

Élimination des polluants émergents dans les rejets de STEP

1. Étude du procédé CarboPlus à l'échelle du prototype

■ V. ROCHER¹, R. MAILLER², J. GASPÉRI², Y. COQUET³, F. NAULEAU³, O. ROUSSELOT¹, S. AZIMI¹, S. DESHAYES², S. ZEDEK², V. EUDES⁴, A. BRESSY², E. CAUPOS², R. MOILLERON², G. CHEBBO²

Mots-clés : adsorption, charbon actif en poudre, eaux usées, micropolluants, traitement tertiaire

Keywords: micropollutants, adsorption, tertiary treatment, powdered activated carbon, wastewater

Introduction

La directive cadre sur l'eau (DCE) demande aux États membres de l'Union européenne de restaurer le bon état écologique des eaux souterraines et superficielles. Pour atteindre ce bon état, des efforts importants sont consentis depuis de nombreuses années pour diminuer les rejets urbains de temps de pluie et pour accroître l'efficacité des filières de traitement des eaux usées par temps sec, notamment par l'intégration d'ouvrages de traitement biologique de l'azote. Ces améliorations ont conduit à une diminution sensible et quantifiable des flux de nutriments (carbone, azote et phosphore) et de micro-organismes (bactéries fécales) introduits dans le milieu naturel [PAFFONI et ROUSSELOT, 2008 ; GONÇALVES *et al.*, 2009].

Ces actions d'aménagement et de modernisation des infrastructures permettent aussi de réduire les apports de micropolluants organiques et minéraux dans le milieu récepteur. En effet, les ouvrages de traitements physico-chimique et biologique des eaux usées permettent d'éliminer *via* différents processus (piégeage par sédimentation, biodégradation, volatilisation, etc.) une part significative des micropolluants présents dans les eaux résiduaires urbaines.

En particulier, il a récemment été montré que les traitements conventionnels physico-chimiques ou biologiques éliminent efficacement les micropolluants hydrophobes, volatils et facilement biodégradables [GASPÉRI *et al.*, 2010 ; GILBERT *et al.*, 2011 ; ROCHER *et al.*, 2011 ; GILBERT *et al.*, 2012 ; RUEL *et al.*, 2012 ; MAILLER *et al.*, 2014]. Mais, en dépit des performances des filières de traitement conventionnelles, les eaux de rejet véhiculent encore des traces de micropolluants. En particulier, les résidus médicamenteux, les pesticides et les produits cosmétiques restent détectables dans les rejets de station d'épuration [ROGERS, 1996 ; JORGENSEN et HALLING-SORENSEN, 2000 ; HEBERER, 2002].

Dans ce contexte, le Syndicat interdépartemental pour l'assainissement de l'agglomération Parisienne (Siaap), *via* sa direction du développement et prospective, a engagé un projet de recherche (2013-2015) visant à étudier l'efficacité de différentes techniques de traitement tertiaire vis-à-vis des micropolluants encore présents dans les rejets (*figure 1*). Trois techniques de traitement, développées par les constructeurs français, sont testées par l'installation sur site industriel de trois prototypes : le procédé Actiflocarb, proposé par Veolia-OTV et fondé sur l'injection de charbon actif en poudre lors de la clarifloculation des eaux, le procédé Toccata proposé par Suez-Degrémont et basé sur l'ozonation catalytique et le procédé CarboPlus, proposé par Stéreau-Saur et basé sur l'injection de charbon dans un réacteur à lit fluidisé.

¹ Siaap, Direction du développement et de la prospective – 82, avenue Kléber – 92700 Colombes.

² Leesu – Université Paris-Est – 61, avenue du Général-de-Gaule – 94010 Créteil.

³ Saur, Département R&D – 1, rue Antoine-Lavoisier – 78064 Guyancourt.

⁴ LCPP – 39 bis, rue Dantzig – 75015 Paris.

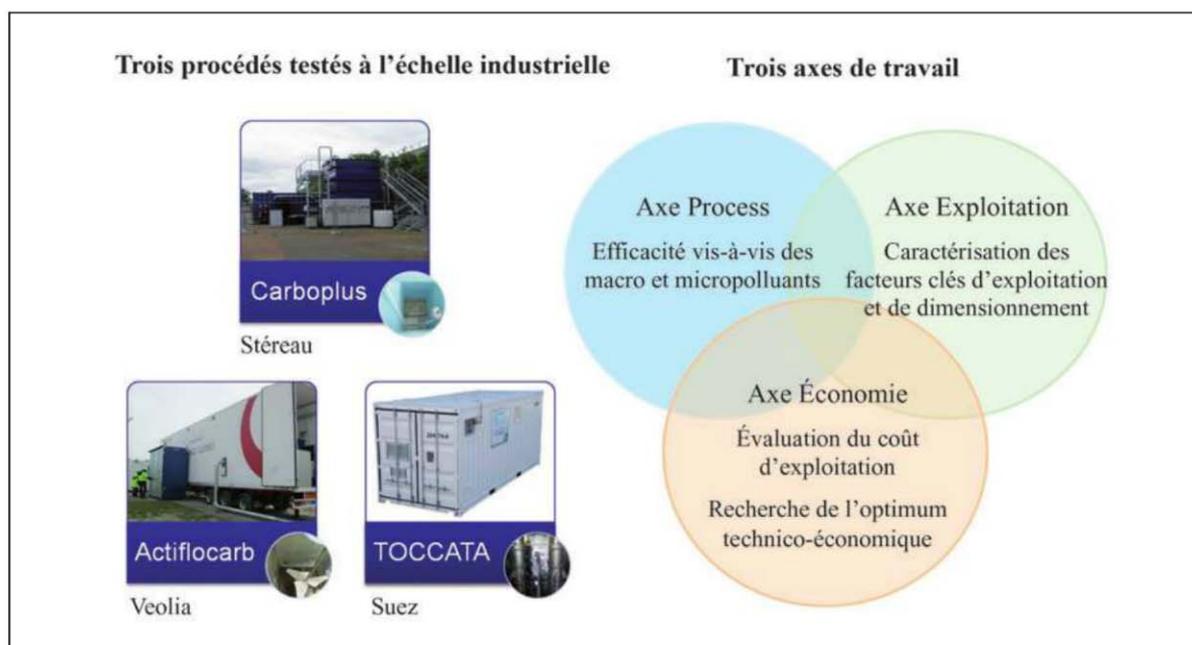


Figure 1. Programme de recherche sur les traitements tertiaires piloté par la direction du développement et de la prospective du Siaap en collaboration avec les constructeurs français (2013-2015)

Le suivi de ces trois techniques pendant des périodes de 6 à 24 mois selon le procédé doit permettre de caractériser précisément les performances et les limites du procédé de traitement tertiaire vis-à-vis des macro et des micropolluants. Dans le cas des macropolluants, il s'agit d'évaluer dans quelle mesure ces procédés de traitement complémentaire permettent d'affiner le traitement des pollutions carbonées – matières en suspension (MES), demande chimique en oxygène (DCO), demande biochimique en oxygène (DBO) –, azotées (NO_3^- , NO_2^- et NH_4^+) et phosphorées (phosphore total Pt et PO_4^{3-}) et ainsi diminuer les concentrations résiduelles en C/N/P dans les rejets de station. Dans le cas des micropolluants, 113 composés, dont des résidus médicamenteux, mais également les principaux polluants prioritaires de la DCE, sont étudiés. Le programme scientifique doit également permettre d'établir les liens entre conditions d'exploitation et performances de traitement. Bien cerner les relations entre les conditions d'exploitation et l'efficacité du pilote vis-à-vis des macro et micropolluants est indispensable pour la définition des bonnes pratiques d'exploitation mais également pour le dimensionnement des ouvrages.

Cet article est consacré au procédé CarboPlus. L'étude de ce procédé est réalisée en étroite collaboration avec les équipes de la Saur et du Laboratoire eau, environnement et systèmes urbains (Leesu) dans le cadre du programme de recherche Observatoire sur les polluants urbains (OPUR). Cette étude s'appuie sur un pilote d'une capacité de traitement de $50 \text{ m}^3/\text{h}$ exploité sur le site Seine Centre depuis juin 2013 (Colombes, 92). L'étude d'une durée prévisionnelle de deux ans doit permettre d'étudier les performances et les limites de ce procédé sous deux modes d'exploitation différents :

- mode de fonctionnement avec une injection de charbon actif en poudre (CAP, diamètre de $15\text{-}35 \mu\text{m}$) ;
- mode de fonctionnement avec injection de charbon actif en micrograins (CA μ G, diamètre de $300\text{-}500 \mu\text{m}$).

Cet article vise à caractériser les performances du procédé CarboPlus fonctionnant avec du CAP. Pour répondre à ces différentes questions et problématiques technico-scientifiques citées ci-avant, les campagnes de prélèvements effectuées en entrée et sortie du pilote sont complétées par des expérimentations menées à l'échelle du laboratoire. Il s'agit de tests en béchers permettant de caractériser finement les processus de sorption des micropolluants sur le charbon actif, mais également d'observations

microscopiques et de mesures physiques (granulométrie et porosité) permettant d'établir le lien entre la morphologie des charbons (microporeux, mésoporeux et macroporeux) et les performances vis-à-vis de l'adsorption des micropolluants (cinétiques de sorption et rendements obtenus). Les résultats obtenus dans le cadre de ces expérimentations en laboratoire sont présentés dans MAILLER et coll. [2016, ce numéro].

