



Traitement des eaux résiduaires urbaines par charbon actif en poudre - étude du procédé CarboPlus® pour les polluants prioritaires et émergents

Romain Mailler, Johnny Gasperi, Yves Coquet, Fabrice Nauleau, Olivier Rousselot, Vincent Rocher

► To cite this version:

Romain Mailler, Johnny Gasperi, Yves Coquet, Fabrice Nauleau, Olivier Rousselot, et al.. Traitement des eaux résiduaires urbaines par charbon actif en poudre - étude du procédé CarboPlus® pour les polluants prioritaires et émergents. Journées Information Eaux 2014, Apten; ENSI Poitiers, Nov 2014, Poitiers, France. hal-01081195

HAL Id: hal-01081195

<https://hal-enpc.archives-ouvertes.fr/hal-01081195>

Submitted on 7 Nov 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

TRAITEMENT DES EAUX RESIDUAIRES URBAINES PAR CHARBON ACTIF EN POUDRE - ETUDE DU PROCEDE CARBOPLUS® POUR LES POLLUANTS PRIORITAIRES ET EMERGENTS

Romain MAILLER¹, Johnny GASPERI¹, Yves COQUET², Fabrice NAULEAU², Olivier ROUSSELOT³, Vincent ROCHER³

¹LEESU, 61 avenue du Général de Gaulle 94000 Créteil, maillerr@leesu.enpc.fr - gasperi@u-pec.fr

²SIAAP, Direction du Développement et de la Prospective, 82 avenue Kléber 92700 Colombes, vincent.rocher@siaap.fr

³SAUR, Direction de la Recherche et Développement, 1 rue Antoine Lavoisier 78064 Guyancourt.

INTRODUCTION

Outre les substances prioritaires de la Directive Cadre sur l'Eau (DCE, 2013/39/UE), un très grand nombre de polluants émergents tels que les résidus médicamenteux, les pesticides, les produits de soin corporel, les retardateurs de flamme, etc. sont détectés dans les rejets de station d'épuration (Rogers 1996; Jørgensen & Halling-Sørensen 2000; Heberer 2002). Ces rejets peuvent constituer une source de contamination importante du milieu récepteur, surtout dans les zones où la pression urbaine est forte (Heberer 2002).

Plusieurs études ont montré que les traitements conventionnels des eaux usées (filiales primaires et biologiques) éliminent plus ou moins efficacement les micropolluants hydrophobes, volatiles et facilement biodégradables, bien que non conçus pour les éliminer (Ruel *et al.* 2012; Mailler *et al.* 2013). Cependant, des procédés de traitement tertiaire sont actuellement développés pour les eaux usées car certains micropolluants hydrophiles comme les résidus médicamenteux et les pesticides sont réfractaires aux traitements conventionnels. Parmi les différentes technologies existantes (adsorption, oxydation avancée, filtration membranaire), l'adsorption sur charbon actif est particulièrement intéressante du fait de sa simplicité de mise en œuvre, sa flexibilité, son coût et son efficacité (Abegglen & Siegrist 2012; Boehler *et al.* 2012; Margot *et al.* 2013).

Dans ce contexte, le LEESU (Laboratoire Eau Environnement et Systèmes Urbains) et le SIAAP (Syndicat Interdépartemental d'Assainissement de l'Agglomération Parisienne) ont décidé, dans le cadre du programme OPUR (Observatoire des Polluants Urbains), d'étudier un pilote industriel de traitement par charbon actif en poudre (CAP), installé au niveau du rejet de la station de Seine Centre (Colombes, 92). En plus, des paramètres globaux classiques, 54 résidus médicamenteux et hormones (PhPHs) et 59 autres polluants prioritaires ou émergents (pesticides, acides perfluorés, hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs), produits de soin corporel, phtalates, alkylphénols, édulcorants artificiels) ont été suivis pendant 7 mois. Cette communication présente les résultats de cette étude.

