tous

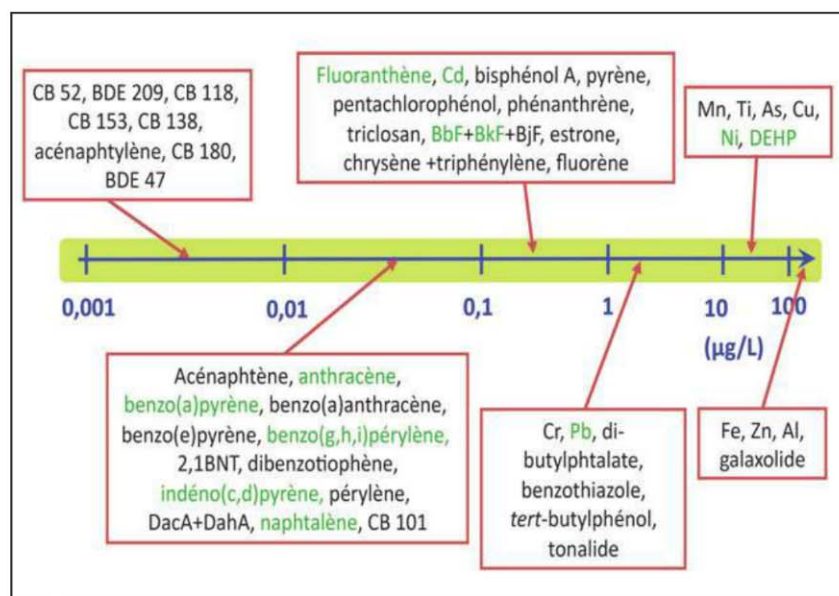


Figure 3. Gammes de concentrations en micropolluants dans les condensats (en vert, substances prioritaires de la directive cadre sur l'eau)

permis une dégradation des nonylphénols mono et diéthoxylates (en nonylphénols). Une unité de compostage et un lit de séchage planté de roseaux (à faible rythme d'alimentation-repos) ont permis d'éliminer partiellement le nonylphénol. Seul le séchage thermique à haute température a eu un effet d'élimination partielle sur l'octylphénol ;

- le compostage en casiers et les lits de séchage plantés de roseaux ont été les procédés les plus efficaces sur DEHP, galaxolide, tonalide, dibutylphthalate et triclosan. Par contre, le bisphénol A s'est accumulé dans les boues pour le compostage ;

- les PCB ont été partiellement éliminés par le séchage solaire, la digestion anaérobie et les lits de séchage plantés de roseaux ;

- le comportement des PBDE était variable selon le procédé de traitement des boues et leur poids moléculaire ;

- le lit de séchage planté de roseaux fonctionnant sous 2 semaines d'alimentation et 14 semaines de repos a montré une meilleure efficacité d'élimination des micropolluants, en raison de l'oxygénation de la boue, que celui fonctionnant sous 2 jours d'alimentation et 14 jours de repos, qui a moins bien éliminé les micropolluants en raison d'une faible oxygénation de la boue.

La figure 4 permet une comparaison globale de tous les procédés de traitement des boues étudiés. Pour la plupart des micropolluants (en moyenne, 39 micropolluants sur les 65 quantifiés avec un rendement calculable), l'étape de traitement des boues n'a pas eu d'effet significatif (rendement entre -30 % et 30 %). Pour environ 25 % des micropolluants quantifiés avec un rendement calculable (16 sur 65), on observe une accumulation à travers le procédé de traitement des boues (rendement inférieur à -30 %). Et c'est seulement pour 15 % des micropolluants quantifiés (10 sur 65) avec un rendement calculable que l'étape de traitement des boues permettrait une élimination notable (rendement supérieur à 30 %).

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de l'ensemble des micropolluants mesurés dans les boues brutes. La comparaison des neuf procédés étudiés ne permet donc pas de les classer selon leur aptitude à éliminer les micropolluants adsorbables.