1. Matériel et méthodes

1.1. Description du pilote CarboPlus

1.1.1. Site industriel

Le pilote CarboPlus est installé au niveau du rejet de la station d'épuration (STEP) de Seine Centre (Colombes, 92), comme indiqué sur la figure 2. En configuration nominale, cette station traite 240 000 m³/j d'eaux usées provenant principalement de Paris intra-muros. Le traitement est assuré par trois étapes principales. Un prétraitement permet d'éliminer les solides grossiers, l'huile et le sable. Ensuite, l'eau subit une décantation physico-chimique lamellaire, avec injection de coagulant (chlorure ferrique) et de polymère anionique, afin d'éliminer les matières en suspension et réduire la concentration en orthophosphates. Enfin, un traitement biologique intense par biofiltration assure l'élimination du carbone, la nitrification puis la dénitrification des effluents. L'eau traitée est ensuite rejetée en Seine. Dans la suite de l'article, l'appellation « configuration nominale » correspondra à cette configuration.

Lorsque le débit d'eau à traiter dépasse cette capacité nominale, par exemple en temps de pluie, la configuration de traitement peut être modifiée pour accroître la capacité de traitement de 2,5 m³/s à 8,5 m³/s. Les trois étages de biofiltres ne sont plus alimentés en série mais en parallèle : 70 % des eaux subissent le traitement du carbone et une nitrification partielle (étage 1, puis 2) alors que 30 % des eaux alimentent directement le 3^e étage pour subir un traitement du carbone grâce à la mise en fonctionnement du système d'aération. Globalement, le traitement biologique de l'azote dans cette configuration est moins poussé : la nitrification devient partielle et l'abattement de la pollution carbonée plus faible.

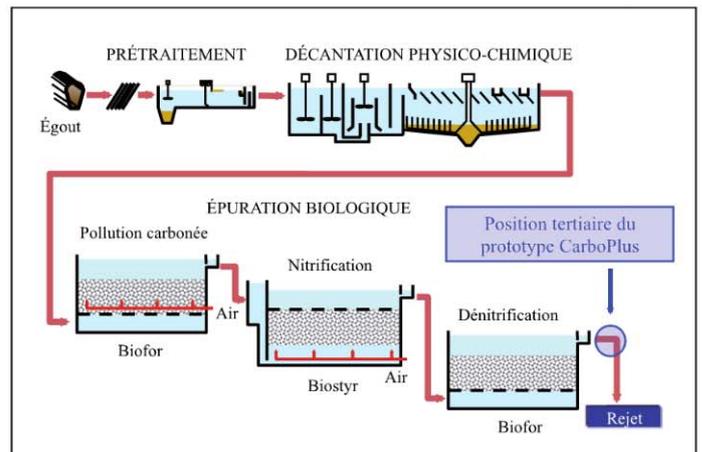


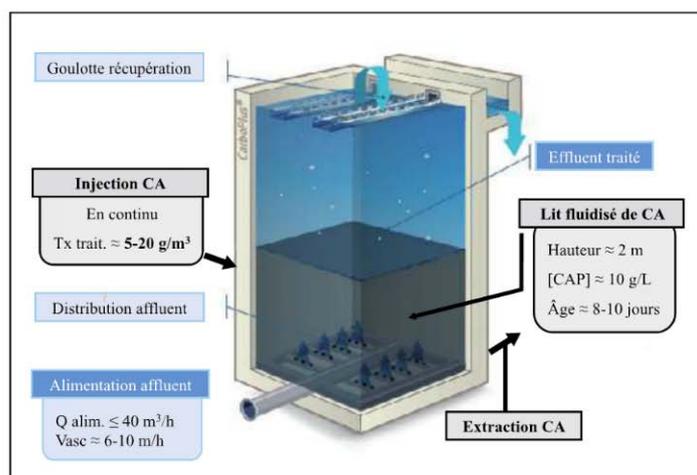
Figure 2. Installation du prototype CarboPlus sur la file de traitement des eaux de la station d'épuration de Seine Centre (Colombes, 240 000 m³/j)

La présentation détaillée des deux configurations de fonctionnement de Seine Centre est donnée dans ROCHER et coll. [2012]. Dans la suite de cet article, la configuration permettant l'augmentation de la capacité de traitement sera nommée : configuration dégradée.

1.1.2. Principe de fonctionnement

Le procédé CarboPlus, conçu et breveté par la société Stéreau, s'inspire d'un procédé utilisé en potabilisation de l'eau. Le principe consiste à faire passer un débit d'eau à travers un lit de charbon actif. Le passage de l'eau entraîne l'expansion du lit de charbon, de façon plus ou moins prononcée selon la vitesse. Le charbon actif en poudre (CAP) employé étant plutôt de faible densité (0,30 g/cm³) et hydrophobe, une injection de chlorure ferrique (FeCl₃) et de polymère est nécessaire pour maîtriser l'expansion du lit et éviter toute fuite de CAP avec l'eau traitée (tests constructeur). Le traitement est assuré par une injection en continu d'une dose de CAP neuf dans le lit. Cette dose, généralement appelée taux de traitement, est comprise entre 5 et 20 g/m³. L'extraction du charbon actif usagé est également assurée en continu. Les injections et extractions du charbon sont gérées de manière à maintenir le CAP dans le lit pendant une période de 8 à 10 jours, on parle d'âge de charbon. Cette masse de charbon usagé qui compose le lit est encore active et participe à l'élimination des micropolluants.

Le prototype installé à Seine Centre, d'une hauteur de 5 m et d'une section de 4 m², a une capacité de



Vasc : vitesse ascensionnelle.

Figure 3. Schéma de fonctionnement du pilote CarboPlus (alimentation du pilote en charbon actif en poudre – CAP)

traitement allant de 700 à 1 200 m³/j. Les vitesses de passage de l'eau sont comprises entre 6 et 10 m/h et le temps de séjour de l'eau dans le réacteur est alors compris entre 25 et 50 min. Cependant, la hauteur du lit de CAP variant de 1 à 3 m, le temps de contact effectif avec le CAP est plutôt de 10 à 20 min (figure 3).

1.1.3. Charbons actifs testés

Au cours de l'étude du prototype en configuration « poudre », deux CAP ont été testés : le PB 170 (DaCarb) et le WP 235® (Chemviron). Ces CAP mésoporeux ont été sélectionnés à la suite des expérimentations menées en laboratoire décrites dans MAILLER et coll. [2016, ce numéro]. Cependant, compte tenu de la similarité des résultats obtenus et pour simplifier la lecture de l'article, seuls les résultats obtenus avec le PB 170 (DaCarb) sont présentés.

Le PB 170 est un CAP (diamètre de particule médian = 16,2 µm) de type mésoporeux, produit à partir de bois. La structure mésoporeuse a été identifiée dans la littérature comme permettant de réduire les effets de compétition d'adsorption avec la matière organique [EBIE *et al.*, 2001] ; cette dernière se fixant préférentiellement sur les mésopores [VELTEN *et al.*, 2011]. Sa grande surface spécifique (Méthode BET : 957 ± 28 m²/g), proche des valeurs généralement rencontrées dans les études sur l'adsorption des micropolluants organiques [ÇEÇEN et AKTAS, 2012], lui confère une capacité d'adsorption importante.

1.2. Présentation du suivi des performances

1.2.1. Stratégie et protocoles d'échantillonnage

Une série de 14 campagnes de mesures entrée/sortie a été réalisée au cours de l'année de fonctionnement du prototype en configuration « poudre ». Le plan d'expérimentation a été découpé en deux phases :
– la phase 1 consacrée à l'étude de l'influence des conditions d'exploitation (dose de CAP, notamment) sur les performances du procédé ;
– et la phase 2 consacrée à l'étude approfondie de la configuration jugée optimale (10 mg/L de CAP).

La stratégie d'échantillonnage a permis de caractériser les performances du procédé pour quatre doses de CAP (5-10-20-70 mg/L) et quatre vitesses de passage (6-7-8-10 m/h). En outre, il est important de préciser que si l'usine a fonctionné en configuration nominale lors de la phase 1, elle est passée en configuration dégradée (nitrification partielle et traitement du carbone moins poussé) sur l'ensemble de la phase 2. Ainsi, la comparaison entre les deux phases a permis d'apprécier l'impact du passage en configuration dégradée sur les performances du prototype.

L'échantillonnage a été effectué à l'aide de préleveurs automatiques réfrigérés, équipés de tuyaux en Téflon, et asservis au débit. Les échantillons moyens 24 h ont été collectés dans des flacons en verre de 20 L, préalablement lavés et grillés. Les échantillons ont été homogénéisés et conditionnés dans différents flacons en verre afin d'être expédiés aux différents laboratoires analytiques partenaires. Les échantillons ont été analysés sous 48 h après le début du prélèvement.

1.2.2. Composés recherchés et protocoles analytiques

Les paramètres classiques ont été mesurés par le laboratoire d'analyse du Siaap (accrédité Cofrac). La couleur de l'eau, le carbone organique dissous (COD), les demandes chimique (DCO) et biochimique en oxygène (DBO₅), l'absorbance UV à 254 nm (UV-254), l'azote Kjeldahl total (NTK), les ions NH₄⁺, NO₂⁻, NO₃⁻, PO₄³⁻, le phosphore total (Pt) et les matières en suspension (MES) ont été systématiquement analysés.

Un panel de 54 résidus pharmaceutiques et hormones (RPH) a systématiquement été recherché lors de

toutes les campagnes ($n = 14$, phase 1 et phase 2) (*tableau I*). Ces molécules ont été analysées dans la phase dissoute des échantillons (filtration à $0,7 \mu\text{m}$ sur filtres GF/F Whatman en fibres de verre) par l'Institut des sciences analytiques (ISA) du CNRS (Villeurbanne, 69).