I. MATERIELS ET METHODES

La station de Seine Centre traite 240 000 m³/j d'eaux usées provenant principalement de Paris *intra-muros*. Le traitement se compose d'un prétraitement, d'une décantation lamellaire physico-chimique, puis d'un traitement biologique par biofiltration en 3 étapes (élimination du carbone, nitrification et dénitrification), avant que l'eau traitée soit rejetée dans la Seine (Rocher *et al.* 2008). Le pilote testé, identique au procédé CarboPlus® (SAUR), consiste en un réacteur dans lequel l'eau passe à travers un lit fluidisé de CAP selon une certaine vitesse assurant l'expansion du lit et un temps de contact minimum. Une dose de CAP neuf est continuellement injectée dans le réacteur et du CAP usagé est soutiré régulièrement afin d'assurer le renouvellement du charbon. Enfin, du coagulant et du flocculant sont également injectés afin d'assurer le maintien du lit et éviter les

relargages de CAP. Au cours de cette étude, 4 vitesses ascensionnelles (6 à 10 m/h), 3 doses de CAP (5 - 10 - 20 mg/L) et 2 CAP commerciaux ont été testés sur le pilote (600-1200 m³/j).

17 campagnes de mesure ont été menées entre juin et décembre 2013, à l'aide de préleveurs automatique réfrigérés (4°C). Les échantillons moyens 24 h collectés ont été filtrés à 0,7 µm sur filtres GF/F (Whatman®) en fibres de verre, afin de rechercher 114 micropolluants prioritaires ou émergents dans la phase dissoute, notamment des PhPHs (n=54), des pesticides (n=23), des HAPs (n=13), des produits de soin corporel (n=7), des édulcorants artificiels (n=4), et des alkylphénols et phtalates (n=6). Les échantillons ont été analysés sous 48 h après prélèvement, par l'Institut des Sciences Analytiques du CNRS (ISA), le LEESU, le laboratoire central de la préfecture de police (LCPP) ou le (TZW, Allemagne). Les PhPHs ont été recherchés lors des 17 campagnes alors que les autres composés n'ont été recherchés que lors des 3 à 6 dernières campagnes.

II. RESULTATS

Sur les 54 PhPHs recherchés, 26 ont été quantifiés dans les eaux d'entrée du pilote au moins 1 fois, dont 14 à des concentrations moyennes supérieures à 100 ng/L, notamment le sulfaméthoxazole (720 ± 727 ng/L - moyenne ± écart-type), l'ibuprofène (483 ± 549 ng/L), l'aténolol (338 ± 202 ng/L), le diclofénac (280 ± 129 ng/L), l'ofloxacine (274 ± 280 ng/L), l'oxazépam (266 ± 174 ng/L) et la carbamazépine (143 ± 103 ng/L), qui représentent toujours plus de 80% de la somme des 26 composés mesurés (4956 ± 3628 ng/L). 5 composés ont des concentrations intermédiaires, entre 10 et 100 ng/L, dont le naproxène (75 ± 62 ng/L), le triméthoprim (61 ± 63 ng/L) ou le lorazépam (24 ± 12 ng/L). Enfin, le reste des substances trouvées (7) est mesuré à des concentrations inférieures à 10 ng/L, par exemple l'estrone (9 ± 3 ng/L). Ces résultats sont globalement cohérents avec les revues fournissant des données sur la contamination des rejets de station d'épuration (Deblonde *et al.* 2011; Verlicchi *et al.* 2012).