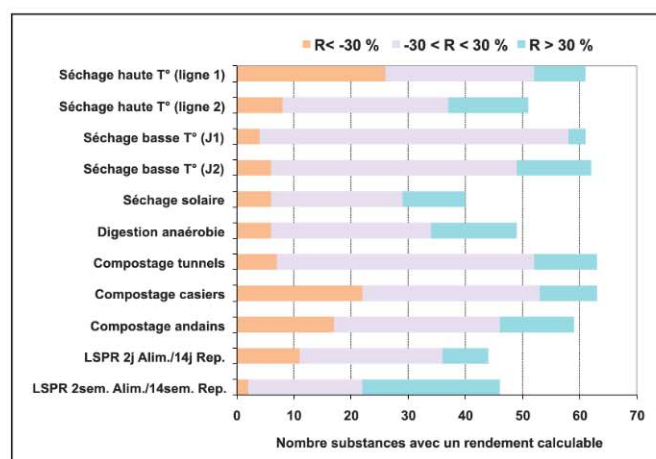
Conclusions

Le devenir des micropolluants à travers neuf procédés de traitement des boues communément utilisés en France a été étudié. L'étude a porté sur 79 micropolluants qui ont été analysés dans 59 échantillons : boue brute et traitée (séchée, compostée, digérée), déchets verts, refus de criblage et condensats. Tous les micropolluants ont été quantifiés au moins une fois dans les échantillons analysés (excepté le 17 α -éthinyloestradiol, jamais quantifié) grâce aux méthodes analytiques développées qui ont permis d'atteindre des limites de quantification basses malgré la complexité de la matrice boue. Les concentrations trouvées dans les boues sont cohérentes avec les données de la littérature.

Une méthodologie robuste a été développée afin de calculer des rendements dans les procédés de traitement des boues.

Certains micropolluants sont partiellement éliminés par les procédés de traitement des boues (exemples : muscs, HAP légers, alkylphénol éthoxylates, PBDE de haut poids moléculaire, PCB). Cependant, pour la plupart d'entre eux, il s'agit uniquement d'une transformation ; de plus, d'autres micropolluants s'accumulent dans les boues à travers le traitement, principalement, car ce sont des produits de dégradation d'autres composés.

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de



LSPR : lit de séchage planté de roseaux.

Figure 4. Élimination des micropolluants adsorbables par différents procédés de traitement des boues

Familles de substances	Substances	Haute T° (As)		Basse T° (Bs)		Séchage solaire (Cs)	Digestion anaérobie (Ds)	Compostage tunnels (Es)	Compostage casiers (Fs)	Compostage andains (Gs)	LSPR Alim. 2 i / Rep. 14 i. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2 i / Rep. 14 i. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2 sem / Rep. 14 sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2 sem / Rep. 14 sem (Is) horizon 2
		Ligne 1	Ligne 2	Jour 1	Jour 2									
Métaux	Al													
	Ti													
	Cr													
	Mn	NA	NA											
	Fe													
	Ni						NA							
	Cu													
	Zn													
	As													NC
	Se	NA	NA	NC	NC	NC				NA				
	Ag													
	Cd													
Hormones	Pb													
	Hg													
	Estro													
	17β-estradiol	NC	NC	NC	NC	NC								NC
	17α-éthinyloestradiol	NC	NC	NC	NC	NC								NC
	Estril	NC	NC	NC	NC	NC								NC
	17α-estradiol	NC	NC	NC	NC	NC								NC
	Naphtalène	NC	NC			NC								NC
	Dibenzothiophène					NC								NC
	Phénanthrène													
	Anthracène					NC								NC
	Acénaphthylène			NC	NC	NC								NC
HAP	Acénaphthène			NC		NC								NC
	Fluorène			NC		NC								NC
	Fluoranthène													
	Pyrene													
	Benzo(a)anthracène													
	Chrysène + triphénylène													
	2,1 benzonaphthothiophène													
	Benzo(b,h,i)fluoranthène		NC			NC								NC
	Benzo(e)pyrène													
	Benzo(a)pyrène													
	Pérylène			NC	NC	NC								NC
	Indénol(1,2,3-cd)pyrène													
Alkylphénols	Dibenz(a,h,i)anthracène			NC	NC	NC								NC
	Benzo(g,h,i)peryène													NC
	4-NP1EO													
	4-NP2EO													NC
	4-NP													
	4-t-OP													NC
	4-NP1EC					NC								NA