Un panel de 59 autres micropolluants organiques a été recherché dans la fraction dissoute lors des campagnes de la phase 2, consacrée à l'étude approfondie de la configuration jugée optimale (*tableau I*). Il s'agit des solvants chlorés ($N = 3$, avec N pour le nombre de molécules), des acides perfluorés ($N = 2$), des pesticides ($N = 23$), le bisphénol A, des alkylphénols ($N = 2$), des phtalates ($N = 4$), des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP - $N = 13$), des produits cosmétiques ($N = 7$) et des édulcorants artificiels ($N = 4$). Les solvants chlorés, les acides perfluorés, les pesticides et le bisphénol A ont été analysés par l'ISA. Les alkylphénols et les phtalates

ont été analysés par le Laboratoire central de la préfecture de police (LCPP). Les édulcorants artificiels ont été analysés par le Centre de technologie de l'eau (TZW, Karlsruhe, Allemagne). L'analyse des HAP et des produits cosmétiques a été assurée par le Leesu.

2. Résultats et discussion

2.1. Qualité des eaux de rejet de Step

2.1.1. Cas des résidus pharmaceutiques et hormones (RPH)

26 RPH ont été quantifiés, à des fréquences de quantification et à des niveaux de concentration variables. 28 composés n'ont jamais été détectés, dont huit hormones. La *figure 4* présente les concentrations des RPH mesurées en entrée de prototype au cours des 14 campagnes, sous forme de boîtes à moustaches (minimum, 1^{er} quartile, 3^e quartile, maximum) lorsque plus de six valeurs sont disponibles, ou les

Familles	N ^a	n ^b	Laboratoire d'analyses	Méthodes ^c
Antibiotiques	31	14	ISA (Vulliet <i>et al.</i> , 2011)	LC-MS/MS
Analgésiques	5	14		LC-MS/MS
Bêtabloquants	2	14		LC-MS/MS
Anxiolytiques	4	14		LC-MS/MS
Hypolipémifiants	2	14		LC-MS/MS
Hormones	10	14		LC-MS/MS
Solvants chlorés	3 (3)	5	ISA (Barrek <i>et al.</i> , 2009)	GC-MS
Pesticides/herbicides/insecticides	23 (12)	5		GC-MS LC-MS/MS
Acides perfluorés	2	5	ISA (Vulliet <i>et al.</i> , 2011)	LC-MS/MS
Bisphénol A	1	5		LC-MS/MS
Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)	13 (7)	3	LEESU (Bressy <i>et al.</i> , 2012)	GC-MS
Alkylphénols	2 (2)	5	LEESU (Bergé <i>et al.</i> , 2014)	GC-MS
Phtalates	4 (1)	5		
Produits cosmétiques	7	3	LEESU (Gaspéri <i>et al.</i> , 2014)	LC-MS/MS
Édulcorants	4	4	TZW (Scheurer <i>et al.</i> , 2009)	LC-MS/MS
<i>Total</i>	<i>113 (25)</i>			

^aN = nombre de substances, entre parenthèses le nombre de substances listées dans le directive cadre sur l'eau ;

^bn = nombre de campagnes réalisées ;

^cMéthodes analytiques : LC = chromatographie liquide, GC = chromatographie gazeuse, GC-MS = GC couplée à un spectromètre de masse, LC-MS/MS = LC couplée à un spectromètre de masse en tandem.

Tableau I. Composés recherchés et méthodes analytiques associées

concentrations individuelles dans le cas inverse. Les limites de quantification (LQ) sont également précisées pour chaque molécule.

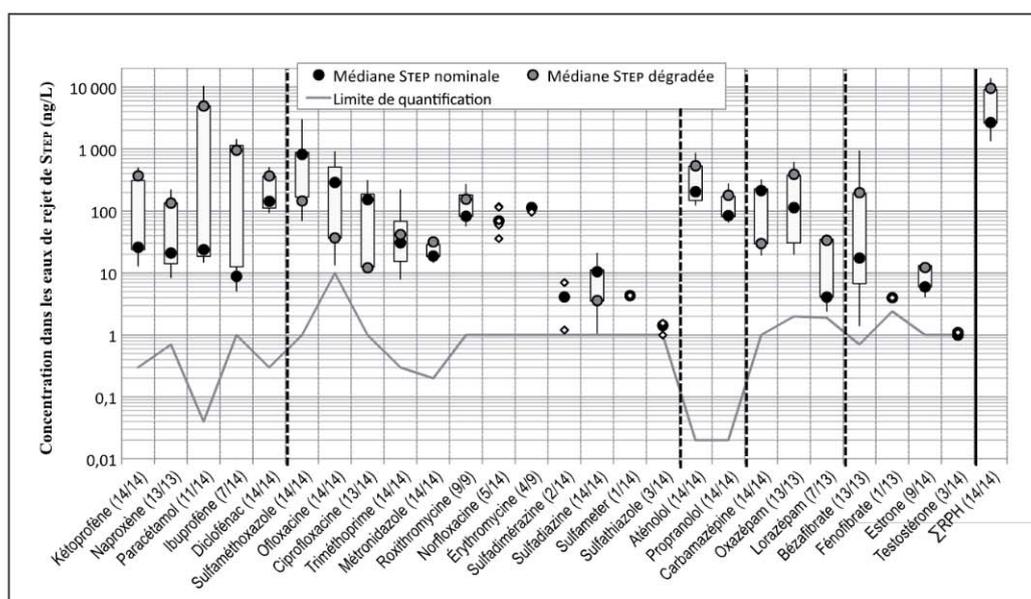
Au cours de la phase 1, correspondant à une configuration nominale de la STEP, neuf RPH ont été mesurés à des concentrations médianes supérieures à 100 ng/L : le sulfaméthoxazole (825 ng/L), l'ofloxacine (291 ng/L), la carbamazépine (215 ng/L), l'aténolol (206 ng/L), le diclofénac (144 ng/L) et l'oxazépam (114 ng/L). Sept composés ont été quantifiés à moins de 10 ng/L, en particulier l'estrone (7 ng/L) et l'ibuprofène (9 ng/L). Les autres molécules (N = 10) sont présentes à des concentrations comprises entre 10 et 100 ng/L. La somme de l'ensemble des RPH trouvés atteint une valeur médiane de 2 692 ng/L.

Ces concentrations sont cohérentes avec celles trouvées classiquement dans les rejets de STEP, même si elles se situent plutôt dans la fourchette basse [MIÈGE *et al.*, 2009 ; DEBLONDE *et al.*, 2011 ; LOOS *et al.*, 2013]. En particulier, le paracétamol et l'ibuprofène sont présents à des concentrations plus faibles que dans la littérature, probablement du fait de la nitrification totale favorisant la biodégradation des micropolluants organiques [CLARA *et al.*, 2005 ; MCADAM *et al.*, 2010]. Au contraire, les concentrations de sulfaméthoxazole rencontrées sont plutôt hautes,

puisque des concentrations moyennes de 150 à 280 ng/L sont reportées dans la littérature [JELI *et al.*, 2012 ; VERLICCHI *et al.*, 2012].

Lorsque l'usine fonctionnait en configuration dégradée pendant l'hiver (nitrification partielle et traitement du carbone moins poussé), la qualité des eaux alimentant le prototype a logiquement évolué. Des augmentations modérées (*tableau II*) ont été observées pour le COD ($5,6 \pm 0,9$ vs $7,5 \pm 0,5$ mgC/L – nominale vs dégradée), l'UV-254 ($0,110 \pm 0,013$ vs $0,139 \pm 0,011$ cm⁻¹), la DBO₅ ($4,8 \pm 3,3$ vs $5,8 \pm 0,9$ mgO₂/L), le NTK ($1,5 \pm 0,2$ vs $4,9 \pm 0,5$ mgN/L), le NH₄⁺ (< LQ vs $4,4 \pm 0,7$ mgN/L), le NO₃⁻ ($9,1 \pm 2,9$ vs $23,7 \pm 2,1$ mgN/L) et les MES (3 vs 6 mg/L).

Globalement, la concentration des micropolluants est plus importante lors de la phase 2. Durant cette phase, la somme des RPH en entrée du prototype (9 615 ng/L – médiane) est plus de trois fois supérieure à celle calculée pour la phase 1. Seuls quatre composés (sulfaméthoxazole, ofloxacine, ciprofloxacine et carbamazépine) ne suivent pas cette tendance. Les périodes durant lesquelles les campagnes d'analyses ont été réalisées peuvent expliquer partiellement les différences. Les campagnes d'analyses de la phase 2 ont été réalisées en hiver alors que celles



STEP : station d'épuration.