Au regard des abattements obtenus (Figure 1), quatre types de comportements sont observés. A un taux de traitement de 10 mg/L de CAP, 7 composés sont très fortement abattus (>80%), 9 fortement (>60%), 9 modérément (>40%) et 1 faiblement (<40%). Au sein du premier groupe, on trouve les deux bêtabloquants (aténolol et propranolol), 4 antibiotiques (triméthoprim, ciprofloxacine, norfloxacine et sulfameter) et la carbamazépine. 4 analgésiques (diclofénac, kétoprofène, paracétamol et naproxène), l'ofloxacine, la sulfadiazine, l'oxazépam, le lorazépam et le fénofibrate composent le second groupe, alors que l'ibuprofène est faiblement abattu. Les 9 autres composés présentent un abattement modéré. Par ailleurs, comme observé précédemment (Westerhoff *et al.* 2005; Margot *et al.* 2013), la dose de CAP neuf injectée a une influence très importante sur les performances du pilote. En effet, des abattements significativement plus élevés ont été obtenus à une dose de 20 mg/L comparativement à 5 ou 10 mg/L. Globalement, le pilote permet d'éliminer la somme des résidus médicamenteux à hauteur de 52% à 5 mg/L de CAP, 72% à 10 mg/L et 83% à 20 mg/L.

Pour les PhPHs, les composés chargés positivement dans les eaux de rejet (pH 7-8) sont de bien à très bien éliminés par adsorption, probablement due à la surface du CAP chargée négativement (Margot *et al.* 2013). Pour les autres composés, il semble que l'hydrophobicité et les groupements fonctionnels des molécules permettant les liaisons faibles aient une influence importante (de Ridder *et al.* 2011; Delgado *et al.* 2012).

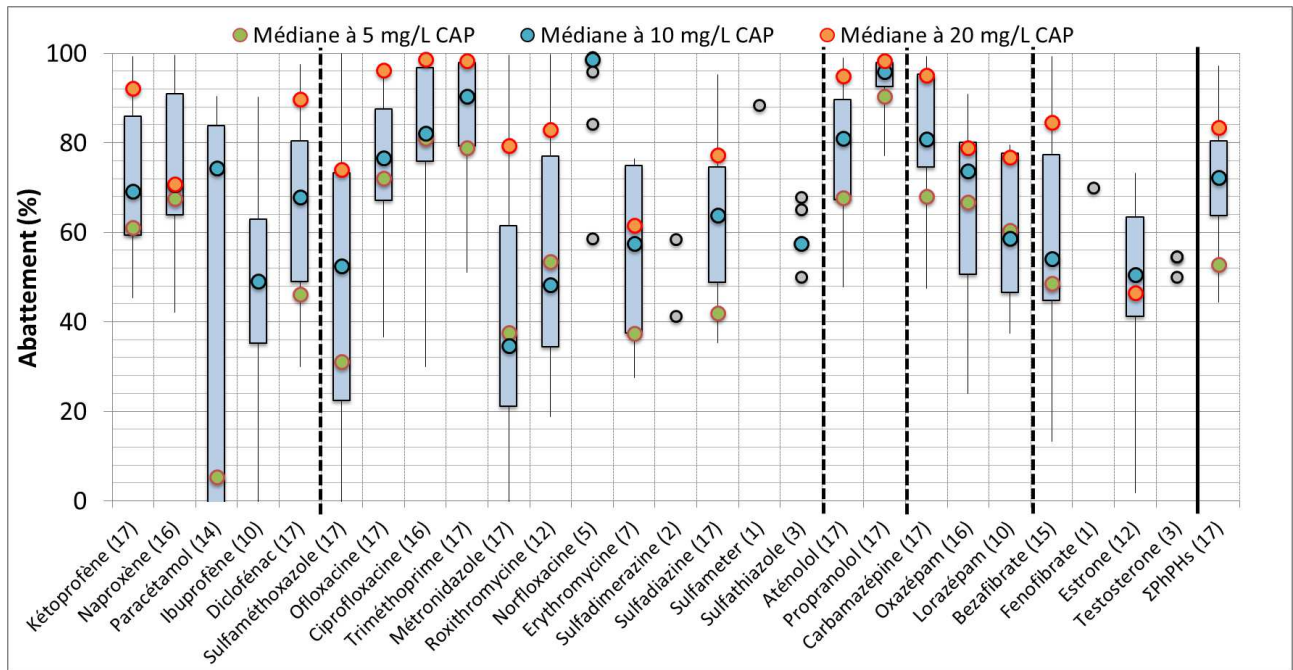


Figure 1 - Abattements des résidus médicamenteux et hormones par CAP en eaux usées (box plots = min – 1^{er} quartile – médiane – 3^{ème} quartile – max) - nombre d'abattements calculés entre parenthèses

