

Partenariat 2013 – Domaine Ecotechnologies et pollution - Action 47 Amélioration de la réduction des micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées domestiques (ARMISTIQ)



Evaluation du devenir des micropolluants dans les procédés de traitement des boues biologiques (compostage, lits de séchage plantés de roseaux, digestion anaérobie) et de séchage (thermique et solaire)

ARMISTIQ – Action D

Rapport final

Sophie Besnault, Jean-Marc Choubert, Samuel Martin, Hélène Budzinski, Karyn Le Menach, Naïke Noyon, Mar Esperanza, Cécile Miège, Lysiane Dherret, Philippe Bados, Ghislaine Grisot, Marina Coquery

Février 2014

Avec les partenaires :



Contexte de programmation et de réalisation

Ce document correspond à l'action 47 « Amélioration de la réduction des micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées domestiques (ARMISTIQ) », domaine Ecotechnologies et pollution.

Ce document est le livrable D2 : Evaluation du devenir des micropolluants dans les procédés de traitement des boues biologiques (compostage, lits de séchage plantés de roseaux, digestion anaérobie) et de séchage (thermique et solaire).

Le programme ARMISTIQ implique Irstea Lyon-Villeurbanne (Marina Coquery, Jean-Marc Choubert, Cécile Miège, Maxime Pomiès, Alexandre Tahar, Clément Crétollier, Lysiane Dherret), le CIRSEE Suez-Environnement (Sophie Besnault, Samuel Martin-Ruel, Mar Esperanza, Naïke Noyon, Auguste Bruchet) et EPOC-LPTC, Université de Bordeaux 1 (Hélène Budzinski, Karyn Le Menach).

Les auteurs

Sophie Besnault, Chef de projets R&D, Sophie.Besnault@suez-env.com, CIRSEE, Suez Environnement

Jean-Marc Choubert, Ingénieur de l'agriculture et de l'environnement, Irstea, centre de Lyon-Villeurbanne

Samuel Martin, Responsable de pôle, CIRSEE, Suez Environnement

Hélène Budzinski, Directrice de recherche, LPTC, Université Bordeaux 1

Karyn Le Menach, Ingénieur d'étude, LPTC, Université Bordeaux 1

Naïke Noyon, Ingénieur de recherche, CIRSEE, Suez Environnement

Mar Esperanza, Responsable de département, CIRSEE, Suez Environnement

Cécile Miège, Ingénieur de recherche, Irstea, centre de Lyon-Villeurbanne

Lysiane Dherret, Assistant Ingénieur, Irstea, centre de Lyon-Villeurbanne

Philippe Bados, Assistant Ingénieur, Irstea, centre de Lyon-Villeurbanne

Ghislaine Grisot, Assistant Ingénieur, Irstea, centre de Lyon-Villeurbanne

Marina Coquery (coordination du projet), Directrice de recherche, marina.coquery@irstea.fr, Irstea, centre de Lyon-Villeurbanne

Les correspondants

Onema : Céline Lacour, celine.lacour@onema.fr

Irstea : Marina Coquery, marina.coquery@irstea.fr

Référence du document : S. Besnault, J.M. Choubert, S. Martin, H. Budzinski, K. Le Menach, N. Noyon, M. Esperanza, C. Miège, L. Dherret, P. Bados, G. Grisot, M. Coquery (2014). Evaluation du devenir des micropolluants dans les procédés de traitement des boues biologiques (compostage, lits de séchage plantés de roseaux, digestion anaérobie) et de séchage (thermique et solaire). CIRSEE-Irstea-Onema, 82 p.

Droits d'usage :	<i>Accès libre</i>
Couverture géographique :	<i>national</i>
Niveau géographique :	<i>national</i>
Niveau de lecture :	<i>Professionnels, experts, chercheurs</i>
Nature de la ressource :	<i>Document</i>

RESUME

L'objectif de l'action D du projet ARMISTIQ était d'évaluer le devenir des micropolluants à travers les procédés de traitement des boues.

Des campagnes d'échantillonnage ont été faites dans neuf installations de traitement des boues : un sécheur thermique basse température, un sécheur thermique haute température, un sécheur solaire, une digestion anaérobie suivie d'un compostage accéléré en tunnels, une unité de compostage en casiers ventilés, une unité de compostage rustique en andains et deux lits de séchage plantés de roseaux.

79 micropolluants ont été analysés dans les échantillons de boue brute, de boue traitée, de déchets verts, de refus de criblage, de compost et de condensats. Ils ont été choisis en fonction de leur occurrence dans les boues de stations de traitement des eaux usées domestiques, de leurs propriétés physico-chimiques, de leur toxicité et de la réglementation mais également en fonction de leurs limites de quantification et de la disponibilité d'une technique analytique dans la matrice boue.

Un protocole d'échantillonnage spécifique a été développé afin de suivre un « lot » de boue à travers le procédé de traitement. Des bilans matière ont été effectués afin de calculer des rendements d'élimination pour les 9 installations de traitement des boues en suivant des règles de calcul spécifiques permettant d'obtenir des données robustes malgré les incertitudes liées à l'échantillonnage et à l'analyse.

Certains micropolluants sont partiellement éliminés grâce aux procédés de traitement des boues :

- Le séchage solaire semble permettre 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 haute température semble permettre 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 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. 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 DEHP, galaxolide, tonalide, di-butylphtalate et triclosan. Par contre, le bisphenol 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.

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de la charge globale en micropolluants dans les boues. Certains micropolluants s'accumulent dans les boues traitées, principalement car ce sont des produits de dégradation d'autres composés, partiellement éliminés pendant le traitement.

MOTS CLES

Micropolluants, séchage, compostage, digestion anaérobie, lits de séchage plantés de roseaux, campagnes de mesure, échantillonnage

TITLE

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

ABSTRACT

The objective of action D of the project was to evaluate the fate of micropollutants through sludge treatment processes.

Sampling campaigns were done on 9 sludge treatment facilities: a low temperature dryer, a high temperature dryer, a solar dryer, an anaerobic digestion followed by a tunnels composting unit, a compartments composting unit, a swath composting unit and two drying reed beds.

79 micropollutants were analyzed in the inlet sludge, treated sludge, green waste, screening waste, compost and condensates samples, selected according to their occurrence in sludge, their physicochemical properties, their toxicity and the legislation, but also their limit of quantification and the availability of reliable analytical techniques.

A specific sampling protocol was developed in order to be able to follow a "batch" of sludge through the treatment. 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.

Some of the micropollutants were partly removed by sludge treatments:

- Solar drying seemed to allow a slight reduction of hormones concentrations in sludge, even if they were in low concentrations in the inlet sludge.
- The high temperature dryer seemed to allow a partial reduction of PAHs in sludge but it varied according to the PAHs concentrations in the inlet sludge. Sludge drying reed-bed operated with 14 weeks resting period has provided a partial removal of HAP
- 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. Only 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 process on DEHP, galaxolide, tonalide, di-butylphtalate and triclosan. However, bisphenol A accumulated in the sludge samples for composting.
- Sludge drying reed beds operated with 14 weeks resting period had much better removal efficiencies than the one operated with 14 days resting period.
- None of the sludge treatment evaluated was able to remove metals (except mercury that was partly removed by high temperature drying).

None of the sludge treatment processes evaluated in this project was able to allow a removal of the global micropollutants load. Some micropollutants were removed from the sludge but others accumulated in the treated sludge, mainly because they were degradation products of other compounds, partly removed during the process.

KEY WORDS

Micropollutants, drying, composting, anaerobic digestion, reed bed, measurement campaigns, sampling.

SYNTHESE POUR L'ACTION OPERATIONNELLE

Contexte du projet ARMISTIQ

Produits industriels, plastifiants, détergents, hydrocarbures, pesticides, cosmétiques, médicaments, de nombreux polluants issus des activités humaines sont présents à l'état de trace dans les milieux aquatiques naturels (eaux de surface, eaux souterraines). Les concentrations mesurées sont en général très faibles, excédant rarement quelques dizaines de ng/L. Les risques associés à une exposition chronique à ces substances sont encore largement discutés par les scientifiques. Néanmoins de nombreux travaux montrent que même à faibles concentrations, certains micropolluants auraient des effets sur le fonctionnement des écosystèmes avec, notamment, des effets observés sur le comportement des organismes aquatiques et la santé humaine. Les stations de traitement des eaux usées (STEU) domestiques n'ont pas été conçues pour traiter les micropolluants. Elles sont considérées comme une des principales sources émettrices de micropolluants vers les milieux aquatiques. Aussi, la réglementation vise, depuis 2000, à la réduction des émissions en application des objectifs fixés par la directive cadre sur l'eau (DCE). Au niveau européen, une liste de substances dites « prioritaires » (dont les rejets sont à réduire) ou « prioritaires dangereuses » (dont les rejets sont à supprimer) a été publiée en 2001, liste mise à jour en 2008, puis 2013. En complément, au niveau national, une circulaire de 2010 impose un suivi des émissions d'une centaine de micropolluants pour les STEU de plus de 10 000 équivalents habitants.

Les résultats du projet de recherche AMPERES (2006-2009) (Cf. Techniques Sciences Méthodes, 2011, vol. 1-2) ont permis d'acquérir des connaissances nouvelles sur l'efficacité d'élimination d'une centaine de micropolluants par différentes filières de traitement des eaux usées. En outre, des techniques analytiques et d'échantillonnage robustes et compatibles avec les très faibles niveaux de concentrations des substances dans les eaux et les boues ont été développées.

Dans la suite de ces travaux, le projet ARMISTIQ apporte de nouvelles connaissances sur l'optimisation des procédés de traitement des micropolluants à l'aide d'expérimentations de terrain et de modélisation. Ces travaux anticipent les évolutions éventuelles de la réglementation, comme par exemple, l'intégration de nouvelles substances dans la liste des substances prioritaires et la nécessité d'intensifier la réduction des rejets de micropolluants.

Objectifs du projet

Le projet ARMISTIQ consiste à évaluer et à améliorer la connaissance et la maîtrise de technologies de traitement des substances prioritaires et émergentes présentes dans les eaux usées et les boues issues des STEU domestiques. Les travaux menés consistent en l'évaluation des performances d'élimination de micropolluants par des installations « pilotes » installées sur STEU, ou bien par des installations taille réelle. Les actions portent sur l'amélioration d'un procédé de traitement conventionnel biologique, de procédés de traitement complémentaires et de procédés de traitement des boues. Les résultats permettent d'une part, de définir des conditions de fonctionnement « optimales » pour intensifier l'élimination des micropolluants et, d'autre part, de préciser les limites et les coûts de la mise en œuvre de ces procédés. Ces avancées favorisent la prise de décision éclairée sur la définition de priorités d'actions quant à la réduction ou à la substitution des micropolluants à la source. En complément, le projet ECHIBIOTEB met en œuvre des échantillonneurs intégratifs et des tests biologiques pour combiner approche chimique et mesure d'effets biologiques, afin d'affiner le diagnostic de performances de traitement des procédés complémentaires et de traitement des boues.