Figure 4. Concentrations des résidus pharmaceutiques et hormones (RPH) dans les eaux de rejet de Seine Centre (entre parenthèses : fréquence de quantification/nombre de campagnes)

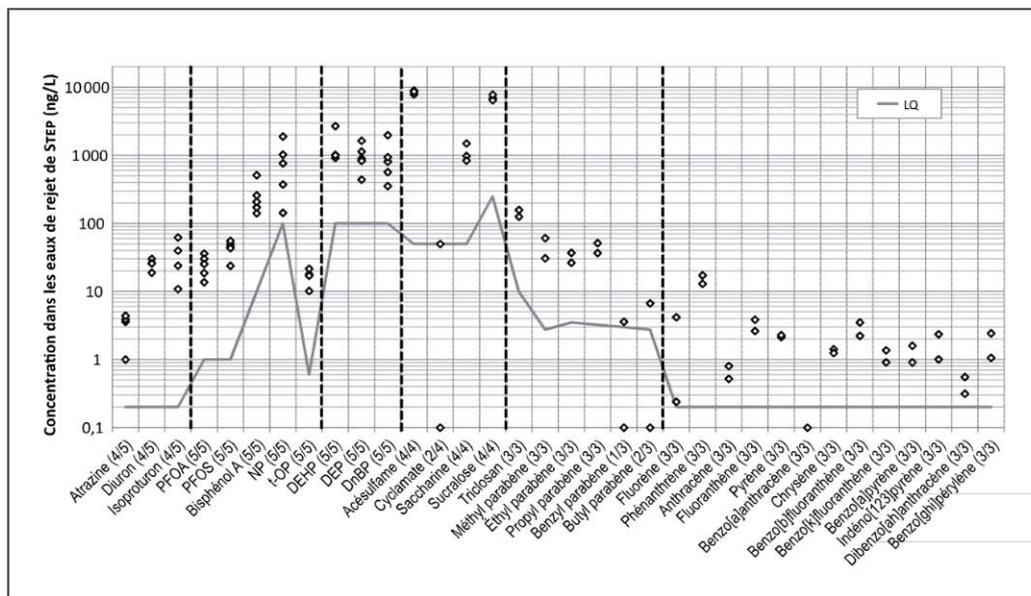
de la phase 1 ont été effectuées en périodes printanière et estivale. On peut supposer que la variabilité saisonnière explique en partie les différences de concentration. Le fait que le traitement biologique ait été moins performant lors de la phase 2 peut également expliquer l'augmentation des niveaux de concentration. C'est par exemple le cas du paracétamol et de l'ibuprofène, composés connus pour être biodégradés au cours du traitement biologique [JOSS *et al.*, 2005 ; RADJENOVI *et al.*, 2009], dont les concentrations médianes respectives ont été multipliées par 200 et 100 entre les deux phases. De même, la variabilité saisonnière ne peut expliquer totalement les concentrations médianes dix fois plus importantes en configuration dégradée pour le kétoprofène, le naproxène et le bézafibrate.

2.1.2. Cas des autres micropolluants

Sur les 59 autres micropolluants organiques recherchés spécifiquement pendant la phase 2 (configuration dégradée de la station), 34 ont été mesurés au moins une fois dans les eaux de rejet de la STEP. Parmi eux, seuls trois pesticides sur 23 ont été détectés dans les effluents de la station. Les phtalates, les édulcorants artificiels, les alkylphénols, le bisphénol A, les acides perfluorés, les parabènes et le triclosan ont systématiquement été quantifiés.

Ces molécules ont été dosées à des niveaux de concentration très contrastés (figure 5). En raison de leur consommation et de leur résistance aux traitements biologiques conventionnels [LANGE *et al.*, 2012], les concentrations en édulcorants (acésulfame et sucralose) sont très élevées, comprises entre 5 000 et 10 000 ng/L. Bien que l'impact environnemental de ces molécules soit peu renseigné, ces composés sont aujourd'hui reconnus comme polluants émergents fortement persistants. Les concentrations en phtalates sont également assez élevées, leurs concentrations étant comprises entre 300 et 2 000 ng/L. Le bisphénol A, le triclosan, les 4-nonylphénols (NP), le cyclamate et la saccharine ont été dosés à des niveaux de concentration compris entre 100 et 1 000 ng/L. Pour les autres molécules, les concentrations ont systématiquement été inférieures à 100 ng/L. Ainsi, les concentrations en diuron, isoproturon, acides perfluorés et parabènes sont comprises entre 10 et 100 ng/L, et les HAP ont tous été quantifiés à des concentrations inférieures à 20 ng/L.

Les concentrations mesurées sont très proches de celles observées dans la littérature pour les pesticides, les acides perfluorés, le bisphénol A, le triclosan et les phtalates [DEBLONDE *et al.*, 2011 ; BERGÉ *et al.*, 2013 ; LOOS *et al.*, 2013 ; ZAREITALABAD *et al.*,



LQ : limite de quantification ; STEP : station d'épuration.

Figure 5. Concentrations des autres micropolluants organiques dans les eaux de rejet de Seine Centre (entre parenthèses : fréquence de quantification/nombre de campagnes)

2013 ; LUO *et al.*, 2014], alors qu'elles sont plutôt faibles pour les édulcorants artificiels [BERSET et OCHSENBEIN 2012 ; ORDÓÑEZ *et al.*, 2012] et les HAP [FATONE *et al.*, 2011 ; SÁNCHEZ-AVILA *et al.*, 2011 ; QIAO *et al.*, 2014]. Pour les parabènes, les concentrations trouvées sont légèrement plus élevées que celles trouvées par GEARA-MATTA [2012] dans les eaux de rejet de la même station d'épuration, ce qui met en évidence l'influence de la dégradation du traitement amont pour cette famille de molécules. On peut supposer que les niveaux de concentrations pour ces différentes molécules auraient été plus faibles si la station d'épuration avait fonctionné en régime nominal, c'est-à-dire avec un traitement poussé de la pollution carbonée et une nitrification complète.

2.2. Performances épuratoires du prototype CarboPlus

2.2.1. Efficacité sur les effluents de Step

- Cas de la pollution carbonée et azotée

Le prototype CarboPlus permet d'améliorer la qualité générale des eaux de rejet (*tableau II*). Lors de la phase 1, les différents paramètres caractérisant la pollution carbonée ont été abattus de façon notable, notamment la concentration en COD (35 ± 24 % ;

moyenne \pm écart-type), en DCO (13 ± 14 %), en DBO₅ (39 ± 19 %) et l'absorbance UV-254 (32 ± 14 %). Ces résultats sont en accord avec ceux d'études récentes [BOEHLER *et al.*, 2012 ; MARGOT *et al.*, 2013]. La phase 2, durant laquelle le prototype a été alimenté avec une eau contenant une concentration résiduelle d'ammonium, a également permis de mettre en évidence la capacité de nitrification du lit de charbon. Malgré le faible temps de séjour de l'effluent dans le réacteur, une nitrification partielle a eu lieu dans celui-ci (rendement d'élimination du NH₄⁺ de 20 ± 7 %). Cette nitrification, intéressante dans la mesure où elle permet d'affiner le traitement biologique (oxydation du NH₄⁺ ou des NO₂⁻ résiduels), sera d'autant plus forte que l'âge du charbon est élevé. Ainsi, on peut supposer que cette capacité nitrifiante sera plus importante lorsque le prototype sera alimenté avec du charbon actif micrograin (CAμG), configuration dans laquelle le charbon actif reste 2 à 3 mois dans le réacteur avant d'être soutiré.

- Cas des résidus pharmaceutiques et hormones

Les performances du prototype CarboPlus vis-à-vis des micropolluants sont présentées sur les *figures 6* et *8*. Les résultats sont représentés sous forme de boîtes à moustaches (minimum, 1^{er} quartile, 3^e quartile, maximum) lorsque le nombre de valeurs

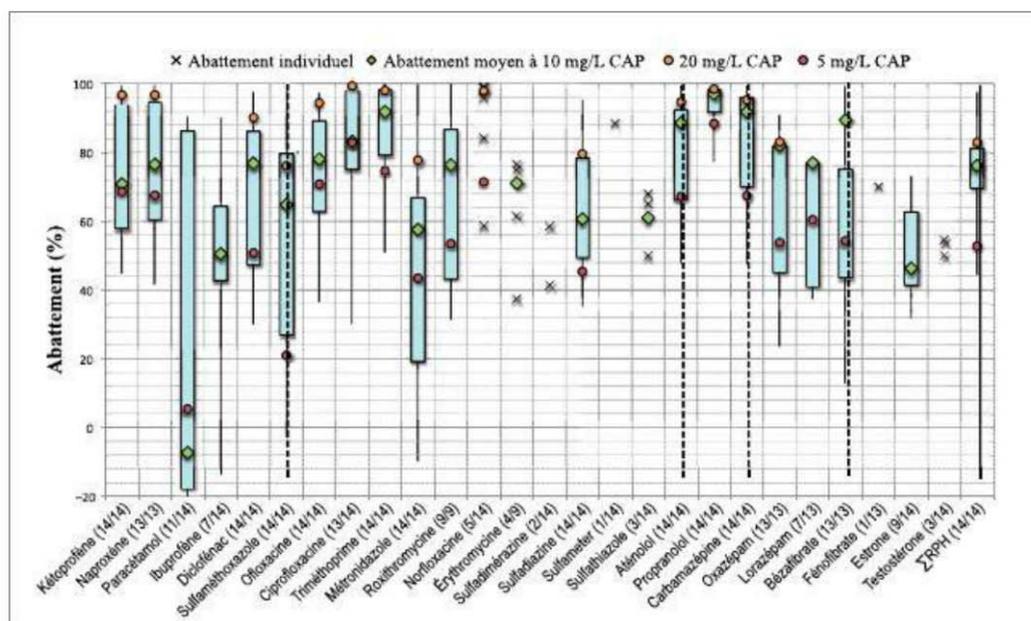


Figure 6. Abattements des résidus pharmaceutiques et hormones (RPH) mesurés sur le prototype CarboPlus alimenté en charbon actif en poudre (CAP) (14 campagnes de prélèvement) – entre parenthèses : fréquence de quantification/nombre de campagnes

est supérieur à 6, alors que les abattements individuels sont illustrés lorsque moins de valeurs sont disponibles. Ces boîtes à moustaches ont été calculées en intégrant les résultats des 14 campagnes de mesures. Durant ces 14 campagnes, les taux de traitement en CAP ont fluctué entre 5, 10 et 20 g/m³ et la qualité de l'eau d'alimentation a évolué (traitement amont poussé [phase 1] ou configuration dégradée [phase 2]). Ainsi, pour faciliter l'interprétation des résultats, les abattements médians calculés pour les trois taux de traitement testés en configuration nominale ont été ajoutés au graphique.