En ce qui concerne les autres micropolluants recherchés, 34 ont été retrouvés dans les eaux d'entrée du pilote. Alors que les édulcorants artificiels, les phtalates et les alkylphénols sont présents à des concentrations dissoutes importantes (entre 200 et 10000 ng/L), notamment le sucralose (7150 ± 545 ng/L), l'acésulfame (8725 ± 602 ng/L) et le DEHP (1267 ± 801 ng/L), les autres composés sont quantifiés à des concentrations entre 10 et 100 ng/L, excepté les HAPs (<20 ng/L).

Les abattements observés sont globalement plus variables que ceux des PhPHs, mais il est possible d'observer plusieurs types de comportement. Les pesticides, le bisphénol A et les parabènes sont plutôt bien éliminés par le pilote, avec des abattements compris entre 60 et 95%, alors que les HAPs, le triclosan et deux édulcorants (acésulfame et sucralose) ne semblent pas ou peu abattus (0 - 40%). Enfin, les phtalates, les acides perfluorés, la saccharine et les alkylphénols sont modérément éliminés, bien que leurs abattements soient très variables d'une campagne à l'autre.

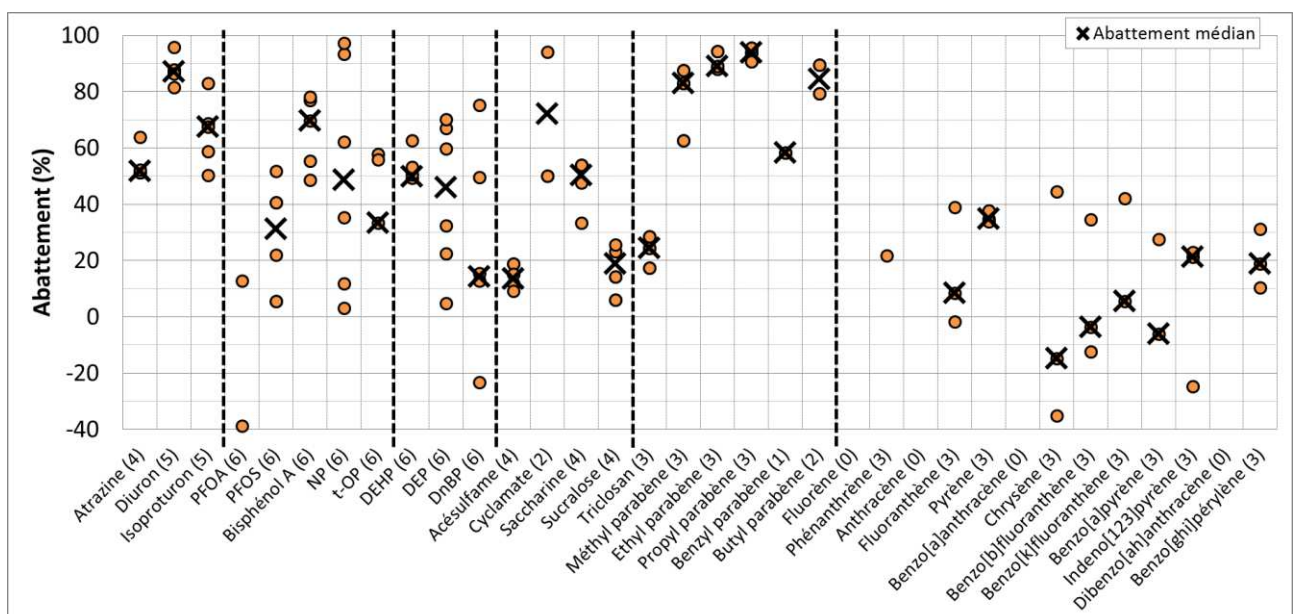


Figure 2 - Abattements des autres micropolluants prioritaires et émergents par CAP en eaux usées - nombre d'abattements calculés entre parenthèses