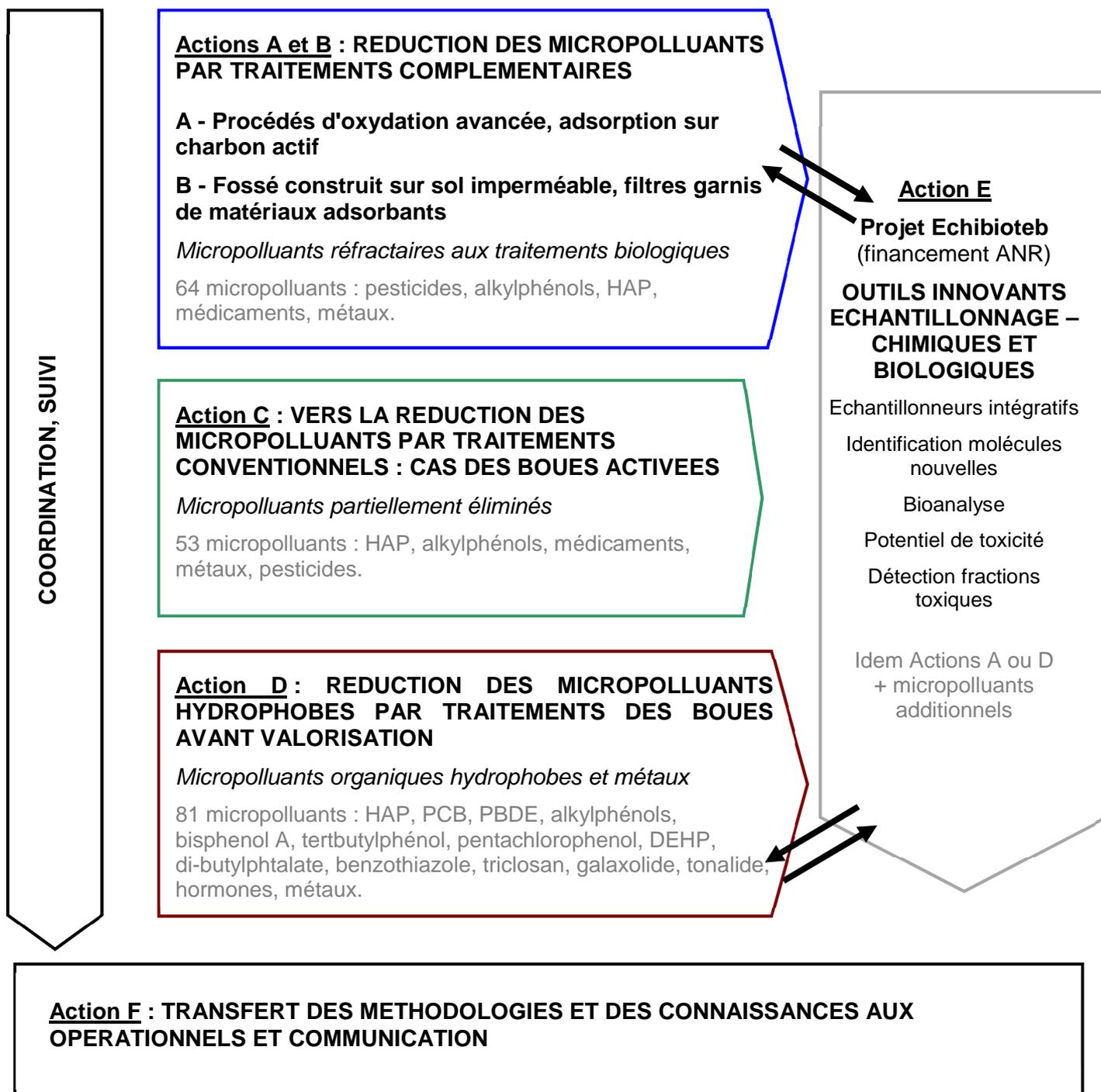
L'objectif finalisé consiste à disposer des éléments technico-économiques qui permettraient d'intensifier la réduction des rejets de micropolluants et de limiter les investissements publics.

Réalisation et suivi du projet

Ce projet de recherche est coordonné par Irstea auquel sont associés le CIRSEE (Suez-Environnement) et EPOC-LPTC (Université de Bordeaux) pour sa réalisation. Le suivi du projet a été assuré par un comité de pilotage composé des partenaires scientifiques, et de représentants de l'ONEMA, des Agences de l'Eau et du Ministère chargé de l'écologie.

Organisation du projet ARMISTIQ global et liste des substances prioritaires et émergentes

Le projet ARMISTIQ, co-financé par l'Onema, s'articule autour de 4 actions scientifiques (A, B, C, D), et d'une action de transfert aux opérationnels (F). Il est en lien étroit avec le projet ECHIBIOTEB, financé par l'ANR, qui complète l'étude en testant des outils innovants sur certains procédés des actions A, B et D du projet ARMISTIQ.



L'objectif de l'action D était d'évaluer le devenir des micropolluants à travers les procédés de traitement des boues. Des campagnes d'échantillonnage ont été faites dans 9 installations de traitement des boues : un sécheur thermique basse température, un sécheur thermique haute température, un sécheur solaire, une digestion anaérobie suivie d'un compostage accéléré en tunnels, une unité de compostage en casiers ventilés, une unité de compostage rustique en andains et deux lits de séchage plantés de roseaux (l'un à fort rythme alimentation-repos et l'autre, à rythme plus faible). 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).

Méthodologies

Le Tableau 1 rassemble les caractéristiques de tous les procédés de traitement des boues étudiés et décrit les échantillons prélevés pour chaque installation étudiée.

Tableau 1 : Caractéristiques des procédés de traitement des boues étudiés

Installation étudiée	Procédé	Temps de séjour de la boue	Caractéristiques	Echantillons	Transformation de la boue pendant le procédé
As	Sécheur haute température	5h	Sécheur à palette indirect, à 120°C	2 boues d'entrée, 2 boues séchées, 1 condensat	Séchage de 28% à 94% de MS, pas de transformation de la matière organique
Bs	Sécheur basse température	1,8h	Sécheur à bande direct, T° 72°C	2 boues d'entrée, 2 boues séchées, 1 condensat	Séchage de 32% à 90% de MS, pas de transformation de la matière organique
Cs	Séchage solaire	28 jours	Serre Héliantis, prélèvements de mai à juin	6 échantillons de boue à 1, 5, 8, 13, 21 et 27 j	Séchage de 24% à 87% de MS, pas de transformation de la matière organique
Ds	Digestion anaérobie (DA)	20 jours	T° 35-37°C	Boue flottée (3 éch.), boue digérée (3 éch.), 1 condensat, 2 retours en tête	Elimination de la MV 49±8%
Es	Compostage tunnels	1 mois	Tunnels fermés ventilés, compostage accéléré, prélèvements de mars à avril	5 boues, mélanges ou compost, 1 refus de criblage 1 déchet vert, 2 condensats	De boue digérée (22% MS ; 56% MV) à compost (53% MS ; 57% MV) avec addition de déchet vert et de refus de criblage
Fs	Compostage casiers	2 mois	Casiers semi-fermés ventilés sous toiture avec recirculation d'air chaud, prélèvements de juin à août	8 boues, mélanges ou compost, 2 refus de criblage, 2 condensats	De boue brute (20% MS ; 70% MV) à compost (56% MS ; 58% MV) avec addition de refus de criblage
Gs	Compostage andains	1,5 mois	Andains en extérieur, non ventilés, prélèvements de mai à juin	4 boues, mélanges ou compost, 1 refus de criblage 1 déchet vert	De boue brute (23% MS ; 64% MV) à compost (63% MS ; 45% MV) avec addition de déchet vert et de refus de criblage
Hs	Lits de séchage planté de roseaux (LSPR)	10 ans	Filière à 8 cellules. 1 cellule étudiée, alimentée 2j, repos 14j. Boues activées en amont	Prélèvements en 1 seule verticale, en milieu et fond de lit, en déc-2010 et sept-2012 (4 éch. analysés)	Entre déc-10 et sept-12 : Epaisseur : 50 → 60 cm 7,4%MS (66%MV) à 10%MS (65%MV) [milieu] 7,6%MS (63%MV) à 16%MS (58%MV) [fond]
Is	Lit de séchage planté de roseaux (LSPR)	10 ans	Filière à 8 cellules. 1 cellule étudiée, repos 14 semaines. Pas d'alimentation 4 mois, (épandage agricole)	Prélèvements en 3 verticales, en milieu et fond de lit, en déc-2010 et sept-2012 Mélange des boues du même horizon (4 éch.)	Entre déc-10 et sept-12 : Epaisseur : 60 → 70 cm 12%MS (60%MV) à 47%MS (59%MV) [milieu] 21%MS (60%MV) à 58%MS (50%MV) [fond]

La Figure 1 permet une comparaison globale des procédés étudiés en termes de température et de temps de séjour des boues.

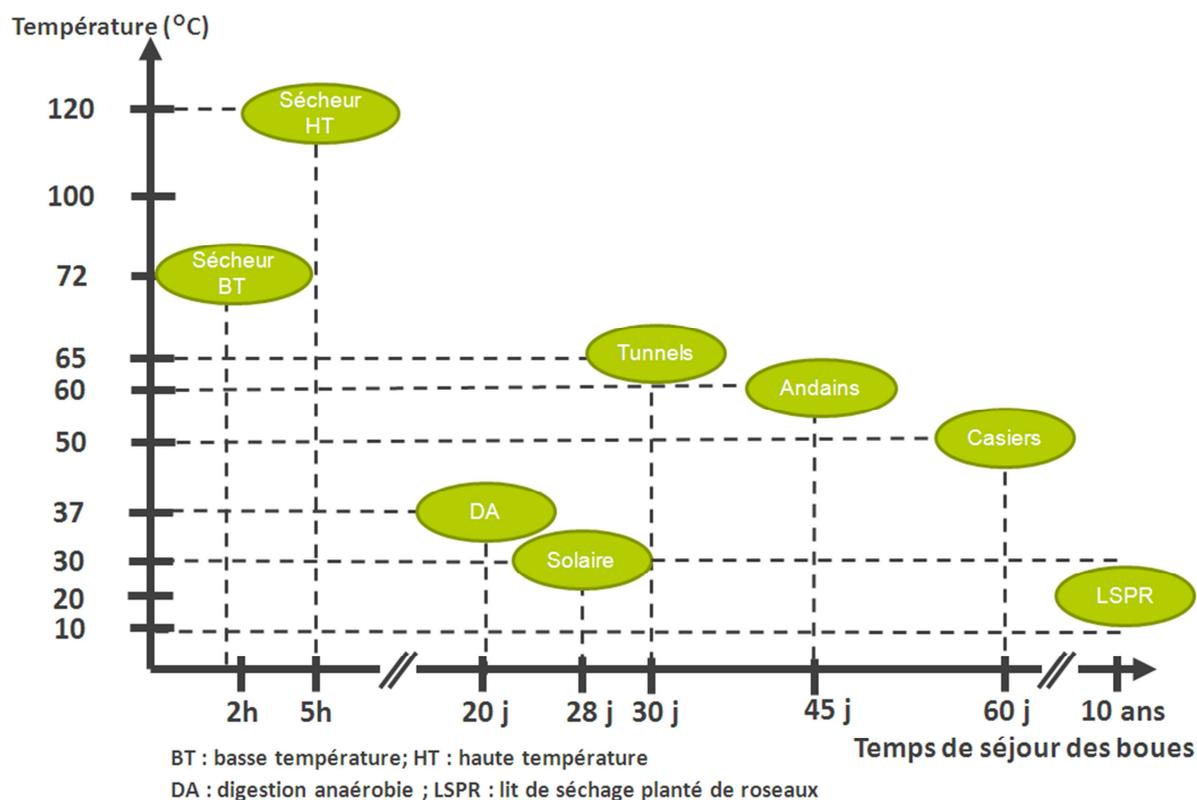


Figure 1 : Présentation schématique des conditions de fonctionnement (température, temps de séjour) des installations de traitement des boues étudiées

Analyses chimiques

79 micropolluants ont été analysés dans les échantillons de boue brute, de boue séchée, de déchets verts, de refus de criblage, de compost et de condensats. Ils ont été choisis en fonction de leur occurrence dans les boues de STEU, de leurs propriétés physico-chimiques, de leur toxicité et de la réglementation mais également en fonction de la disponibilité d'une technique analytique dans la matrice boue. Les familles choisies sont les métaux (14), les hormones (5), les HAP (19), les alkylphénols (6), les PCB (8), les PBDE (18) et une dizaine d'autres substances (muscs, phtalates, bisphénol A...).