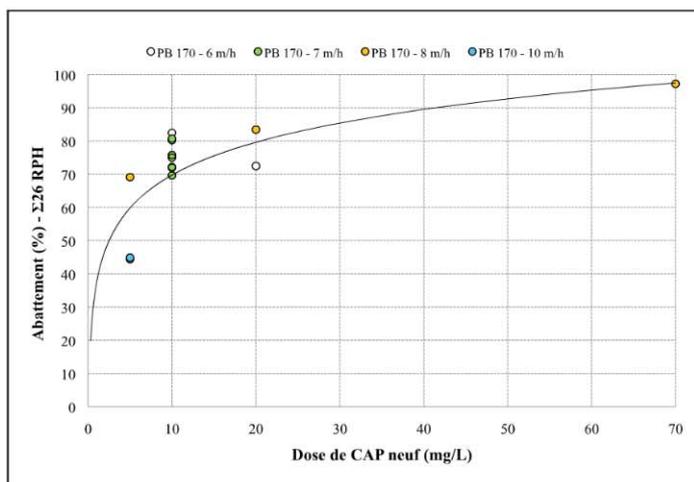
L'application d'un taux de traitement de 10 g/m³ permet d'atteindre de bons rendements d'élimination pour un grand nombre de composés (losange vert). Ainsi, huit composés sont abattus à plus de 80 % : propranolol (98 %), carbamazépine (92 %), triméthoprime (92 %), aténolol (89 %), oxazépam (85 %) ou cipro-

floxacin (83 %). Un panel important de composés est éliminé à des rendements d'élimination compris entre 60 et 80 % : ofloxacine (78 %), diclofénac (77 %), naproxène (77 %), sulfaméthoxazole (65 %) ou sulfadiazine (61 %). L'augmentation du taux de traitement à 20 g/m³ permet d'augmenter encore l'efficacité du traitement (rond orange). Le gain est particulièrement important pour certains micropolluants : kétoprofène (97 %), naproxène (97 %), ofloxacine (94 %), diclofénac (90 %), sulfadiazine (80 %) ou sulfaméthoxazole (76 %). Globalement, en passant d'un taux de traitement de 10 à 20 g/m³, le nombre de composés abattus à plus de 80 % passe à une quinzaine, et seul le paracétamol est toujours abattu à moins de 50 %. À l'inverse, on note que logiquement l'application d'un taux de traitement de 5 g/m³ (rond rouge) n'est pas suffisante et dégrade sensiblement les performances du traitement.

LQ (ng/L)	Configuration nominale de la STEP (n = 9)						Configuration dégradée de la STEP (n = 5)				
	Entrée pilote		Sortie pilote		Abattement (%) Moy. ± SD (min - max)	Entrée pilote		Sortie pilote		Abattement (%) Moy. ± SD (min - max)	
	N	Concentration Moy. ± SD (min - max)	N	Concentration Moy. ± SD (min - max)		N	Concentration Moy. ± SD (min - max)	N	Concentration Moy. ± SD (min - max)		
Couleur (mgPt/L)	0	9/9	33 ± 6 (25 - 45)	9/9	22 ± 11 (10 - 40)	32 ± 32 (0 - 75)	5/5	37 ± 8 (25 - 45)	5/5	28 ± 7 (20 - 35)	24 ± 4 (20 - 29)
UV 254 nm (cm ⁻¹)	0	9/9	0,110 ± 0,013 (0,087 - 0,120)	9/9	0,075 ± 0,020 (0,047 - 0,106)	32 ± 14 (19 - 57)	5/5	0,139 ± 0,011 (0,126 - 0,152)	5/5	0,109 ± 0,008 (0,099 - 0,120)	21 ± 2 (19 - 24)
COD (mgC/L)	0,5	9/9	5,6 ± 0,9 (4,4 - 7,0)	9/9	3,5 ± 1,2 (1,2 - 5,2)	35 ± 24 (13 - 62)	5/5	7,5 ± 0,5 (7,1 - 8,3)	5/5	5,8 ± 0,4 (5,4 - 6,4)	22 ± 4 (18 - 29)
DCO (mgO ₂ /L)	4	9/9	26 ± 11 (17 - 47)	9/9	34 ± 22 (13 - 74)	12 ± 14 (0 - 35)	5/5	26 ± 2 (23 - 28)	5/5	21 ± 2 (19 - 25)	17 ± 10 (4 - 30)
DBO ₅ (mgO ₂ /L)	0,5	9/9	4,8 ± 3,3 (2,8 - 11,0)	9/9	3,5 ± 1,9 (1,3 - 7,0)	39 ± 19 (19 - 69)	5/5	5,8 ± 0,9 (4,9 - 7,0)	5/5	3,0 ± 0,5 (2,4 - 3,7)	48 ± 10 (38 - 60)
NH ₄ ⁺ (mgN/L)	0,3	0/9	< LQ	0/9	< LQ	–	5/5	4,4 ± 0,7 (3,2 - 5,0)	5/5	3,5 ± 0,5 (2,9 - 4,0)	20 ± 7 (9 - 29)
NO ₂ ⁻ (mgN/L)	0,02	9/9	0,21 ± 0,17 (0,06 - 0,23)	8/9	0,15 ± 0,16 (< LQ - 0,30)	20 ± 93 (< 0 - 88)	5/5	0,7 ± 0,02 (0,05 - 0,09)	5/5	0,29 ± 0,16 (0,03 - 0,46)	< 0 (< 0 - 50)
NO ₃ ⁻ (mgN/L)	0,4	9/9	9,1 ± 2,9 (5,6 - 11,7)	9/9	8,5 ± 2,8 (4,9 - 13,7)	7 ± 11 (< 0 - 30)	5/5	23,7 ± 2,1 (20,6 - 25,4)	5/5	24,4 ± 2,5 (20,7 - 26,6)	< 0 (< 0 - 0)
NTK (mgN/L)	0,5	9/9	1,5 ± 0,2 (1,1 - 1,8)	9/9	1,2 ± 0,1 (0,9 - 1,3)	18 ± 16 (0 - 38)	5/5	4,9 ± 0,5 (4,1 - 5,5)	5/5	3,9 ± 0,4 (3,4 - 4,4)	20 ± 7 (10 - 26)
PO ₄ ³⁻ (mgP/L)	0,1	0/5	< LQ	0/5	< LQ	–	0/5	< LQ	0/5	< LQ	–
Ptot (mgP/L)	0,3	0/5	< LQ	0/5	< LQ	–	0/5	< LQ	0/5	< LQ	–
MES (mg/L)	2,0	9/9	3 ± 1 (2 - 5)	9/9	9 ± 7 (2 - 21)	< 0 (< 0 - 33)	5/5	6 ± 2 (4 - 9)	5/5	5 ± 2 (2 - 6)	14 ± 42 (< 0 - 60)

Moy. ± SD = moyenne ± écart-type ; n = nombre de campagnes ; N = nombre de fois quantifié ; STEP : station d'épuration ; LQ : limite de quantification ; COD : carbone organique dissous ; DCO : demande chimique en oxygène ; DBO₅ : demande biochimique en oxygène ; NTK : azote total Kjeldahl ; Ptot : phosphore total ; MES : matières en suspension.

Tableau II. Qualité globale de l'eau en entrée et en sortie de traitement, et efficacité du pilote CarboPlus sur les paramètres globaux



RPH : résidus pharmaceutiques et hormones.

Figure 7. Influence de la dose de charbon actif en poudre (CAP) sur les performances du pilote CarboPlus

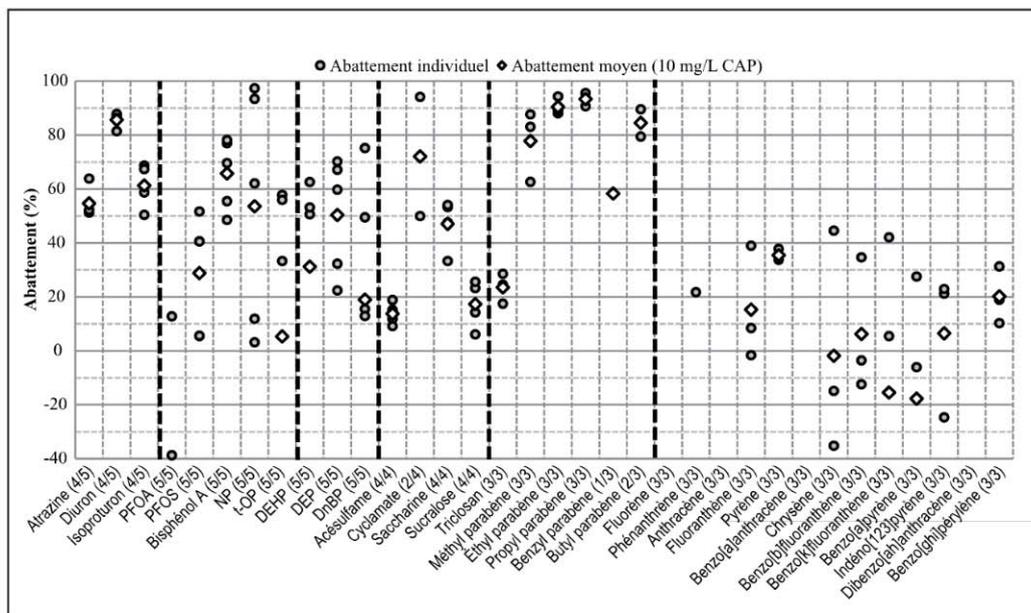
Ce lien entre taux de traitement et l'efficacité du procédé est parfaitement illustré par la figure 7. Cette figure, reprenant l'abattement de la somme des RPH, montre que la dose et les abattements sont liés par une relation de type logarithmique. Sur la gamme de taux de traitement étudié, un gain de 10-15 % est obtenu à chaque fois que la dose est doublée.