Familles de substances	Substances	Haute T° (As)		Basse T° (Bs)		Séchage solaire (Cs)	Digestion anaérobie (Ds)	Compostage tuméfiés (Es)	Compostage castiers (Fs)	Compostage ardoises (Gs)	LSPR Alim. 21 / Rep. 14 j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 21 / Rep. 14 j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2 sem / Rep. 14 sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2 sem / Rep. 14 sem (Is) horizon 2
		Ligne 1	Ligne 2	Jour 1	Jour 2									
PCB	CB 50+28					NC					NC	NC		
	CB 52					NC	NC					NC		NC
	CB 101													
	CB 118					NC	NC							
	CB 153													
	CB 138													
PBDE	CB 180					NC								
	BDE 7	NC	NC			NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 15	NC	NC			NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 17	NC	NC	NC		NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 28					NC	NC				NC	NC	NC	
	BDE 47													
	BDE 49													
	BDE 66					NC	NC	NC		NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 71		NC			NC	NC			NA	NC	NC	NC	NC
	BDE 85					NC					NC			
	BDE 99													
	BDE 100													
	BDE 153	NC	NC	NC	NC	NC								
	BDE 154					NC	NC						NC	
	BDE 183					NC	NC						NC	
Autres	BDE 206	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 207	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 208	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 209													
	Lindane		NC			NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA
	Benzothiazole					NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	Terf-butylphénol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	Galaxolide													
	Tonalide													
	Dibutylphthalate					NC				NC	NC	NC	NC	NC
	Pentachlorophénol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	Triclosan													
	DEHP													
	Bisphénol A	NC	NC	NC	NC	NC	NC			NC	NC	NC	NC	NC

Rs < -30 %	- 30 % < Rs < 30 %	Rs > 30 %	NA	Non analysé	NC	Non calculable
------------	--------------------	-----------	----	-------------	----	----------------

LSPR : lit de séchage planté de roseaux, fonctionnant sous 2 semaines d'alimentation (Alim.) et 14 semaines de repos (Rep.) ou sous 2 jours d'alimentation et 14 jours de repos.

Tableau IV. Rendements d'élimination (Rs) des micropolluants dans les procédés de traitement des boues étudiés

l'ensemble des micropolluants mesurés dans les boues brutes. La comparaison des neuf procédés étudiés ne permet donc pas de les classer selon leur aptitude à éliminer les micropolluants adsorbables. Les procédés de traitement des boues étudiés n'ont pas été conçus et ne sont pas adaptés pour traiter les micropolluants adsorbables. D'où l'importance et l'utilité de la réduction à la source afin de pouvoir continuer à profiter de l'intérêt amendant et fertilisant des boues de stations d'épuration.

Remerciements

Les auteurs remercient l'Agence nationale de la recherche (ANR) et l'Office national de l'eau et des milieux aquatiques (Onema) pour leurs soutiens

financiers aux projets Ampères et Armistiq. Les auteurs adressent également leurs remerciements à Philippe Bados, Corinne Brosse, Dominique Gorini, Julie Iaciancio, Paul Lepimpec, Loïc Richard, Hélène Sanejouand, Séverine Schiavone, Caroline Michard, Marion-Justine Capdeville, Eloïse Vray (Irstea), Cyril Gogot, Patricia Camacho, Jean-Luc Martel, Bruno Barillon, Jean-Claude Alibar, Auguste Bruchet, Adriana Gonzalez (Suez Environnement), Pierre Labadie, Patrick Pardon, Sylvie Augagneur (EPOC-LPTC, université Bordeaux 1) pour leurs contributions aux analyses chimiques, aux campagnes de terrain et à l'analyse des résultats. Les auteurs remercient les maîtres d'ouvrage et les exploitants pour avoir facilité l'accès et aidé à l'instrumentation des sites.