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. 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 PAE du CIRSEE-Suez Environnement au Pecq.

Echantillonnage

L'objectif des essais étant de suivre un lot de boue, pour toutes les installations pour lesquelles cela a été possible (excepté la digestion anaérobie et les lits de séchage plantés de roseaux), les prélèvements de boue ont été effectués 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. Des protocoles spécifiques ont été mis en place, afin d'éviter tout risque de contamination par les micropolluants et d'assurer l'obtention d'un échantillon le plus représentatif possible.

Traitement des données

L'objectif fixé était de réaliser des bilans matière 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 considérés, de la variabilité spatiale de l'accumulation de boues, et des incertitudes liées à l'échantillonnage, au pré-traitement des échantillons et à l'analyse. Lors du calcul des rendements d'élimination des micropolluants (notés R_S), des règles innovantes ont été utilisées consistant à prendre en compte l'incertitude associée aux résultats d'analyses. Le calcul du rendement d'élimination n'a pas été effectué lorsque les concentrations mesurées en micropolluants étaient inférieures ou proches des limites de quantification (LQ), car l'incertitude de mesure était trop élevée pour donner une valeur fiable du rendement.

Principaux résultats

Concentrations dans les boues d'entrée et dans les boues traitées

Tous les micropolluants analysés ont été retrouvés dans au moins un échantillon de boue, excepté le 17α éthynylestradiol, le terbutylphénol et le pentachlorophénol qui n'ont jamais été quantifiés. Les micropolluants sont retrouvés dans les mêmes catégories logarithmiques de concentrations pour la plupart des échantillons de boues (le mercure par exemple est toujours retrouvé entre 100 et 1000 $\mu\text{g}/\text{kg MS}$). La différence de concentration entre les boues d'entrée et les boues traitées n'est pas significative pour de nombreux micropolluants analysés.

Pour toutes les familles de micropolluants analysées, excepté les HAP, les concentrations en micropolluants sont nettement inférieures dans les déchets verts et les refus de criblage à celles de la boue brute.

Comportement des micropolluants dans les différents procédés de traitement

Le Tableau 2 synthétise les tendances globales observées sur le comportement des micropolluants, par famille de micropolluants, dans chaque installation de traitement des boues.

Tableau 2 : Tableau de synthèse, tendances observées sur les rendements d'élimination selon le procédé de traitement des boues, et les familles de micropollutants

Famille	Sécheur haute température (As)	Sécheur basse température (Bs)	Séchage solaire (Cs)	Digestion anaérobie (Ds)	Compostage casiers (Fs)	Compostage tunnels (Es)	Compostage andains (Gs)	Lit de séchage planté de roseaux Alim 2 jours / Rep 14 jours (Hs)	Lit de séchage planté de roseaux Alim 2 sem / Rep 14 sem (Is)
Métaux	Pas d'effet (excepté Hg volatilisé)	Pas d'effet	Pas d'effet	Accumulation dans la boue digérée	Pas d'effet	Pas d'effet	Pas d'effet	Pas d'effet	Pas d'effet
Hormones	Pas d'effet (concentrations très faibles)	Non calculable	Très légère diminution des concentrations (concentrations très faibles)	Accumulation dans la boue digérée (concentrations faibles)	L'estrone s'accumule dans la boue (produit de dégradation du 17β-estradiol)	L'estrone s'accumule dans la boue (produit de dégradation du 17β-estradiol)	L'estrone s'accumule dans la boue (produit de dégradation du 17β-estradiol)	Pas d'effet (concentrations très faibles), sauf estrone (accumulation)	Pas d'effet (concentrations très faibles), sauf estrone (réduction)
HAP	Comportement variable (selon la concentration initiale)	Comportement variable (meilleur rendement avec une concentration initiale plus élevée)	Tous les HAP (sauf 5) sont retrouvés en concentrations plus faibles en sortie qu'en entrée	Comportement variable. Les HAP de faible poids moléculaire s'accumulent	Comportement variable. Le profil des HAP dans le compost est similaire pour les 3 procédés	Comportement variable. Le profil des HAP dans le compost est similaire pour les 3 procédés	Comportement variable. Le profil des HAP dans le compost est similaire pour les 3 procédés	Pas d'effet	Pas d'effet sur phénanthrène, BeP et BP Elimination des HAP de fort poids moléculaire en milieu de lit. Pas d'évolution en fond de lit
Alkyl-phénols	4NP2EO et 4NP1EC sont éliminés, dégradés en 4 NP	4NP2EO et 4NP1EC sont éliminés, dégradés en 4 NP 4 tOP s'accumule dans la boue	4NP2EO et 4NP1EO sont éliminés, dégradés en 4 NP	4NP2EO et 4NP1EC sont éliminés, dégradés en 4 NP 4 tOP s'accumule dans la boue	4NP2EO, 4NP1EO et 4 NP sont éliminés, pas d'effet sur 4 tOP	4NP2EO, 4NP1EO et 4 NP sont éliminés, pas d'effet sur 4 tOP	4NP2EO, 4NP1EO sont en concentrations moins élevées dans le compost, 4 NP s'accumule dans la boue	4NP2EO et 4NP1EO sont éliminés, dégradés en 4 NP (accumulation) Pas d'information pour 4-t-OP et 4-NP1EC	Éliminés, y compris 4-NP. Pas d'information pour 4-t-OP et 4-NP1EC

Famille	Sécheur haute température (As)	Sécheur basse température (Bs)	Séchage solaire (Cs)	Digestion anaérobie (Ds)	Compostage casiers (Fs)	Compostage tunnels (Es)	Compostage andains (Gs)	Lit de séchage planté de roseaux Alim 2 jours / Rep 14 jours (Hs)	Lit de séchage planté de roseaux Alim 2 sem / Rep 14 sem (Is)
PCB	Certains PCBs sont éliminés. Comportement variable (selon la concentration initiale).	Pas d'effet, excepté CB 50+28 qui s'accumule	Éliminés (mais concentrations très faibles)	Éliminés, les PCB de haut poids moléculaire sont dégradés en PCB plus légers	Accumulation dans la boue compostée	Certains PCB sont éliminés	Pas d'effet	Éliminés (milieu) Pas d'élimination dans le fond	Éliminés (milieu et fond)
PBDE	Comportement variable	Comportement variable	Les PBDE de haut poids moléculaire sont dégradés en PBDE plus légers	Les PBDE de haut poids moléculaire sont dégradés en PBDE plus légers	Accumulation dans la boue compostée	Accumulation dans la boue compostée	Accumulation dans la boue compostée	Accumulation de BDE47, 99, 154, 209 Pas d'effet sur BDE100	Accumulation de BDE47, 99, 154, 209 Élimination dans le fond (BDE28, 49, 85, 153, 154) Pas d'effet sur BDE100, 183
Autres	Galaxolide et tonalide sont éliminés, bis A s'accumule dans la boue	Pas d'effet	Pas d'effet, excepté di-butylphtalate, DEHP et bis A qui s'accumulent dans la boue	DEHP, di-butylphtalate et triclosan sont éliminés, bis A, galaxolide et tonalide s'accumulent dans la boue	Tonalide, DEHP, galaxolide, tonalide, di-butylphtalate et triclosan sont éliminés	Di-butylphtalate est éliminé	DEHP, galaxolide, tonalide, di-butylphtalate et triclosan s'accumulent	Pas d'effet (galaxolide, tonalide triclosan) DEHP est éliminé	Galaxolide, tonalide, triclosan et DEHP sont éliminés

Rs<-30% : accumulation
-30%<Rs<30% : pas d'effet
Rs>30% : élimination

Certains procédés de traitement des boues permettent une élimination de micropolluants ($R_s > 30\%$). 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.

La Figure 2 permet une comparaison globale de tous les procédés de traitement des boues étudiés. Pour la plupart des micropolluants (en moyenne, 60% des micropolluants analysés avec un rendement calculable), le procédé de traitement des boues n'a pas d'effet significatif (rendement entre -30% et 30%). Pour environ 25% des micropolluants avec un rendement calculable, on observe une accumulation à travers le procédé de traitement des boues (rendement inférieur à -30%). Et c'est seulement pour 15% des micropolluants analysés avec un rendement calculable que le procédé de traitement des boues semble permettre une élimination (rendement supérieur à 30%).

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de la charge globale en micropolluants dans les boues. La comparaison des 9 procédés étudiés ne permet pas d'établir un classement en termes de meilleur procédé pour l'élimination, car aucun d'entre eux ne permet une élimination de la charge globale en micropolluants.