Les études sur l'utilisation du charbon actif comme traitement tertiaire des eaux usées sont très rares et

récentes, mais les quelques données disponibles sont en accord avec les résultats obtenus [BOEHLER *et al.*, 2012 ; MARGOT *et al.*, 2013 ; ALTMANN *et al.*, 2014 ; LÖWENBERG *et al.*, 2014]. En particulier, MARGOT et coll. [2013] ont étudié l'élimination des RPH par un pilote de traitement tertiaire des eaux usées en Suisse, dont 16 molécules communes à cette étude. À dose de charbon équivalente, les abattements qu'ils observent sont très proches de ceux obtenus dans le cadre de cette étude, malgré des différences de procédé et de qualité des eaux. Seuls le paracétamol et l'ibuprofène sont beaucoup mieux abattus dans leur étude ; cette différence s'expliquant néanmoins par le fait que les niveaux de concentration de leurs influents étaient sensiblement supérieurs à ceux rencontrés dans ce travail. Les performances similaires obtenues pour ces deux études menées à l'échelle industrielle tendent à suggérer que les performances de ce type de procédé sont stables. Une extrapolation des résultats à d'autres situations, en tenant compte des éventuelles différences de qualité d'eau (COD, UV-254, etc.), peut donc être envisagée.

• Cas des autres micropolluants

Les abattements observés sont plus variables que pour les RPH. Les pesticides, le bisphénol A et les



CAP : charbon actif en poudre ; PFOA : acide perfluorooctanoïque ; PFOS : acide perfluorooctanesulfonique ; NP : nonylphénol ; t-OP : para-*tert*-octylphénol ; DEHP : di(2-éthylhexyl)phthalate ; DEP : phthalate de diéthyle ; DnBP : phthalate de di-*n*-butyle.

Figure 8. Abattements des autres micropolluants organiques par le prototype CarboPlus en configuration dégradée de la station d'épuration (entre parenthèses : fréquence de quantification/nombre de campagnes)

parabènes sont tous abattus à plus de 60 %, alors que les HAP, le triclosan, l'acésulfame, le sucralose, les acides perfluorés et le para-*tert*-octylphénol (t-OP) sont peu ou pas abattus (< 30 %) (figure 8). Les phtalates et les NP ont des abattements très variables, mais sont plutôt modérément abattus (30-60 %). Enfin, la saccharine est éliminée à hauteur de 50 % par le prototype CarboPlus. Toutefois, il convient de rappeler que ces résultats ont été obtenus alors que la station d'épuration fonctionnait en configuration dégradée, et les performances seraient probablement meilleures avec une eau d'alimentation mieux épurée.

2.2.2. Influence du traitement amont sur l'efficacité du prototype CarboPlus

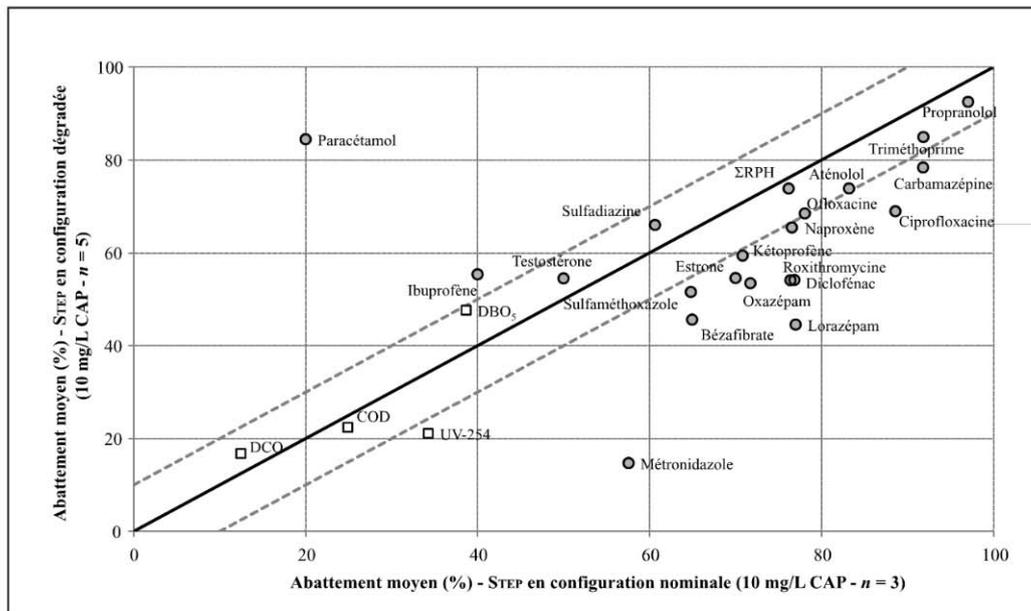
En configuration dégradée, la station d'épuration élimine la pollution carbonée et ammoniacale de manière moins poussée. Comme indiqué précédemment, la moindre efficacité du traitement biologique induit un abattement moins poussé des micropolluants et, par conséquent, une augmentation de leurs concentrations dans les eaux d'alimentation du prototype (§ 2.1., figure 4).

La figure 9 permet d'apprécier les différences de performances du pilote vis-à-vis des paramètres

globaux et des micropolluants, selon la qualité du traitement effectué en amont. Les abattements calculés dans le cas d'un fonctionnement nominal de la station figurent en abscisse et ceux calculés dans le cas d'un fonctionnement dégradé figurent en ordonnée. La droite $Y = X$ correspond donc à une élimination équivalente dans les deux cas.

Globalement, les rendements d'élimination restent élevés, quelle que soit la configuration de traitement de la station d'épuration. Ce maintien des performances est lié au fait que la qualité des eaux traitées en configuration dégradée reste tout à fait acceptable. Le passage en configuration dégradée conduit à une augmentation des concentrations en COD et DBO₅ de 20-30 % par rapport au fonctionnement nominal, mais les concentrations restent respectivement inférieures à 8 et 7 mgO₂/L.

Pour la plupart des RPH, le passage en configuration dégradée entraîne une légère diminution du rendement d'élimination, et ce malgré des concentrations en entrée plus fortes. Cette tendance peut s'expliquer par une augmentation de la quantité de matière organique (COD et UV-254) dans le cas d'un fonctionnement dégradé. Cette matière organique peut entrer en compétition avec les micropolluants



CAP : charbon actif en poudre ; COD : carbone organique dissous ; DCO : demande chimique en oxygène ; DBO₅ : demande biochimique en oxygène ; RPH : résidus pharmaceutiques et hormones.

Figure 9. Influence de la dégradation du traitement amont de la station d'épuration (STEP) sur les performances du prototype CarboPlus (ligne pleine noire : $y = x$; lignes en pointillé : moins de 10 % d'écart entre y et x)

organiques et fortement limiter leur adsorption sur le CAP [DE RIDDER *et al.*, 2011 ; DELGADO *et al.*, 2012]. De plus, l'augmentation des concentrations de la plupart des micropolluants entraîne une compétition intermolécules plus forte pour une même dose de CAP. La combinaison entre un nombre de molécules à adsorber plus grand et la présence de plus de compétiteurs pour un même nombre de sites d'adsorption disponibles entraîne *in fine* des abattements plus faibles. Par ailleurs, les molécules pour lesquelles la concentration en entrée de prototype était équivalente au cours des deux phases (triméthoprime, métronidazole, roxithromycine, estrone), sont plutôt moins bien abattues lors de la phase 2, ce qui confirme les effets de compétition intermoléculaire et avec la matière organique.

On note néanmoins que plusieurs molécules présentent des abattements équivalents dans les deux configurations, notamment les deux bêtabloquants et le triméthoprime. Le paracétamol et l'ibuprofène sont même mieux abattus lors de la phase 2. Ces performances meilleures résultent principalement du fait que leurs niveaux de concentration dans l'influent étaient sensiblement plus élevés en régime dégradé (augmentation d'un facteur supérieur à 100 – § 2.1 – *figure 4*). C'est d'ailleurs ces deux molécules qui expliquent que, bien que la plupart des composés soient mieux éliminés en régime nominal, des abattements similaires soient calculés pour la somme des RPH entre les deux phases (*figure 9*, 75 % d'abattement).

Conclusions et perspectives

Cette étude menée à l'échelle industrielle a permis de caractériser les performances du procédé CarboPlus, alimenté avec du CAP. Les différentes campagnes de mesure ont montré que l'application d'un taux de traitement de 10 g/m³ permettait d'atteindre de bons rendements d'élimination pour un grand nombre de composés ; huit composés étant abattus à plus de 80 %. L'augmentation du taux de traitement jusqu'à 20 g/m³ permet logiquement d'augmenter cette efficacité. En passant d'un taux de traitement de 10 à 20 g/m³, le nombre de composés abattus à plus de 80 % passe à une quinzaine. Le gain est

particulièrement important pour certains micropolluants : kétoprofène, naproxène, ofloxacine, sulfadiazine, sulfaméthoxazole ou diclofénac, cette dernière molécule étant éliminée à 90 % avec ce taux de traitement.