Bibliographie

ABAD E., MARTINEZ K., PLANAS C., PALACIOS O., CAIXACH J., RIVERA J. (2005) : « Priority organic pollutant assessment of sludge for agricultural purposes ». *Chemosphere* ; 61 : 1358-1369.

ABRAMOWICZ DA (1990) : « Aerobic and anaerobic biodegradation of PCBs: a review ». *Crit. Rev. Biotechnol.* ; 10 : 241-251.

ARRÊTÉ du 8 janvier 1998 fixant les prescriptions techniques applicables aux épandages de boues sur les sols agricoles pris en application du décret n° 97-1133 du 8 décembre 1997 relatif à l'épandage des boues issues du traitement des eaux usées.

BENNIE D.T., SULLIVAN C.A., LEE H.B., MAGUIRE R.J. (1998) : « Alkylphenol polyethoxylate metabolites in Canadian sewage treatment plant waste streams ». *Water Quality Research* ; 33, (2) : 231-252.

BESNAULT S., MARTIN S. (2011) : *État de l'art sur les procédés de traitement des boues pour l'élimination de micropolluants*. Rapport bibliographique (projet Armistiq). 55 p.

BIRKETT J.W. (2003) : « Sources of endocrine disrupters ». In : Birkett J.W., Lester J.N. *Endocrine Disrupters in Wastewater and Sludge treatment Processes*. Boca Raton (Florida) : Lewis publishers/IWA publishing. p. 35-58.

BRIGHT D.A., HEALEY N. (2003) : « Contamination risks from biosolids land application: contemporary organic contaminant levels in digested sewage sludge from five treatment plants in Greater Vancouver, British Columbia ». *Environmental Pollution* ; 126 : 39-49.

CHENG H.F., CHEN S.Y., LIN J.G. (2000) : « Biodegradation of di-[2-ethylhexyl] phthalate in sewage sludge ». *Water Sci & Technol* ; 11 (12) : 1-6.

CHOUBERT J.-M., MARTIN-RUEL S., COQUERY M. (2009) : « Prélèvement et échantillonnage des substances prioritaires et émergentes dans les eaux usées : Les prescriptions techniques du projet de recherche Ampères ». *TSM* ; 4 : 88-101.

CHOUBERT J.-M., MARTIN-RUEL S., BUDZINSKI H., MIÈGE C., ESPERANZA M., SOULIER C., *et al.* (2011) : « Rendements d'élimination de micropolluants par les filières d'épuration conventionnelles et avancées : apports méthodologiques et résultats du projet de recherche Ampères ». *TSM* ; 1/2 : 44-62.

CE (1986) : Directive 86/278/CEE du Conseil du 12 juin 1986 relative à la protection de l'environnement et notamment des sols, lors de l'utilisation des boues d'épuration en agriculture. *JOCE*, n° L181, 4/7/1986.

CE (2002) : Décision de la Commission du 12 août 2002 portant modalités d'application de la directive 96/23/CE du Conseil en ce qui concerne les performances des méthodes d'analyse et l'interprétation des résultats, 2002/657/CE, *JOCE*, n° L221 (2002) 8.

CE (2013) : Directive 2013/39/UE du Parlement européen et du Conseil du 12 août 2013 modifiant les directives 2000/60/CE et 2008/105/CE en ce qui concerne les substances prioritaires pour la politique dans le domaine de l'eau, 17 p.

CLARKE B., PORTER N., SYMONS R., MARRIOTT P., ADES P., STEVENSON G., BLACKBEARD J. (2008) : « Polybrominated diphenyl ethers and polybrominated biphenyls in Australian sewage sludge ». *Chemosphere* ; 73 : 980-989.

CLARKE B., SMITH S. (2011) : « Review of "emerging" organic contaminants in biosolids and assessment of international research priorities for the agricultural use of biosolids ». *Environment International* ; 37 : 226-247.