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Afin de caractériser l'efficacité et l'applicabilité à grande échelle du traitement tertiaire des eaux usées par adsorption sur charbon actif, le devenir de 114 micropolluants prioritaires ou émergents a été étudié pendant 7 mois sur un pilote industriel à la station d'épuration de Seine Centre (SIAAP). 26 PhPHs ont été quantifiés dans les eaux d'entrée du pilote (rejet STEP), dont 14 à des concentrations moyennes supérieures à 100 ng/L. En particulier, 7 substances (sulfaméthoxazole, diclofénac, ofloxacine, carbamazépine, oxazépam, ibuprofène et aténolol) contribuent à plus de 80% du flux total en médicaments. Des abattements élevés (50 - >90%) sont obtenus avec une dose de CAP neuf de 10 mg/L, particulièrement pour les bêtabloquants, la moitié des antibiotiques, la carbamazépine et le diclofénac, composé de la liste de surveillance de la DCE depuis 2013. Les pesticides, parabènes et le bisphénol A semblent significativement éliminés par ce type de traitement, au contraire des HAPs, du triclosan et des édulcorants artificiels. Enfin les phtalates, alkylphénols et acides perfluorés ont un comportement variable. Une dose de 20 mg/L permet d'augmenter significativement l'efficacité du pilote pour tous les composés.

Ce pilote fait actuellement l'objet d'une autre étude avec un charbon actif en grain de faible taille (400 µm) régénérable, qui est produit à partir de charbon actif régénéré. Les premiers résultats sur le carbone organique dissous et l'absorption UV à 254 nm semblent montrer un niveau de traitement équivalent à la configuration poudre, avec une grande simplification opérationnelle (âge du charbon plus grand, pas d'ajout de coagulant/flocculant).

BIBLIOGRAPHIE

- Abegglen C. and Siegrist H. (2012). *Micropolluants dans les eaux résiduaires urbaines. Etapes de traitement supplémentaire dans les stations d'épuration. (in French)*.
- Boehler M., Zwickelpflug B., Hollender J., Ternes T., Joss A. and Siegrist H. (2012). *Removal of micropollutants in municipal wastewater treatment plants by powder-activated carbon*. International Water Association, London, Royaume-Uni.
- de Ridder D. J., Verliefde A. R., Heijman S. G., Verberk J. Q., Rietveld L. C., van der Aa L. T., Amy G. L. and van Dijk J. C. (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-Leguille C. and 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. and 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.
- 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.
- Jørgensen S. E. and Halling-Sørensen B. (2000). Drugs in the environment. *Chemosphere* **40**(7), 691-9.

- Mailler R., Gasperi J., Rocher V., Gilbert-Pawlik S., Geara-Matta D., Moilleron R. and Chebbo G. (2013). Biofiltration vs conventional activated sludge plants: what about priority and emerging pollutants removal? *Environmental Science and Pollution Research*, 1-12.
- Margot J., Kienle C., Magnet A., Weil M., Rossi L., de Alencastro L. F., Abegglen C., Thonney D., Chèvre N., Schärer M. and Barry D. A. (2013). Treatment of micropollutants in municipal wastewater: Ozone or powdered activated carbon? *Science of the Total Environment* **461–462**(0), 480-98.
- Rocher V., Paffoni C., Gonçalves A., Azimi S. and Gousailles M. (2008). Municipal wastewater treatment by biofiltration: SIAAP feedback. *Revue des Sciences de l'eau* **21**(3), 475-85.
- Rogers H. R. (1996). Sources, 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., Miege C., Esperanza M. and 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.
- Verlicchi P., Al Aukidy M. and 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.
- Westerhoff P., Yoon Y., Snyder S. and Wert E. (2005). Fate of Endocrine-Disruptor, Pharmaceutical, and Personal Care Product Chemicals during Simulated Drinking Water Treatment Processes. *Environmental Science & Technology* **39**(17), 6649-63.