Le prototype CarboPlus peut également fonctionner avec du charbon de type micrograin (CA μ G), c'est-à-dire un charbon de taille intermédiaire entre la poudre (< 100 μ m) et le grain (> 800 μ m). L'utilisation de ce type de charbon présente un certain nombre d'avantages. Il permet tout d'abord de s'affranchir de l'ajout de coagulant et de floculant dans la mesure où les caractéristiques mêmes du charbon permettent un maintien du lit aisé. Outre cet intérêt opérationnel, l'alimentation du procédé CarboPlus avec du charbon de type micrograin permet de maintenir plus longtemps le charbon dans le réacteur (quelques mois dans le cas du CA μ G *versus* quelques jours pour le CAP). Maintenir cette masse de charbon importante dans le lit améliore encore l'élimination des micropolluants et permet un véritable affinage du traitement biologique par l'installation d'un biofilm au sein du lit de charbon. Cette élimination biologique peut s'avérer particulièrement intéressante pour la maîtrise des concentrations résiduelles en NH₄⁺ et NO₂⁻ en sortie de station d'épuration. Le fonctionnement du procédé CarboPlus avec une alimentation en CA μ G est actuellement en cours d'étude. Les premiers résultats indiquent que cette configuration permet d'obtenir des abattements en micropolluants comparables à la poudre, tout en affinant le traitement de l'azote par nitratisation. Le CA μ G permet également une rétention importante des MES.

Remerciements

Les auteurs remercient Céline Briand (Siaap) et Séverine Bareilles (Saur) pour le soutien technique apporté à ce projet, ainsi que la cellule technique du Leesu et les équipes de l'ISA pour leur participation aux analyses des échantillons.

Bibliographie

- ALTMANN J., RUHL A.S., ZIETZSCHMANN F., JEKEL M. (2014) : « Direct comparison of ozonation and adsorption onto powdered activated carbon for micropollutant removal in advanced wastewater treatment ». *Water Research* ; 55(0) : 185-93.
- BARREK S., CREN-OLIVÉ C., WIEST L., BAUDOT R., ARNAUDGUILHEM C., GRENIER-LOUSTALOT M.-F. (2009) : « Multi-residue analysis and ultra-trace quantification of 36 priority substances from the European Water Framework Directive by GC-MS and LC-FLD-MS/MS in surface waters ». *Talanta* ; 79(3) : 712-22.
- BERGÉ A., CLADIÈRE M., GASPÉRI J., COURSIMAULT A., TASSIN B., MOILLERON R. (2013) : « Meta-analysis of environmental contamination by phthalates ». *Environmental Science and Pollution Research* ; 20(11) : 8057-76.
- BERGÉ A., GASPÉRI J., ROCHER V., GRAS L., COURSIMAULT A., MOILLERON R. (2014) : « Phthalates and alkylphenols in industrial and domestic effluents: Case of Paris conurbation (France) ». *Science of the Total Environment* ; 488-489(0) : 26-35.
- BERSET J.-D., OCHSENBEIN N. (2012) : « Stability considerations of aspartame in the direct analysis of artificial sweeteners in water samples using high-performance liquid chromatography-tandem mass spectrometry (HPLC-MS/MS) ». *Chemosphere* ; 88(5) : 563-9.
- BOEHLER M., ZWICKENPFLUG B., HOLLENDER J., TERNES T., JOSS A., SIEGRIST H. (2012) : *Removal of micropollutants in municipal wastewater treatment plants by powder-activated carbon*. International Water Association, London, Royaume-Uni.
- BRESSY A., GROMAIRE M.C., LORGEUX C., SAAD M., LEROY F., CHEBBO G. (2012) : « Towards the determination of an optimal scale for stormwater quality management: Micropollutants in a small residential catchment ». *Water Research* ; 20 : 6799-810.
- ÇEÇEN F., AKTAS Ö. (2012) : *Activated carbon for water and wastewater treatment integration of adsorption and biological treatment*. Wiley-VCH, Weinheim, Germany.
- CLARA M., STRENN B., GANS O., MARTINEZ E., KREUZINGER N., KROISS H. (2005) : « Removal of selected pharmaceuticals, fragrances and endocrine disrupting compounds in a membrane bioreactor and conventional wastewater treatment plants ». *Water Research* ; 39(19) : 4797-807.
- DE RIDDER D.J., VERLIEFDE A.R., HEIJMAN S.G., VERBERK J.Q., RIETVELD L.C., VAN DER AA L.T., *et al.* (2011) : « Influence of natural organic matter on equilibrium adsorption of neutral and charged pharmaceuticals onto activated carbon ». *Water Sci Technol* ; 63(3) : 416-23.
- DEBLONDE T., COSSU-LEGUILLÉ C., HARTEMANN P. (2011) : « Emerging pollutants in wastewater: A review of the literature ». *International Journal of Hygiene and Environmental Health* ; 214(6) : 442-8.
- DELGADO L.F., CHARLES P., GLUCINA K., MORLAY C. (2012) : « The removal of endocrine disrupting compounds, pharmaceutically activated compounds and cyanobacterial toxins during drinking water preparation using activated carbon – A review ». *Science of the Total Environment* ; 435-436(0) : 509-25.
- EBIE K., LI F., AZUMA Y., YUASA A., HAGISHITA T. (2001) : « Pore distribution effect of activated carbon in adsorbing organic micropollutants from natural water ». *Water Research* ; 35(1) : 167-79.
- Fatone F., Di Fabio S., Bolzonella D. and Cecchi F. (2011). Fate of aromatic hydrocarbons in Italian municipal wastewater systems: An overview of wastewater treatment using conventional activated-sludge processes (CASP) and membrane bioreactors (MBRs). *Water Research* 45(1), 93-104.
- GASPÉRI J., GEARA D., LORGEUX C., BRESSY A., ZEDEK S., ROCHER V., *et al.* (2014) : « First assessment of triclosan, triclocarban and paraben mass loads at a very large regional scale: Case of Paris conurbation (France) ». *Science of the Total Environment* ; 493(0) : 854-61.
- GASPÉRI J., ROCHER V., GILBERT S., AZIMI S., CHEBBO G. (2010) : « Occurrence and removal of priority pollutants by lamella clarification and biofiltration ». *Water Research* ; 44(10) : 3065-76.
- GEARA-MATTA D. (2012) : *Produits cosmétiques émergents (parabènes, triclosan et triclocarban) dans les eaux usées résiduelles* [thèse]. Sciences et Techniques de l'Environnement, Université Paris-Est.
- GILBERT S., GASPÉRI J., ROCHER V., LORGEUX C., CHEBBO G. (2011) : « Traitement des eaux de temps de pluie à la station Seine Centre. Étude des paramètres globaux, des alkylphénols et des polybromodiphényléthers ». *Techniques Sciences Méthodes* ; 4 : 63-72.
- GILBERT S., GASPÉRI J., ROCHER V., LORGEUX C., CHEBBO G. (2012) : « Removal of alkylphenols and polybromodiphenylethers by a biofiltration treatment plant during dry and wet-weather periods ». *Water Science and Technology* ; 65(9) : 1591-8.
- GONÇALVES A., ROCHER V., PICHON S. (2009) : « Qualité bactériologique des eaux de la région parisienne. De l'eau d'égout au milieu récepteur ». *Techniques Sciences Méthodes* ; 3 : 38-49.
- HEBERER T. (2002) : « Occurrence, fate and removal of pharmaceutical residues in the aquatic environment: a review of recent research data ». *Toxicology Letters* ; 131(1-2) : 5-17.
- JELI A., GROS M., PETROVI M., GINEBRED A., BARCELÓ D. (2012) : « Occurrence and elimination of pharmaceuticals during conventional wastewater treatment. In : *Emerging and priority pollutants in rivers*, Springer Berlin Heidelberg, pp. 1-23.
- JORGENSEN S.E., HALLING-SØRENSEN B. (2000) : « Drugs in the environment ». *Chemosphere* ; 40(7) : 691-9.
- JOSSA, KELLER E., ALDER A.C., GÖBEL A., MCARDELL C.S., TERNES T., SIEGRIST H. (2005) : « Removal of pharmaceuticals and fragrances in biological wastewater treatment ». *Water Research* ; 39(14) : 3139-52.