- COQUERY M., POMIES M., MARTIN-RUEL S., BUDZINSKI H., MIÈGE C., ESPERANZA M., *et al.* (2011) : « Mesurer les micropolluants dans les eaux usées brutes et traitées. Protocoles et résultats pour l'analyse des concentrations et des flux ». *TSM*; 1/2 : 25-43.
- DUCRAY F., HUYARD A. (2002) : *Impact du futur projet européen sur la valorisation des boues en agriculture, campagne d'analyses sur 60 boues de STEP*. Projet MATE.
- EPA (2009) : *Targeted National Sewage Sludge Survey*, EPA-822-R-08-014.
- FAUSER P., VIKELSEO J., SORENSEN P.B., CARLSEN L. (2003) : « Phthalates, nonylphenols and LAS in an alternately operated wastewater treatment plant – fate modeling based on measured concentrations in wastewater and sludge ». *Water Research*; 37 : 1288-1295.
- GONZALEZ M.M., MARTIN J., SANTOS J.L., APARICIO I., ALONSO E. (2010) : « Occurrence and risk assessment of nonylphenol and nonylphenol ethoxylates in sewage sludge from different conventional treatment processes ». *Science of Total Environment*; 408 : 563-570.
- GUO R., LEE I.S., KIM U.J., OH J.E. (2010) : « Occurrence of synthetic musks in Korean sewage sludges ». *Science of the Total Environment*; 408 : 1634-1639.
- HUA L., WU W.-X., LIU Y.X., TIENTCHEN C.M., CHEN Y.-X. (2008) : « Heavy metals and PAHs in sewage sludge from twelve wastewater treatment plants in Zhejiang Province ». *Biomedical and Environmental Sciences*; 21 : 345-352.
- INERIS (2005) : *Hydrocarbures aromatiques polycycliques, Guide méthodologique, Acquisition des données d'entrée des modèles analytiques ou numériques de transfert dans les sols ou les eaux souterraines*, Rapport d'étude N° 66244 - DESP - R01.
- ISO (1998) : Norme ISO 5667-13. *Qualité de l'eau – Échantillonnage – Partie 13 : Guide pour l'échantillonnage de boues provenant d'installations de traitement de l'eau et des eaux usées*.
- JINRIES A., HUSSAIN H., LINTELMANN J. (2000) : « Determination of polycyclic aromatic hydrocarbons in wastewater, sediments, sludges and plants in Karak Province, Jordan ». *Water Air Soil Pollut.*; 121 : 217-228.
- JU J.H., LEE I.S., SIM W.J., EUN H., OH J.E. (2009) : « Analysis and evaluation of chlorinated persistent organic compounds and PAHs in sludge in Korea ». *Chemosphere*; 74 : 441-447.
- MAILLER R., GASPERI J., CHEBBO G., ROCHER V. (2014) : « Priority and emerging pollutants in sewage sludge and fate during sludge treatment ». *Waste Management*; 34 : 1217-1226.
- MARTIN-RUEL S., ESPERANZA M., CHOUBERT J.-M., VALOR I., BUDZINSKI H., COQUERY M. (2010) : « On-site evaluation of the efficiency of conventional and advanced secondary processes for the removal of 60 organic micro-pollutant ». *Water Science & Technology*; 62, 12 : 2970-2978.
- MARTIN-RUEL S., CHOUBERT J.M., BUDZINSKI H., MIÈGE C., ESPERANZA M., COQUERY M. (2012) : « Occurrence and fate of relevant substances in wastewater treatment plants regarding Water Framework Directive and future legislations ». *Water Science and Technology*; 65 (7) : 1179-1189.
- MO C.H., CAI Q.Y., WU Q.T., WANG B.G., LI T., TIAN K. (2001) : « A study of polynuclear aromatic hydrocarbons (PAHs) in municipal sludge of China ». *Acta Scientiae Circumstantiae*; 21 : 613-618.
- MULLER M., COMBALBERT S., DELGENES N., BERGEAUD V., ROCHER V., BENOIT P., *et al.* (2010) : « Occurrence of estrogens in sewage sludge and their fate during plant-scale anaerobic digestion ». *Chemosphere*; 81 (1) : 65-71.
- RICKLUND N., KIERKEGAARD A., McLACHLAN M. (2008) : « An international survey of decabromodiphenyl ethane (deBDethane) and decabromo diphenyl ether (decaBDE) in sewage sludge sample ». *Chemosphere*; 73 (11) : 1799-1804.
- SHEK W.M., MURPHY M.B., LAM J.C.W., LAM P.K.S. (2008) : « Synthetic polycyclic musks in Hong Kong sewage sludge ». *Chemosphere*; 71 : 1241-1250.
- SOULIER C., GABET V., LARDY S., LE MENACH K., PARDON P., ESPERANZA M., *et al.* (2011) : « Zoom sur les substances pharmaceutiques : présence, partition, devenir en station d'épuration ». *TSM*; 1/2 : 63-77.
- TERNES T.A., HENRIK A., DANIEL G., MATTHIAS B. (2002) : « Determination of estrogens in sludge and sediments by liquid extraction and GC/MS/MS ». *Analytical Chemistry*; 74(14) : 3498-3504.
- TRABLY E., PATUREAU D., DELGENES J.P. (2003) : « Enhancement of polycyclic aromatic hydrocarbons removal during anaerobic treatment of urban sludge ». *Water Science & Technology*; 48 (04) : 53-60.
- YU C., ROH H., CHU K. (2007) : « 17 β -estradiol degrading bacteria isolated from activated sludge ». *Environ. Sci. Technol.*; 41 : 486-492.
- ZENG X., LIN Z., GUI H., SHAO W., SHENG G., FU J., YU Z. (2010) : « Occurrence and distribution of polycyclic aromatic carbons in sludges from wastewater treatment plants in Guangdong, China ». *Environmental Monitoring and Assessment*; 169 : 89-100.