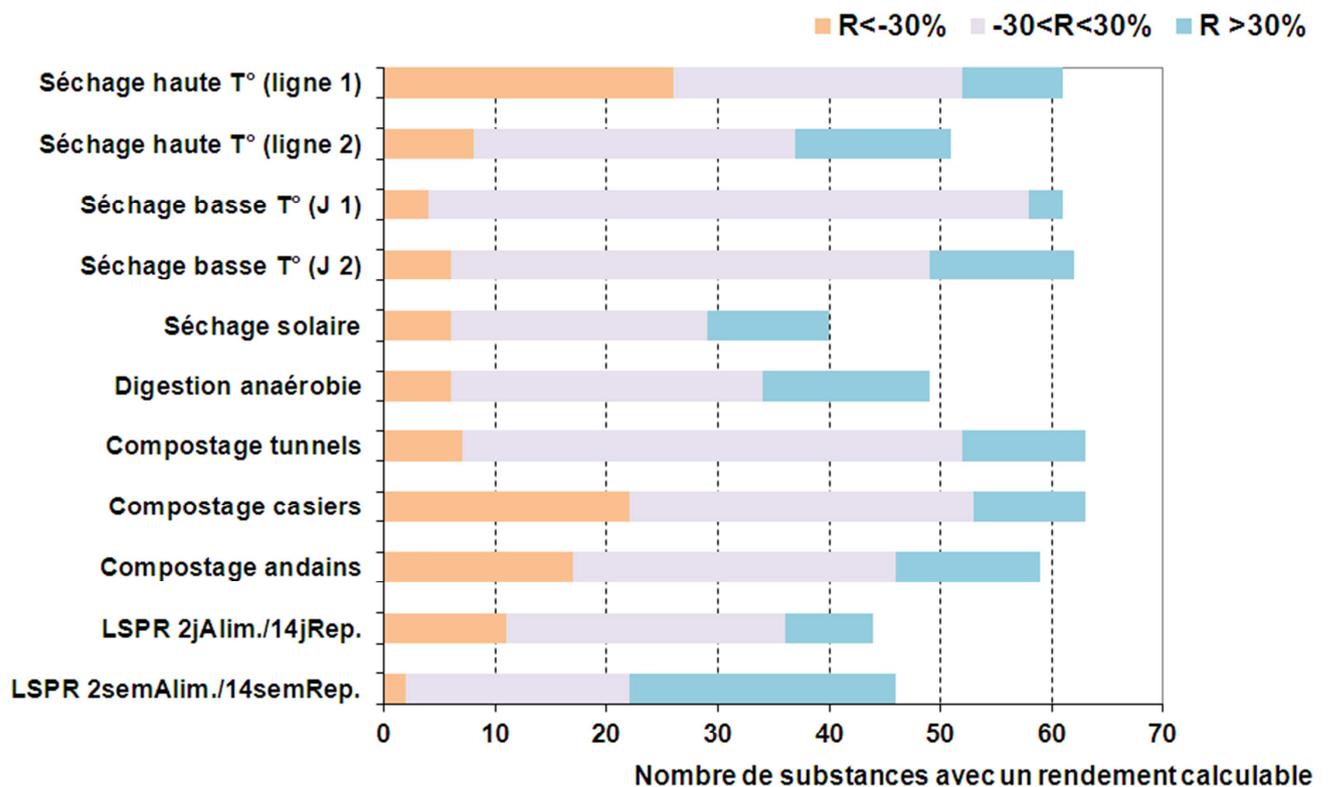


Figure 2 : Comparaison globale de l'élimination des micropolluants par les procédés de traitement des boues étudiés (R : rendement d'élimination)

SOMMAIRE

1. Contexte	15
2. Objectifs de l'étude et description des procédés	15
2.1. Procédés de séchage des boues	16
2.1.1. Séchage thermique	16
2.1.2. Séchage solaire	16
2.2. Procédés biologiques	18
2.2.1. Digestion anaérobie	18
2.2.2. Compostage	18
2.2.3. Lits de séchage plantés de roseaux	19
3. Micropolluants analysés et méthodes analytiques	20
4. Démarche expérimentale et description des filières étudiées	22
4.1. Démarche expérimentale	22
4.1.1. Matériel utilisé	22
4.1.2. Echantillonnage	22
4.1.3. Campagnes de prélèvements	25
4.1.4. Méthodologie suivie pour le calcul de rendement d'élimination	27
4.2. Site A _s (Séchage thermique haute température)	28
4.2.1. Description du site	28
4.2.2. Echantillonnage	30
4.3. Site B _s (Séchage thermique basse température)	30
4.3.1. Description du site	30
4.3.2. Echantillonnage	32
4.4. Site C _s (Séchage solaire)	33
4.4.1. Description du site	33
4.4.2. Echantillonnage	33
4.5. Site D _s (digestion anaérobie) et site E _s (compostage tunnel)	34
4.5.1. Description du site	34
4.5.2. Stratégie d'échantillonnage	34
4.5.3. Bilan matière	35
4.6. Site F _s (compostage casier)	36
4.6.1. Description du site	36
4.6.2. Stratégie d'échantillonnage	36
4.6.3. Bilan matière	37
4.7. Site G _s (compostage andains)	38
4.7.1. Description du site	38
4.7.2. Stratégie d'échantillonnage	39
4.7.3. Bilan matière	39
4.8. Site H _s (lit de séchage planté de roseaux à fréquence d'alimentation-repos élevée)	40
4.8.1. Description du site	40
4.8.2. Stratégie d'échantillonnage	41
4.8.3. Estimation des rendements d'élimination	41
4.9. Site I _s (lit de séchage planté de roseaux à faible fréquence alimentation-repos)	42
4.9.1. Description du site	42

4.9.2. Stratégie d'échantillonnage	42
4.9.3. Estimation des rendements d'élimination.....	43
5. Concentrations en micropolluants dans les boues, les déchets verts et les condensats	43
5.1. Concentrations dans les boues en entrée et sortie de traitement.....	43
5.2. Concentrations dans les déchets verts.....	45
5.3. Concentrations dans les condensats	47
6. Evaluation technique sur les performances d'élimination des micropolluants par les procédés de traitement des boues.....	48
6.1. Fonctionnement des installations pendant les campagnes.....	48
6.2. Elimination des micropolluants.....	52
6.2.1. Devenir des micropolluants pendant le séchage.....	52
6.2.2. Devenir des micropolluants pendant la digestion anaérobie	55
6.2.3. Devenir des micropolluants pendant le compostage.....	57
6.2.4. Devenir des micropolluants en lits de séchage planté de roseaux.....	61
6.2.5. Comparaison des procédés étudiés.....	65
7. Conclusion et perspectives	67
8. Sigles & Abréviations.....	69
9. Bibliographie	71
10. Table des illustrations.....	73
10.1. Figures.....	73
10.2. Tableaux.....	75
10. Annexe I : Substances étudiées	76
11. Annexe II : Rendements d'élimination (Rs) des micropolluants dans toutes les installations de traitement des boues étudiées	78
12. Remerciements.....	81

1. Contexte

La valorisation agricole des boues par épandage représente en moyenne plus de 50 % des usages finaux des boues des stations de traitement des eaux usées d'Europe et des Etats Unis. Cependant, la présence significative de micropolluants dans les boues a été mise en évidence par un nombre croissant d'études et soulève des interrogations à propos de l'impact de ces micropolluants lors des opérations d'élimination ou de valorisation de ces matières (épandage agricole, incinération, enfouissement technique...). De nouvelles législations sont apparues à propos de la réduction des émissions de micropolluants dans le milieu naturel, comme la Directive Cadre sur l'Eau (DCE, 2000/60/CE) en Europe. A l'heure actuelle, seuls quelques métaux, les PCB et les HAP font l'objet d'une réglementation avec la directive 86/278/EEC relative à l'épandage des boues (Besnault et Martin, 2011).

Les procédés biologiques de stations de traitement des eaux usées 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). Cette élimination se fait essentiellement par adsorption sur les boues (substances hydrophobes), par une dégradation par voie biologique, ou encore par dégradation abiotique (oxydation, photodégradation) pour certaines substances. Ainsi, dans le cadre du projet AMPERES (ANR PRECODD 2006-2009), pour le procédé boues activées à aération prolongée par exemple, des rendements de dépollution de la phase liquide des effluents de l'ordre de 50 à 85 % pour les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et pour certains métaux, de 75 à 85 % pour les alkylphénols (AKP) et les diphénylétherbromés (PBDE), et de 75 à 95 % pour les hormones oestrogéniques et les analgésiques/anti-inflammatoires, ont été mesurés (Choubert *et al.*, 2011 ; Soulier *et al.*, 2011).

Cependant, une grande partie de ces micropolluants peut s'accumuler dans les boues. Environ 60 % des 127 substances prioritaires et émergentes analysées dans le cadre du projet AMPERES ont été quantifiées dans les échantillons de boue, dont 40 % à une teneur supérieure à 0,1 mg/kg poids sec (Coquery *et al.*, 2011). Le livrable D1 du projet ARMISTIQ (Etat de l'art sur les procédés de traitement des boues pour l'élimination de micropolluants) constitue un état de l'art sur les concentrations en micropolluants retrouvées dans les boues de STEU (Besnault et Martin, 2011).

Cette présence confirmée des micropolluants dans la boue démontre l'importance d'étudier le devenir de ces substances à travers les procédés de traitement des boues afin d'identifier le comportement des procédés vis-à-vis des micropolluants.

Les principaux objectifs des traitements des boues sont la réduction du volume de boue grâce à une augmentation de la siccité, la stabilisation de la boue ainsi que la réduction de la quantité de pathogènes. Parmi les procédés les plus fréquents de traitement des boues permettant d'atteindre ces objectifs, on peut citer le chaulage, la digestion anaérobie, le compostage, les lits plantés de roseaux ou encore le séchage (solaire ou thermique).

2. Objectifs de l'étude et description des procédés

L'objectif de cette étude est de déterminer quel est le devenir des micropolluants dans les boues de STEU à travers les procédés de traitement des boues. Pour cela, des prélèvements ont été faits sur 9 installations de traitement des boues biologiques (3 sites de compostages, une digestion anaérobie et 2 lits de séchage plantés de roseaux) ou de séchage (2 séchages thermiques, 1 séchage solaire).

Les boues liquides de STEU doivent être stabilisées afin de bloquer les fermentations anaérobies qui peuvent causer des odeurs désagréables. D'autre part, une réduction de leur volume est aussi recherchée de manière à limiter les coûts de transport et de stockage. Dans la plupart des cas, les boues liquides de stations d'épuration sont déshydratées, notamment par des centrifugeuses et filtres presse, avant de subir des procédés qui vont permettre de les conduire à leur destination finale, comme le compostage, les digestions aérobie ou anaérobie et le séchage. La filière globale assure une stabilisation et une hygiénisation des boues.

Différents mécanismes sont mis en place afin de stabiliser les boues. La fraction de matière organique (MO) biodégradable peut être éliminée par voie biologique aérobie (stabilisation biologique ou

digestion aérobie thermophile) ou anaérobie (digestion anaérobie mésophile ou thermophile). Afin de bloquer les fermentations non contrôlées, les micro-organismes actifs existants doivent être inhibés. Cela peut être fait en jouant sur différents paramètres : température (séchage thermique), pH (chaulage), élimination de l'eau (séchage solaire et thermique). Le compostage est un procédé aérobie thermophile qui peut être appliqué aux boues déshydratées afin de contrôler la fermentation et d'hygiéniser la boue.

2.1. Procédés de séchage des boues

Les objectifs du séchage sont de :

- Permettre la stabilisation voire l'hygiénisation des boues en réduisant leur caractère fermentescible ;
- Diminuer le volume et la masse des boues afin de diminuer les coûts de transport, de diminuer le volume de stockage nécessaire et de faciliter leur manutention ;
- Améliorer les possibilités de recyclage (co-incinération en centrale d'énergie, cimenterie, valorisation comme amendement agricole).

Plutôt adapté à des stations de moyenne ou grande capacité, le séchage thermique, relativement onéreux, complète un traitement de déshydratation par centrifugation ou par filtres presse. Les boues séchées thermiquement peuvent également être incinérées (seules ou en co-incinération) ou, en cas de besoin, évacuées en centre de stockage des déchets ultimes. Les taux de siccité obtenus sont en général compris entre 60 et 90 %. Le séchage solaire, procédé apparu en Allemagne en 1994, est plutôt mis en œuvre dans des STEU de capacité inférieure à 50 000 Equivalents Habitants (EH). Les boues placées sous serre sont déshydratées sous l'effet de la concentration des rayons solaires.