- LANGE F., SCHEURER M., BRAUCH H.-J. (2012) : « Artificial sweeteners – a recently recognized class of emerging environmental contaminants: a review ». *Analytical and Bioanalytical Chemistry* ; 403(9) : 2503-18.
- LOOS R., CARVALHO R., ANTÓNIO D. C., COMERO S., LOCORO G., TAVAZZI S., *et al.* (2013) : « EU-wide monitoring survey on emerging polar organic contaminants in wastewater treatment plant effluents ». *Water Research* ; 47(17) : 6475-87.
- LÖWENBERG J., ZENKER A., BAGGENSTOS M., KOCH G., KAZNER C., WINTGENS T. (2014) : « Comparison of two PAC/UF processes for the removal of micropollutants from wastewater treatment plant effluent: Process performance and removal efficiency ». *Water Research* ; 56(0) : 26-36.
- LUO Y., GUO W., NGO H.H., NGHIEM L.D., HAI F.I., ZHANG J., *et al.* (2014). « A review on the occurrence of micropollutants in the aquatic environment and their fate and removal during wastewater treatment. *Science of the Total Environment* ; 473-474(0) : 619-41.
- MAILLER R., GASPÉRI J., ROCHER V., GILBERT-PAWLIK S., GEARA-MATTA D., MOILLERON R., CHEBBO G. (2014). Biofiltration vs conventional activated sludge plants: what about priority and emerging pollutants removal? *Environmental Science and Pollution Research* 21(8), 5379-90.
- MAILLER R., GASPÉRI J., COQUET Y., DEROME C., BULETÉ A., VULLIET E., *et al.* (2016) : « Élimination des polluants émergents dans les rejets de STEP – 2. Étude expérimentale des processus de sorption sur le charbon actif ». *Techniques Sciences Méthodes* ; 3 : 28-40.
- MARGOT J., KIENLE C., MAGNET A., WEIL M., ROSSI L., DE ALENCASTRO L.F., *et al.* (2013) : « Treatment of micropollutants in municipal wastewater: Ozone or powdered activated carbon? » *Science of the Total Environment* ; 461-462(0) : 480-98.
- MCADAM E.J., BAGNALL J.P., KOH Y.K.K., CHIU T.Y., POLLARD S., SCRIMSHAW M.D., *et al.* (2010) : « Removal of steroid estrogens in carbonaceous and nitrifying activated sludge processes ». *Chemosphere* ; 81(1) : 1-6.
- MIÈGE C., CHOUBERT J.M., RIBEIRO L., EUSÈBE M., COQUERY M. (2009). Fate of pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment plants – Conception of a database and first results. *Environmental Pollution* ; 157(5) : 1721-6.
- ORDÓÑEZ E.Y., QUINTANA J.B., RODIL R., CELA R. (2012) : « Determination of artificial sweeteners in water samples by solid-phase extraction and liquid chromatography-tandem mass spectrometry ». *Journal of Chromatography A* ; 1256(0) : 197-205.
- PAFFONI C., ROUSSELOT O. (2008). « Autosurveillance du milieu naturel et connaissance de sa qualité : la Seine en région parisienne ». *Techniques Sciences Méthodes* ; 4 : 33-44.
- QIAO M., QI W., LIU H., QU J. (2014) : « Occurrence, behavior and removal of typical substituted and parent polycyclic aromatic hydrocarbons in a biological wastewater treatment plant ». *Water Research* ; 52(0) : 11-9.
- RADJENOVI J., PETROVI M., BARCELÓ D. (2009) : « Fate and distribution of pharmaceuticals in wastewater and sewage sludge of the conventional activated sludge (CAS) and advanced membrane bioreactor (MBR) treatment ». *Water Research* 43(3) ; 831-41.
- ROCHER V., GASPÉRI J., AZIMI S., GILBERT S., PAFFONI C. (2011) : « Comportement des substances prioritaires sur les ouvrages de traitement des eaux usées : cas de la décantation et de la biofiltration ». *Techniques Sciences Méthodes* ; 3 : 20-33.
- ROCHER V., PAFFONI C., GONÇALVES A., GUÉRIN S., AZIMI S., GASPÉRI J., *et al.* (2012) : « Municipal wastewater treatment by biofiltration: comparisons of various treatment layouts. Part 1: assessment of carbon and nitrogen removal ». *Water Science and Technology* ; 65(9) : 1705-12.
- ROGERS H.R. (1996) : « Source, behaviour and fate of organic contaminants during sewage treatment and in sewage sludges ». *Science of the Total Environment* ; 185(1-3) : 3-26.
- RUEL S.M., 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) : 1179-89.
- SÁNCHEZ-AVILA J., FERNANDEZ-SANJUAN M., VICENTE J., LACORTE S. (2011) : « Development of a multi-residue method for the determination of organic micropollutants in water, sediment and mussels using gas chromatography-tandem mass spectrometry ». *Journal of Chromatography A* ; 1218(38) : 6799-811.
- SCHEURER M., BRAUCH H.-J., LANGE F. (2009) : « Analysis and occurrence of seven artificial sweeteners in German waste water and surface water and in soil aquifer treatment (SAT) ». *Analytical and Bioanalytical Chemistry* ; 394(6) : 1585-94.
- VELTEN S., KNAPPE D.R.U., TRABER J., KAISER H.-P., VON GUNTEN U., BOLLER M., MEYLAN S. (2011) : « Characterization of natural organic matter adsorption in granular activated carbon adsorbers ». *Water Research* ; 45(13) : 3951-9.
- VERLICCHI P., AL AUKIDY M., ZAMBELLO E. (2012) : « Occurrence of pharmaceutical compounds in urban wastewater: Removal, mass load and environmental risk after a secondary treatment – A review ». *Science of the Total Environment* ; 429(0) : 123-55.
- VULLIET E., CREN-OLIVÉ C., GRENIER-LOUSTALOT M.-F. (2011) : « Occurrence of pharmaceuticals and hormones in drinking water treated from surface waters ». *Environmental Chemistry Letters* ; 9(1) : 103-14.
- ZAREITALABAD P., SIEMENS J., HAMER M., AMELUNG W. (2013) : « Perfluorooctanoic acid (PFOA) and perfluorooctanesulfonic acid (PFOS) in surface waters, sediments, soils and wastewater – A review on concentrations and distribution coefficients ». *Chemosphere* ; 91(6) : 725-32.

Résumé

V. ROCHER, R. MAILLER, J. GASPÉRI, Y. COQUET, F. NAULEAU, O. ROUSSELOT, S. AZIMI, S. DEHAYES, S. ZEDEK, V. EUDES, A. BRESSY, E. CAUPOS, R. MOILLERON, G. CHEBBO

Élimination des polluants émergents dans les rejets de STEP 1. Étude du procédé CarboPlus à l'échelle du prototype

Le Syndicat interdépartemental pour l'assainissement de l'agglomération parisienne (Siaap), via sa direction du développement et prospective, a engagé un projet de recherche (2013-2015) visant à étudier l'efficacité de différentes techniques de traitement tertiaire vis-à-vis des micropolluants émergents (résidus médicamenteux, hormones, polluants de la directive cadre sur l'eau, etc.) encore présents dans les rejets de station d'épuration. Dans le cadre de ce projet, le procédé CarboPlus, conçu par la société Stéreau et basé sur l'injection de charbon dans un réacteur à lit fluidisé, est étudié en collaboration avec les équipes de la Saur et du Laboratoire eau, environnement et systèmes urbains (Leesu). Les différentes campagnes de mesure ont montré que ce procédé permettait d'éliminer efficacement les

principaux composés suivis. Le niveau d'abattement est directement lié au taux de traitement, c'est-à-dire à la quantité de charbon actif en poudre (CAP) neuf injecté en continu dans le réacteur. L'application d'un taux de traitement de 10 g/m³ est suffisante pour éliminer efficacement un grand nombre de composés ; huit composés étant abattus à plus de 80 % avec ce taux de traitement. L'augmentation de ce dernier jusqu'à 20 g/m³ permet d'augmenter encore l'efficacité du traitement. En passant d'un taux de traitement de 10 à 20 g/m³, le nombre de composés abattus à plus de 80 % passe à une quinzaine. Le gain est particulièrement important pour certains micropolluants : kétoprofène, naproxène, ofloxacine, sulfadiazine ou sulfaméthoxazole, diclofénac ; cette dernière molécule étant éliminée à 90 % avec ce taux de traitement.

Abstract

V. ROCHER, R. MAILLER, J. GASPÉRI, Y. COQUET, F. NAULEAU, O. ROUSSELOT, S. AZIMI, S. DEHAYES, S. ZEDEK, V. EUDES, A. BRESSY, E. CAUPOS, R. MOILLERON, G. CHEBBO

Removal of emerging pollutants from wastewater treatment plants discharges 1. Study of the CarboPlus process

The Research and Development Department of the Siaap launched a research program (2013-2015) aiming at studying the efficiency of different tertiary treatment technologies to remove emerging micropollutants (pharmaceuticals, hormones, WFD pollutants, etc.) which are still detected in the wastewater treatment plants discharges. As a part of this research program, the CarboPlus process, developed by the company Stéreau and based on the fresh activated carbon injection in a fluidized bed reactor, is currently studied with the collaboration of Saur and Water, Environment and Urban Systems Laboratory (Leesu) teams. The sampling campaigns highlighted the efficiency of the process

to remove the studied compounds. Removal rates are directly correlated to the fresh activated carbon dose continuously injected in the reactor. A dose of 10 g/m³ allows removing efficiently a large number of compounds ; 8 compounds are in particular removed at more than 80% at this dose. Increasing the fresh activated carbon dose to 20 g/m³ allows significantly improving the performances. By doubling the dose from 10 to 20 g/m³, the number of compounds with removals higher than 80% reaches 15. The removal gain is particularly high for several micropollutants: ketoprofen, naproxen, ofloxacin, sulfadiazine or sulfamethoxazole, diclofenac ; this last molecule's removal reaches 90% at this PAC dose.

25 | 26
mai 2016

HydroGaïa

Salon International de l'Eau

Montpellier - France | Parc des Expositions | HALL B2

LA SOLUTION BUSINESS DES ACTEURS DE LA FILIÈRE EAU

**GAGNEZ DU TEMPS !
IMPRIMEZ DIRECTEMENT
VOTRE BADGE D'ACCÈS SUR
www.hydrogaia-expo.com**

THÈME 2016 : GESTION DES RESSOURCES EN EAU DANS LE CONTEXTE DES CHANGEMENTS GLOBAUX

- Une plateforme d'échanges et de rencontres autour des enjeux de la ressource Eau
- 2 jours pour booster votre business en France et à l'international
- Un programme complet de conférences pour débattre sur les nouvelles opportunités du marché
- Une zone d'exposition pour rencontrer l'ensemble des acteurs de la filière

www.hydrogaia-expo.com

LANGUEDOC-ROUSSILLON
LA RÉGION MIDI-PYRÉNÉES

Sud de France
Développement
www.suddefrance-developpement.com

Pôle EAU

swelia

France
Water
Team

CREATED BY

MONTPELLIER
EVENTS