Résumé

S. BESNAULT, J.-M. CHOUBERT, C. MIÈGE, S. MARTIN-RUEL, N. NOYON, M. ESPERANZA, H. BUDZINSKI, K. LE MENACH, L. DHERRET, P. BADOS, M. COQUERY

Devenir des micropolluants adsorbables à travers les procédés de traitement des boues

L'objectif du présent travail a été de déterminer le devenir de 79 micropolluants au sein de neuf installations de traitement des boues. Le protocole d'échantillonnage a consisté à suivre un « lot » de boue à travers chaque procédé de traitement (entrée, sortie, points intermédiaires pour certains procédés comme le compostage et condensats). Des bilans matière ont été effectués afin de calculer des rendements d'élimination, en intégrant les incertitudes liées à l'échantillonnage et à l'analyse.

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de l'ensemble des micropolluants mesurés dans les boues brutes. Certains micropolluants s'accumulent dans les boues traitées, principalement parce que ce sont des produits de dégradation d'autres composés, partiellement éliminés pendant le traitement. D'autres micropolluants sont partiellement éliminés : le séchage solaire a permis une réduction de la concentration en hormones, malgré leurs faibles concentrations en entrée. Le séchage thermique à haute température et le lit de séchage

planté de roseaux fonctionnant à 14 semaines de repos réduisent partiellement les concentrations en HAP. Les procédés de traitement des boues évalués ont tous permis une dégradation des nonylphénols mono et diéthoxylates (en nonylphénols). Une unité de compostage et un lit de séchage planté de roseaux (faible rythme d'alimentation-repos) ont permis d'éliminer partiellement les nonylphénols. Seul le séchage thermique (haute température) a eu un effet d'élimination sur les octylphénols. Le compostage en casiers et le lit de séchage planté de roseaux (faible rythme d'alimentation-repos) ont été efficaces sur le DEHP, le galaxolide, le tonalide, le dibutylphtalate et le triclosan. En revanche, le bisphénol A s'est accumulé dans les boues pour le compostage. Le lit de séchage planté de roseaux fonctionnant sous 2 semaines d'alimentation et 14 semaines de repos a montré de meilleures efficacités d'élimination que celui fonctionnant sous 2 jours d'alimentation et 14 jours de repos. Aucun des procédés étudiés n'a permis d'éliminer les métaux, excepté le mercure, partiellement volatilisé dans le sécheur à haute température.