2.1.1. Séchage thermique

Les sècheurs thermiques sont habituellement classés en fonction des modes de transmission de la chaleur dans le sécheur (par conduction, convection et rayonnement) mais peuvent aussi être classés en fonction des températures au sein du sécheur (haute ou basse température).

La chaleur se transmet de trois manières différentes : la conduction, la convection, le rayonnement. Appliqués aux boues, ces modes de transmission de chaleur vont se traduire par des technologies différentes. Trois grands types de sècheurs existent :

- *Sécheur indirect* : transfert de chaleur au travers d'une surface d'échange métallique (conduction) ; la chaleur est apportée par contact entre la boue et une paroi chauffée. Les boues sont physiquement isolées du fluide de chauffage qui est en général de la vapeur ou de l'huile thermique. La paroi chauffée en contact avec la boue humide permet l'évaporation de l'eau interstitielle de la boue. Dans ce cas, la boue reste en masse mais doit être malaxée au sein du sécheur. Les buées sont aspirées.
- *Sécheur direct* : transfert de chaleur par contact direct du fluide caloporteur et de la boue (convection). La chaleur est apportée à la boue par un gaz chaud qui est en contact direct avec la boue. Dans ce cas, l'air chaud ou le gaz de combustion circule sur les boues à sécher généralement préalablement préparées. La boue doit être dans un état finement divisé (granulés de quelques millimètres ou petits cylindres). L'air chaud ou le gaz de combustion contenant déjà une teneur en eau faible absorbe l'eau de la boue à sécher. L'eau est entraînée par le gaz ce qui implique de traiter de grosses quantités de gaz (gaz de fumées + vapeurs).
- *Sécheur mixte* : mélange des deux systèmes, la première partie du séchage se fait dans une zone de séchage indirect, la seconde dans une zone de séchage direct. Les deux effets se conjuguent et se complètent.

2.1.2. Séchage solaire

Le séchage solaire utilise le principe de l'effet de serre. L'énergie contenue dans le rayonnement solaire est en France variable de 1 200 à 1 750 kWh/m²/an, dont 40% émis dans le domaine visible et 50% dans le domaine de l'infrarouge. L'effet de serre repose sur le fait que les matériaux utilisés depuis longtemps par les serristes (verre, plexiglas, film plastique, polycarbonate...) ont des propriétés très

différentes dans les deux domaines spectraux : ils sont transparents au rayonnement solaire mais absorbent le rayonnement infrarouge, comme l'illustre la Figure 3.

La serre va utiliser ce principe pour accélérer le processus d'élimination de l'eau contenue dans les boues. Pour cela, la boue à sécher est étalée sur une épaisseur de 10 à 30 cm puis véhiculée à l'intérieur de la serre (par exemple avec une machine de scarification, présentée dans la Figure 4).

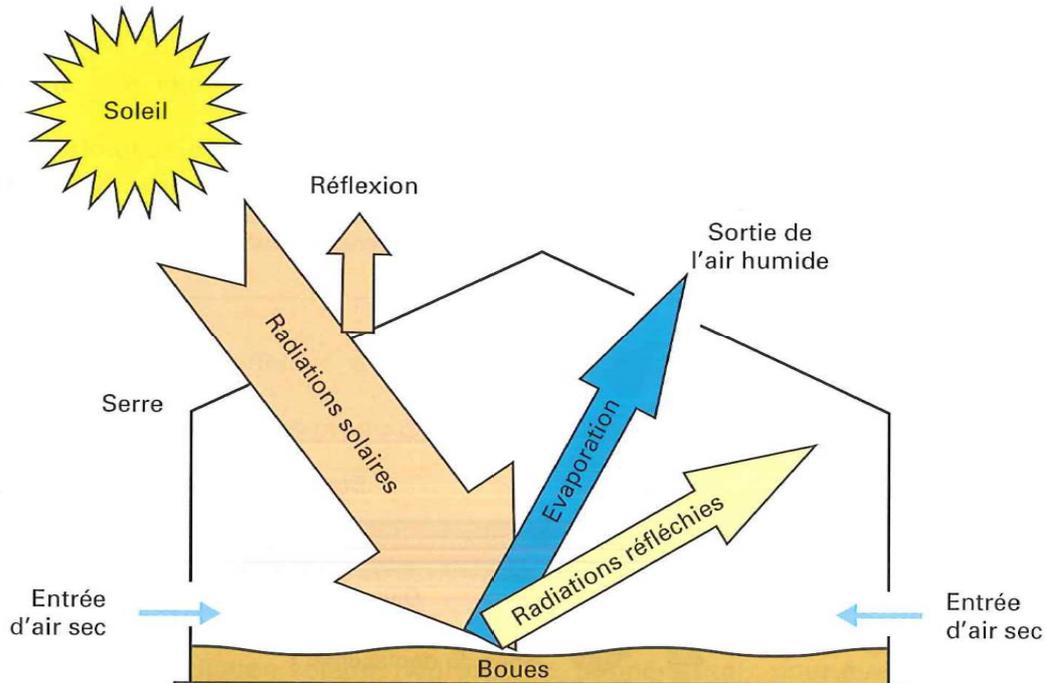


Figure 3 : Principe du séchage solaire (Degrémont, Mémento technique de l'eau)



Figure 4 : Scarificateur en fonctionnement dans une serre

L'échauffement de la surface du lit de boue, dû au rayonnement solaire et au rayonnement infrarouge émis par le matériau transparent de la serre, va augmenter la pression de vapeur de l'eau contenue dans la boue. Un flux d'air frais admis sur la surface du lit de boue va donc se charger d'humidité. Or quand il est humide et plus chaud, l'air est plus léger. Les différences de température, couplées à la différence de densité engendrent un mouvement de convection naturelle. Le renouvellement continu de

l'air présent dans la serre permet de maintenir un degré d'hygrométrie favorable à l'optimisation de l'évaporation.

2.2. Procédés biologiques

2.2.1. Digestion anaérobie

La digestion anaérobie (DA) est une fermentation méthanique. Elle a un pouvoir de destruction cellulaire parmi les plus puissants du monde biologique et permet l'élimination d'une part importante de la matière organique. La DA produit du biogaz, principalement composé de méthane et de dioxyde de carbone, qui peut être utilisé pour chauffer le digesteur ou les bâtiments, pour sécher la boue ou pour produire de l'électricité par co-génération par exemple. Le biogaz produit dépend de la température, du temps de séjour et du niveau de stabilisation de la MO à l'entrée de la DA et est représentatif de la qualité de la digestion. Une digestion bien équilibrée permet la production d'environ 900 à 1100 L de gaz pour 1 kg de MO détruite. La digestion permet une réduction de 40 à 50% de la teneur en MO d'une boue mixte ainsi qu'une réduction du volume global des boues (Degrémont, Mémento technique de l'eau).

Les boues digérées ont une couleur noire et dégagent une odeur faible proche de celle du goudron. 90% des salmonelles et la plupart des germes pathogènes sont détruits. Le stockage prolongé de la boue digérée n'entraîne pas de reprise de la fermentation.

Il existe différentes catégories de digestion des boues : la digestion mésophile (35-40°C) qui est la plus fréquente, la digestion thermophile (50-60°C) plus rarement utilisée et la digestion en deux phases, qui est une combinaison des deux procédés.

2.2.2. Compostage

Le compostage des boues est une fermentation contrôlée qui consiste à transformer la matière organique par voie aérobie et à former des composés humiques et pré-humiques stables. Il permet une réduction du volume des boues, le stockage sur des périodes longues, une hygiénisation, une modification de la texture, une stabilisation biologique et une amélioration de la qualité agronomique de la boue. Le compost produit peut être épandu sur les champs comme amendement pour les cultures.

La boue doit être aérée pendant le procédé. Comme la boue déshydratée a une porosité réduite, un support carboné est ajouté afin d'atteindre 20% de vide dans le mélange. Le support carboné crée des espaces dans le mélange, permettant ainsi la circulation de l'air, donne une stabilité mécanique au mélange ce qui facilite sa manutention, permet d'équilibrer le ratio C/N en apportant du carbone et absorbe une partie de l'humidité, améliorant la structure du mélange. Différents supports organiques peuvent être utilisés comme la sciure, les déchets d'espace verts broyés, les copeaux ou plaquettes de bois, les écorces broyées... Une partie du support carboné est récupérée par criblage avec des machines, comme celle de la Figure 5, puis réutilisée pour le compostage.

La dégradation de la matière organique par différents micro-organismes est accompagnée d'une élévation de température qui peut atteindre plus de 70°C. Ainsi, les germes pathogènes sont détruits et l'humidité du mélange est réduite par évaporation. Le compostage est habituellement appliqué à des boues fraîches mais peut aussi avoir lieu après une digestion anaérobie.

Le compostage est divisé en deux étapes : la fermentation qui dure environ 4 semaines et la maturation qui dure de un à trois mois. Pendant la maturation, le mélange est retourné périodiquement. Le ratio C/N et le pH diminuent, l'azote se nitrifie. Le retournement est fait avec des machines adaptées, il permet une aération du tas et une re-distribution des espaces vides. Il assure aussi que tout le mélange soit soumis à des conditions d'hygiénisation.

Différentes sortes de compostages existent selon si le système est ouvert ou confiné, si l'aération est naturelle ou forcée, si la régulation de la température est possible ou non.



Figure 5 : Crible pour séparer le compost du support carboné

2.2.3. Lits de séchage plantés de roseaux

Les lits de séchage plantés de roseaux (LSPR) impliquent un massif filtrant (reconstitué et drainé), sur lequel des boues sont disposées, et dans lequel des roseaux se développent (ex. *Phragmites australis*). Apportée par période, la boue est retenue en surface, et s'accumule progressivement, environ 10 cm/an. L'espace libre autour de chaque tige de roseaux assure le passage de l'eau interstitielle de la boue, qui percole au sein du massif, est drainée, puis est renvoyée en tête de station d'épuration par pompage. Les végétaux participent au maintien de la porosité au sein de la boue en permettant son craquelèment. En été, ils contribuent à la déshydratation des boues par l'évapotranspiration foliaire.

Les mécanismes en jeu dans un lit de séchage planté sont schématisés sur la Figure 6.