Abstract

S. BESNAULT, J.-M. CHOUBERT, C. MIÈGE, S. MARTIN-RUEL, N. NOYON, M. ESPERANZA, H. BUDZINSKI, K. LE MENACH, L. DHERRET, P. BADOS, M. COQUERY

Evaluation of the fate of micropollutants through sludge treatment processes: biological (composting, anaerobic digestion, drying reed bed) and drying (thermal and solar)

The objective of the paper was to evaluate the fate of 79 adsorbed micropollutants through 9 sludge treatment processes. A specific sampling strategy was applied to follow a "batch" of sludge through the treatment (inlet and outlet sludge, intermediary mixture for some processes such as composting and condensates). Mass balances were established to calculate micropollutants removal efficiencies and the fate of the substances through these facilities was evaluated. In order to limit the uncertainties due to sampling and analysis, strict rules were followed for the calculations.

None of the sludge treatment processes evaluated in this project was able to remove the micropollutants measured in the sludge to be treated. Some adsorbed micropollutants were removed from the sludge but other ones were accumulated in the treated sludge, mainly because they were degradation products of other compounds, partly removed during the process. Some of the micropollutants were partly removed by sludge treatments: Solar

drying system slightly reduced the hormones concentrations in sludge. The high temperature dryer and the sludge drying reed-bed operated with 14 weeks resting period led to a partial reduction of PAH. The sludge treatment processes studied were able to degrade nonylphenol mono and di-ethoxylates. Composting and the sludge drying reed-bed (14 weeks resting period) were able to remove nonylphenols, but only the thermal drying (high temperature) was able to remove octylphenols. The compartment composting and the sludge drying reed-bed (14 weeks resting period) were the most efficient processes on DEHP, galaxolide, tonalide, dibutylphtalate and triclosan. However, bisphenol A accumulated in the sludge samples during composting. The sludge drying reed bed operated with 14 weeks resting period had much better removal efficiencies than the one operated with 14 days resting period. None of the evaluated sludge treatment was able to remove metals (except mercury that was partly removed by high temperature drying).



Water & Health

Jeudi 26 mars à Genève

LES RISQUES ET LES OUTILS DE SUIVI

présentation
des résultats de
4 ans d'études et
recherches dans le
cadre du site pilote
de Bellecombe
SIPIBEL
et du programme
INTERREG
franco-suisse
IRMISE Arve aval



LES MEDICAMENTS DANS LE CYCLE URBAIN DE L'EAU

ETAT DES CONNAISSANCES ET STRATEGIES DE REDUCTION

CONFERENCE EUROPEENNE GENEVE et ANNEMASSE les 26 et 27 MARS 2015

2 journées pour croiser les regards des acteurs
de l'eau et de la santé, des techniciens et des élus

Programme et inscription : janvier 2015
www.sipibel.org

**Vendredi 27 mars
à Annemasse**

LES ENJEUX ET LES LEVIER D'ACTION

acteurs mobilisables,
politiques publiques et
stratégies d'actions
envisageables
à l'échelle des territoires,
afin de réduire l'apport
de médicaments
dans l'environnement



Rejoignez le premier portail sur le savoir-faire Eau made in France



Un outil collectif pour :

- Accroître la visibilité de l'offre française à l'international
- Proposer des solutions innovantes à vos partenaires étrangers
- Promouvoir le savoir-faire et les innovations françaises de l'ensemble de la filière eau

Pour plus d'information et inscription : www.water-expertise-france.fr



La collection est maintenant complète!

La nature et les causes des risques sanitaires liés à la consommation d'eau contaminée sont multiples et le rôle joué par le réseau de distribution est loin d'être négligeable. Retrouvez dans les tomes 2 et 3 de cet ouvrage, **le manuel du parfait opérateur** qui aborde l'exploitation et la maintenance du réseau et les aspects liés à la surveillance permanente de la qualité de l'eau mise en distribution. Ils complètent le tome 1 qui traite de la nature et des origines des problèmes de qualité.

Ces ouvrages s'adressent à l'ensemble des acteurs opérationnels : autorités organisatrices, opérateurs et gestionnaires des services d'eau, responsables institutionnels, maîtres d'œuvre, chercheurs, enseignants et étudiants.

Bon de commande sur le site www.astee.org