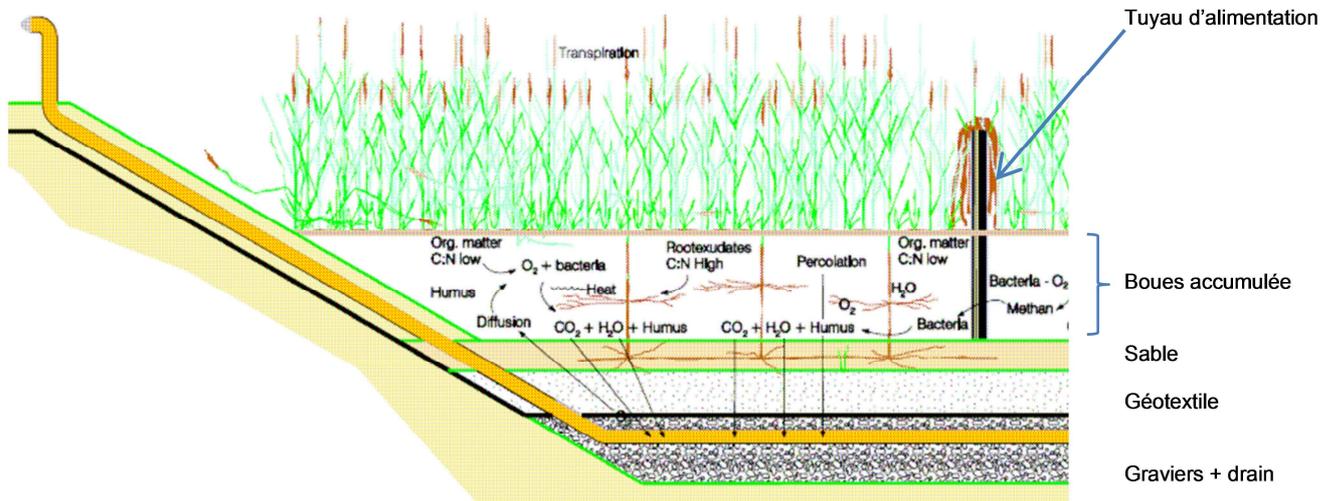


Figure 6 : Principaux mécanismes impliqués dans un lit de séchage planté de roseaux (Nielsen, 2005 in Troesch, 2009)

3. Micropolluants analysés et méthodes analytiques

Les micropolluants analysés dans cette étude ainsi que les techniques de préparation, d'extraction et d'analyse et les limites de quantification (LQ) pour chaque famille de substances sont présentés de façon concise dans le Tableau 3.

Au total, 79 micropolluants (Annexe I) ont été analysés dans les échantillons de boue, de refus de criblage, de déchet vert et de condensat. 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 LQ et la disponibilité de techniques analytiques fiables.

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. 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 PAE 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 $\mu\text{g}/\text{kg}$ de matière sèche MS, sauf métaux en mg/kg MS).

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-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 pré-concentration sur piège d'or, directe et automatisée, pour le mercure.

Les performances des méthodes d'analyses ont été établies en termes de LQ, rendement d'extraction pour les substances organiques, répétabilité, reproductibilité, et précautions vis-à-vis des effets matrice (ex. : étalons internes, dopages en concentration connue).

Tableau 3 : Micropolluants analysés, méthodes analytiques et limites de quantification

Familles de substances	Substances	Préparation/Extraction	Techniques analytiques	Limites de quantification ($\mu\text{g}/\text{kg}$ MS sauf métaux mg/kg MS)
Métaux (14)	Aluminium, titane, chrome, manganèse, fer, nickel, cuivre, zinc, arsenic, sélénium, argent, cadmium, plomb, mercure	Minéralisation acide assistée par micro-ondes (sauf Hg)	ICP-MS sauf Hg AAS automatisé (Hg)	0,01 à 6,7
Hormones (5)	17 β -estradiol, 17 α -éthinyloestradiol, estriol, 17 α -estradiol, estrone	ASE-SPE	HPLC/MS/MS	1 à 30
Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (19)	Naphtalène, dibenzothiophène, phénanthrène, anthracène, acénaphthylène, acénaphthène, fluorène, fluoranthène, pyrène, benzo(a)anthracène, chrysène + triphénylène, 2,1 benzo-naphthothiophène, benzo(b+j+k)fluoranthène, benzo(e)pyrène, benzo(a)pyrène, perylène, indeno(c-d)pyrène, dibenzo(a,h + a,c)anthracène, benzo(ghi)perylène	ASE ou extraction par micro-ondes-SPE	GC/MS	3 à 10
Alkylphénols (6)	4-nonylphénol monoéthoxylate, 4-nonylphénol diéthoxylate, 4-nonylphénols, 4-ter octylphénol, acide 4-nonylphénoxyacétique, 4 ter butylphénol	Extraction assistée par micro-ondes - SPE	LC/MS/MS et GC/MS	10 à 50
PCB (8)	CB 50+28, CB 52, CB 101, CB 118, CB 153, CB 138, CB 180	Extraction assistée par micro-ondes	GC/ED-GC/MS	0,5
PDBE (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	Extraction assistée par micro-ondes	GC/MS	0,3 à 1
Autres (9)	Benzothiazole, tertbutylphénol, galaxolide, tonalide, di-butylphthalate, pentachlorophénol, triclosan, DEHP, bisphénol A	ASE-SPE	GC/MS	200 à 2000

ASE : extraction accélérée par solvant ; SPE : Extraction sur phase solide ; SPME : micro-extraction sur phase solide ; LC-MS/MS : chromatographie liquide couplée à la spectrométrie de masse en tandem ; 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 ; ED : détecteur à capture d'électrons ; ICP-MS : spectromètre de masse couplé à un plasma inductif ; AAS : spectrométrie d'absorption atomique.

4. Démarche expérimentale et description des filières étudiées

4.1. Démarche expérimentale

4.1.1. Matériel utilisé

Les précautions de terrain nécessaires pour le dosage des substances 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.

4.1.2. Echantillonnage

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 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 spécifiques ont été mis en place. Ils sont détaillés dans les paragraphes correspondant à chaque installation.

4.1.2.1. Echantillonnage des boues solides et des boues pâteuses

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

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 :

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

avec V : volume de la pile de stockage, exprimé en m³.

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 :

$$t = \frac{60Q}{Gn}$$

avec Q : masse du lot (en tonnes)
G : débit maximal (en tonnes/heure)
n : nombre d'échantillons

Les échantillons de boue ont ensuite été mélangés et réduits selon la méthode des quartiers 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 (Figure 7).



Figure 7 : Prélèvements de boue avant quartage

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 (Figure 8). 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 quartiers, qui doivent être uniformes en épaisseur et en diamètre en tenant compte du fait de la forme irrégulière (exemple pour un compost en Figure 9). On garde les quartiers diamétralement opposés et on les re-mélange comme indiqué sur la figure 8. Ce processus est répété jusqu'à ce que les deux derniers quartiers produisent la masse d'échantillon nécessaire.

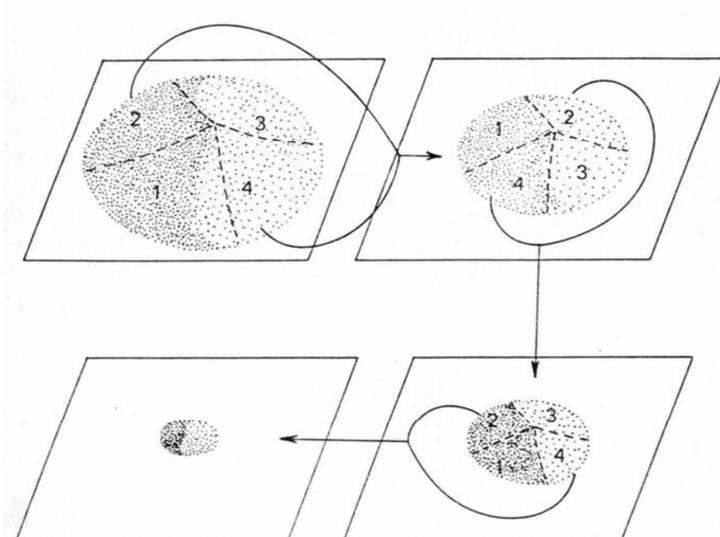


Figure 8 : Méthode manuelle de quartage (méthode du cône)



Figure 9 : Méthode du quartage appliquée à un compost

4.1.2.2. Echantillonnage des boues liquides

Le calcul du nombre de prélèvements ponctuels permettant de reconstituer un échantillon représentatif du lot de boues suivi est également appliqué au cas des boues liquides.

Dans ce cas, chaque prélèvement ponctuel de boue liquide est effectué avec un béccher en verre placé au bout d'une canne de prélèvement (Figure 10) 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 (Figure 11).

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, l'agitation est maintenue afin d'éviter un dépôt de matière en suspension au fond de la bonbonne.



Figure 10 : Prélèvement de boue liquide à l'aide d'une canne munie d'un béccher en verre



Figure 11 : Bonbonne en verre munie d'un agitateur téflon pour l'homogénéisation des prélèvements de boue liquide

4.1.3. Campagnes de prélèvements

Les campagnes de prélèvements ont été réalisées entre juin 2010 et septembre 2012 par les équipes procédés du Cirsee et d'Irstea. Le Tableau 4 présente une vue globale des types d'échantillons prélevés pour chaque installation étudiée, ainsi que les équipes et les périodes d'intervention. L'échantillonnage est détaillé pour chaque site dans un paragraphe dédié ci-dessous.

Tableau 4 : Echantillons de boues collectés sur les 9 procédés de traitement des boues étudiés

Procédé de traitement des boues	Echantillons prélevés	Réalisation des prélèvements Equipe (périodes d'intervention)
Sécheur haute température (As) <i>Boues placées 5h à 120°C</i> <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)
Sécheur basse température (Bs) <i>Boues placées 1,8h à 72°C</i> <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)
Séchage solaire (Cs) <i>Boues placées 28 jours en serre</i> <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)
Digestion anaérobie (Ds) <i>Boues placées 20 jours à 37°C</i> <i>Traitement des boues d'une STEU de 110 000 EH urbaine</i>	Boue flottée (3 éch.), boue digérée (3 éch.), 1 condensat, 2 retours en tête	CIRSEE (février 2011)
Compostage tunnels (Es) <i>Boues placées 1 mois en tunnel fermé ventilé</i> <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)
Compostage casiers (Fs) <i>Boues placées 2 mois en casiers semi- fermés avec recirculation d'air chaud</i> <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)
Compostage andains (Gs) <i>Boues placées 1,5 mois en extérieur en andains</i> <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)
Lits de séchage planté de roseaux (Hs) <i>Boues placées en cellule alimentée 2j et au repos 14j, pendant 8 ans</i> <i>Capacité nominale 3000 EH, réseau séparatif</i>	Prélèvements en 1 seule verticale, en milieu et fond de lit (4 éch. de boue)	Irstea (décembre 2010 ; septembre 2012)
Lit de séchage planté de roseaux (Is) <i>Boues placées en cellule alimentée 2 semaines, et au repos 14 semaines, pendant 10 ans. Pas d'alimentation pendant les 4 derniers mois.</i> <i>Capacité nominale 13000 EH, réseau unitaire</i>	Prélèvements en 3 verticales, en milieu et fond de lit. Mélange des boues du même horizon (4 éch. de boue)	Irstea (décembre 2010 ; septembre 2012)

4.1.4. Méthodologie suivie pour le calcul de rendement d'élimination

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 considérés (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 pré-traitement des échantillons et à l'analyse.

Pour consolider les valeurs de rendement obtenues, nous avons appliqué une règle de calcul inspirée de celle élaborée pour les eaux (Choubert *et al.* 2011). Le rendement d'un procédé de traitement des boues a été calculé pour une substance ciblée dès lors qu'une des concentrations, d'entrée ou de sortie, était supérieure à 10 fois la limite de quantification (Annexe I). La Figure 12 montre les différents cas rencontrés lors du calcul de rendement des procédés de traitement des boues.

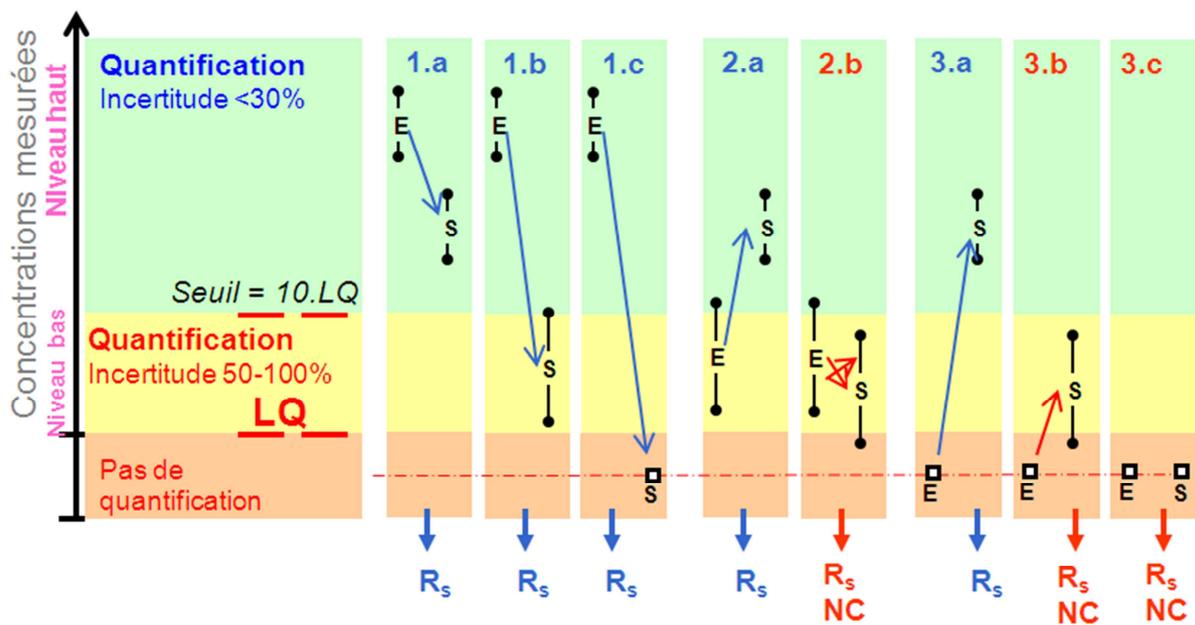


Figure 12: Représentation schématique des règles de calculs des rendements (adaptée de Choubert *et al.*, 2011) (R_s : rendement d'élimination boue ; NC : non calculable ; E : concentration en entrée ; S : concentration en sortie)

Le rendement d'élimination boue (R_s en %) qui prend uniquement en compte le flux de micropolluants dans les boues en entrée et en sortie du procédé de traitement des boues est calculé avec la formule suivante :

$$R_s = \frac{\text{Flux boue entrée} - \text{Flux boues traitées}}{\text{Flux boue entrée}}$$

Pour le compostage, les flux de micropolluants dans les déchets verts et les refus de criblage ont également été pris en compte :

$$R_s = \frac{\text{Flux boue entrée} + \text{Flux déchets verts entrée} - \text{Flux boues traitées} - \text{Flux refus de criblage}}{\text{Flux boue entrée} + \text{Flux déchets verts entrée}}$$

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 $R < -30\%$, indiquant une accumulation dans la boue, ■ (gris) pour $-30\% < R < 30\%$, indiquant qu'il n'y a pas de changement significatif de la concentration dans la boue, et ■ (bleu) pour $R > 30\%$ indiquant une réduction de la concentration en micropolluants dans la boue (élimination).

$R < -30\%$	$-30\% < R < 30\%$	$> 30\%$

Ces gammes de rendements ont été choisies car elles correspondent à ce qui est effectivement observé et permettent de dégager des tendances en limitant l'impact des incertitudes de mesure. Par exemple, la Figure 13 montre les rendements obtenus pour le procédé de digestion anaérobie pour l'ensemble des micropolluants pour lesquels R_s a été calculé.

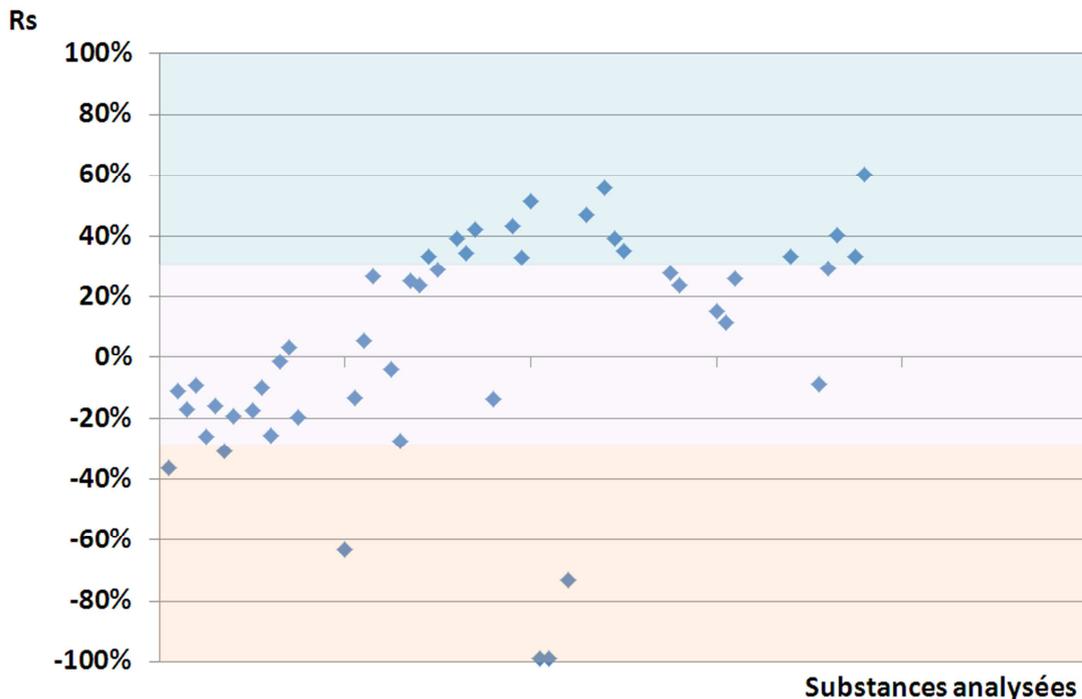


Figure 13 : Dispersion des rendements d'élimination (R_s) pour la digestion anaérobie (site Ds)

Les rendements d'élimination obtenus pour toutes les installations de traitement étudiées sont rassemblés dans le tableau de l'annexe II.

4.2. Site A_s (Séchage thermique haute température)

4.2.1. Description du site

Le site A_s dont la capacité est de 70 000 tonnes par an, traite les boues de tous types provenant d'une quinzaine de sites différents (boues biologiques, boues primaires, boues tertiaires, boues industrielles, boues digérées ou boues mixtes avec ou sans chaux).

Le site A_s est équipé de deux sécheurs thermiques indirects NARA (Figure 14 et Figure 15) en parallèle. Chaque sécheur est composé d'une auge en forme de double enveloppe. Dans cette auge sont disposés deux arbres parallèles et, sur chaque arbre, un nombre important de palettes de géométrie spécifique. L'ensemble de la double enveloppe de l'auge, des arbres et des palettes creuses est parcouru par un fluide caloporteur. Celui-ci est soit de la vapeur saturée sèche, à une pression

comprise entre 5 et 10 bars, soit de l'huile thermique à une température de 160 à 200°C. Les arbres tournent à faible vitesse en sens opposé, ce qui malaxe la boue et lui confère une grande homogénéité. Son temps de séjour élevé (5 h) contribue à l'hygiénisation poussée de la boue séchée.

Chacun des deux sécheurs a une capacité nominale d'évaporation de 3,4 Teau/h. La température des buées est d'environ 115°C et la température à l'intérieur des sécheurs d'environ 120°C. A l'entrée du sécheur, la siccité des boues est comprise entre 16 et 55%. A la sortie du sécheur, la siccité peut atteindre 90% pour les deux lignes.

Les caractéristiques des sécheurs du site As sont réunies dans le Tableau 5.

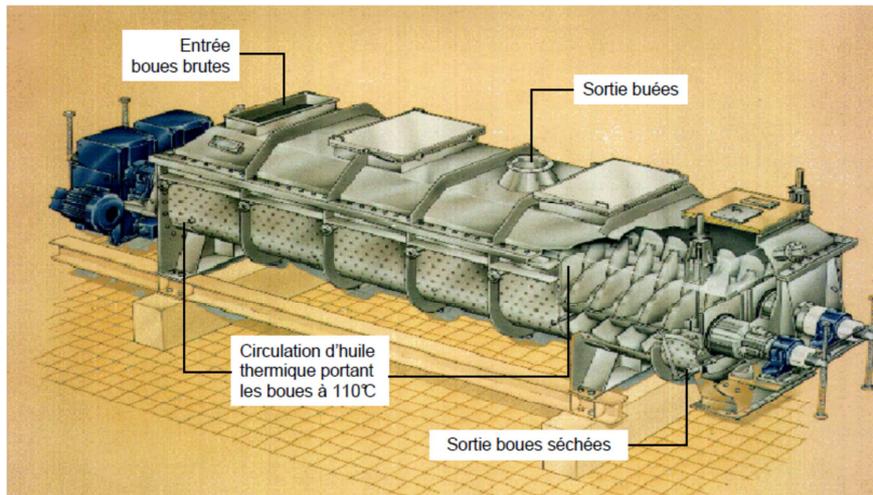


Figure 14 : Schéma d'un sécheur thermique haute température – modèle NARA

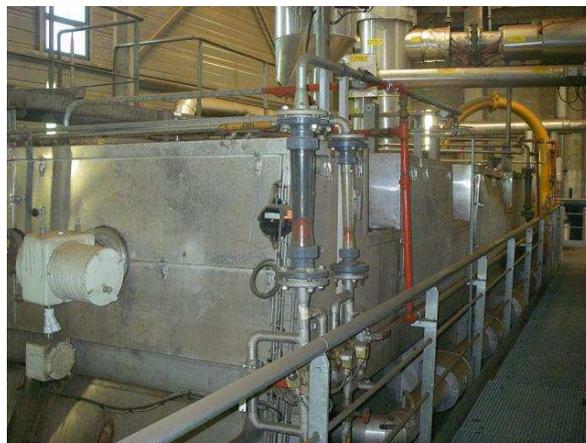


Figure 15 : Sécheur thermique haute température – modèle NARA

Tableau 5 : Caractéristiques des 2 sécheurs haute température du site As

Marque	GMF
Type de sécheur	Sécheur strictement indirect
Modèle	NARA 14 W 190
Nombre	2
Capacité évaporatoire	3,4 T H ₂ O/h
Temps de séjour	5h
Température	120°C
Recirculation des boues	Pas de recirculation
Charge entrante	76 m ³ /j
Charge entrante	27840 kg MS/j
Condensats	48 m ³ /j

4.2.2. Echantillonnage

La campagne s'est déroulée pendant deux jours. Les prélèvements de boues ont été effectués à l'entrée et à la sortie des sècheurs sur les deux lignes. Les prélèvements sur les lignes 1 et 2 ont été faits en deux journées. Pour chaque ligne indépendamment, les échantillons de ces deux jours ont été ensuite mélangés et homogénéisés. Un échantillon moyen de boues représentant deux jours de fonctionnement a été obtenu en entrée et en sortie de la ligne 1, et en entrée et en sortie de la ligne 2. Afin d'étudier le transfert des micropolluants vers la phase liquide, un prélèvement de condensat a été effectué lors des deux jours de la campagne sur la ligne 2. Les points de prélèvement sont indiqués sur la Figure 16.

Les échantillons moyens de boue ont été reconstitués avec la méthode du quartage à partir de 10 prélèvements ponctuels de 500g de boue prélevés pendant deux heures. Les échantillons de boue de sortie ont été prélevés avec un décalage de 5h correspondant au temps de séjour dans le sécheur afin de suivre un lot de boue à travers le procédé de séchage.

L'échantillon moyen de condensat a été reconstitué à partir de 10 prélèvements ponctuels de 1L prélevés pendant la durée de séchage du lot de boue suivi (5h).

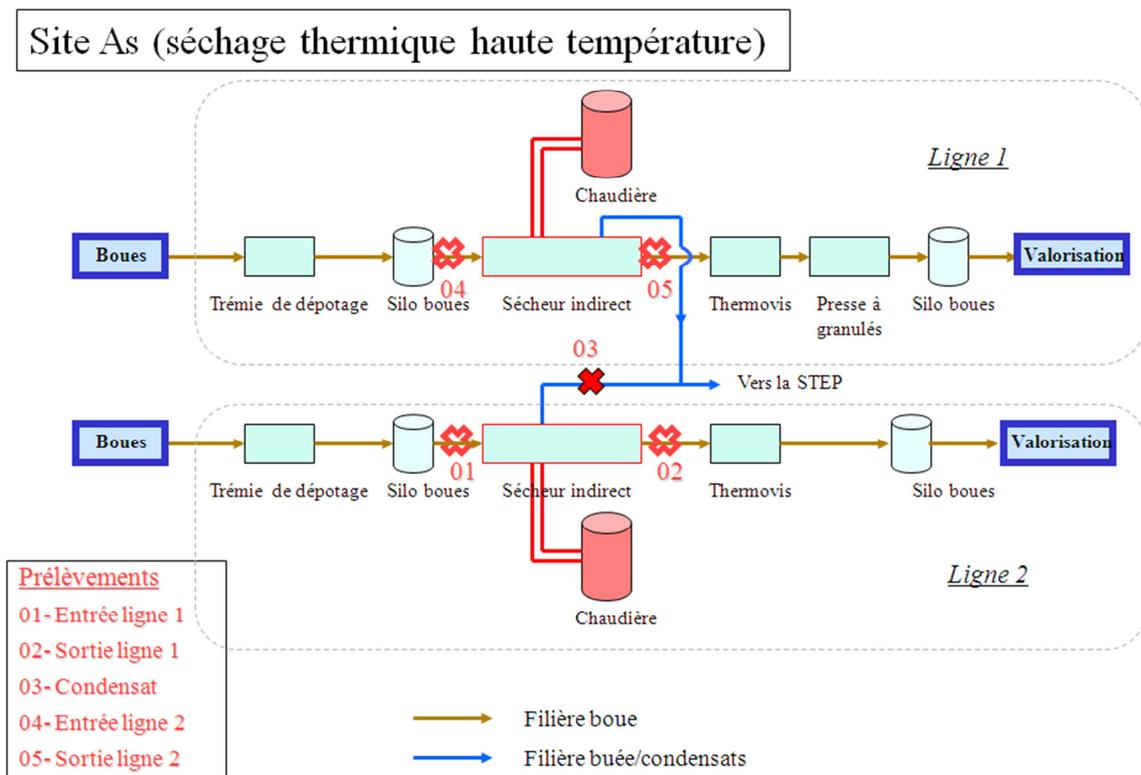


Figure 16 : Points de prélèvements du site As (séchage thermique haute température)

4.3. Site B_s (Séchage thermique basse température)

4.3.1. Description du site

Le site Bs traite les boues de la station d'épuration de 2.8 millions d'équivalents habitants attenante et a une capacité de 180 000 T de boues traitées par an. Les boues traitées sont un mélange de boues primaires (60 à 80%) et de boues biologiques (20 à 40%) de la STEU attenante. Le séchage des boues du site Bs est un séchage basse température (BT) de type STC. C'est un sécheur à bande et donc un sécheur direct.

Dans ce sécheur, la boue est d'abord mise en forme dans une extrudeuse afin d'augmenter la surface d'échange (« spaghetti »), comme le montre la Figure 17.

Les spaghetti sont ensuite disposés sur des bandes transporteuses où ils sont soumis à un écoulement d'air chaud parallèlement ou perpendiculairement à leur sens de déplacement. Dans ce système, le fluide caloporteur (ici de l'air chaud) est à basse température (environ 70°C). L'air est recyclé et re-circule dans le sécheur, ce qui permet une récupération d'énergie et une limitation de la consommation de l'installation.

Le site Bs dispose de quatre lignes de traitement en parallèle avec quatre sécheurs STC identiques (Figure 18) alimentées à partir d'un même silo où les boues à traiter sont mélangées.

Les caractéristiques des sécheurs du site Bs sont détaillées dans le Tableau 6.



Figure 17 : Boue déshydratée extrudée entrant dans le sécheur thermique basse température



Figure 18 : Deux sécheurs basse température – marque STC

Tableau 6 : Caractéristiques des 4 sécheurs du site Bs

Marque	STC
Type de sécheur	Sécheur à bande direct
Nombre	4
Capacité évaporatoire	4 T H ₂ O/h
Temps de séjour	1,8 h
Température	72°C
Recirculation des boues	Pas de recirculation
Charge entrante	144 m ³ /j
Charge entrante	45072 kg MS/j
Condensats	90 m ³ /j

4.3.2. Echantillonnage

La campagne de prélèvements s'est déroulée sur une seule ligne de séchage du site Bs pendant deux jours (J1 et J2) afin d'évaluer la répétabilité. Les points de prélèvement se trouvaient à l'entrée du sécheur, ainsi qu'à la sortie du sécheur. Quatre échantillons de boues ont été prélevés pendant deux jours (deux échantillons d'entrée du sécheur et deux échantillons de sortie du sécheur). Un prélèvement de condensat a été également effectué en J1. Les points de prélèvement sont indiqués sur la Figure 19.

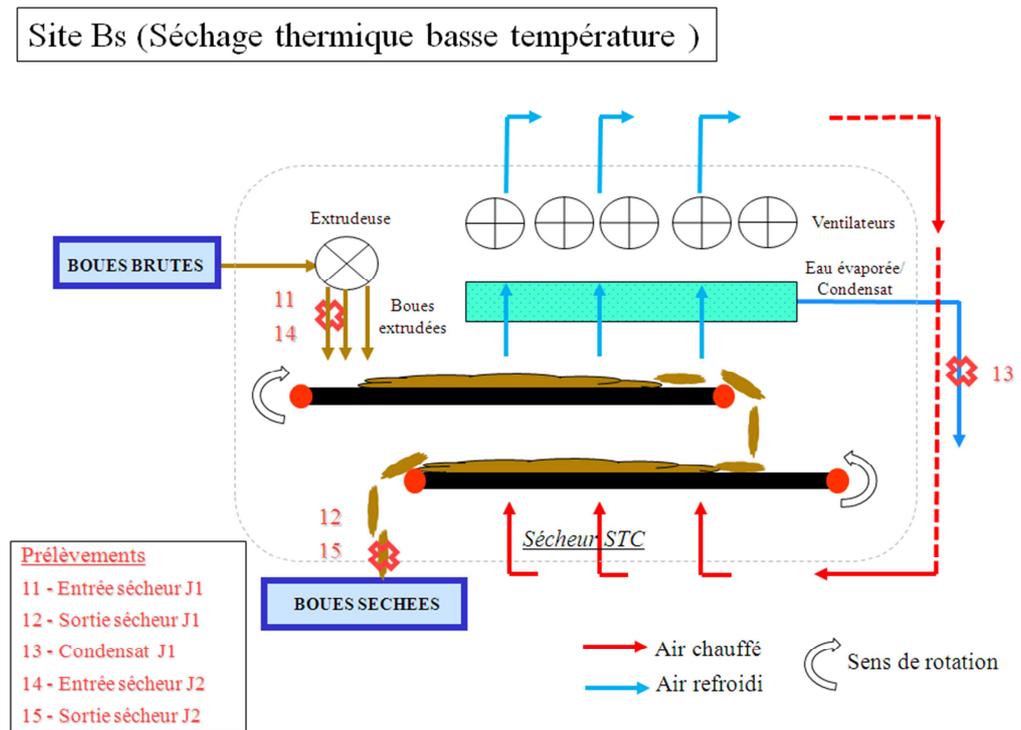


Figure 19 : Points de prélèvement du site Bs (séchage thermique basse température)

Les échantillons moyens de boue ont été reconstitués avec la méthode du quartage à partir de 10 prélèvements ponctuels de 500g de boue prélevés pendant deux heures. Les échantillons de boue de sortie ont été prélevés avec un décalage de 1,8 h correspondant au temps de séjour dans le sécheur afin de suivre un lot de boue à travers le procédé de séchage.

L'échantillon moyen de condensat a été reconstitué à partir de 10 prélèvements ponctuels de 1L prélevés pendant la durée de séchage du lot de boue suivi (1,8 h).

4.4. Site C_s (Séchage solaire)

4.4.1. Description du site

Le site C_s traite les boues d'une station de 32 000 EH attenante. La station d'épuration possède trois lignes de traitement biologique classiques en parallèle.

Deux serres (Figure 20) traitent les boues biologiques des trois lignes après une grille d'égouttage et un filtre presse. La siccité des boues en entrée est d'environ 25 % et peut atteindre 90% à la fin du séchage solaire. La capacité de séchage des serres est de 5 T/j au maximum.



Figure 20 : Serres de séchage solaire du site Cs

4.4.2. Echantillonnage

Six prélèvements moyens de boues ont été effectués sur le site C_s. Le premier prélèvement a été fait sur un tas de boues déshydratées. Les cinq autres ont été faits sur le même lot de boues, séparé des autres boues traitées par des intervalles de deux mètres, 5, 8, 13, 21 et 27 jours après le premier prélèvement comme le montre la Figure 21.

Les échantillons moyens de boue ont été reconstitués avec la méthode du quartage à partir de 10 prélèvements ponctuels de 500 g de boue prélevés sur toute la surface du lot de boue en cours de séchage qui a été quadrillée.

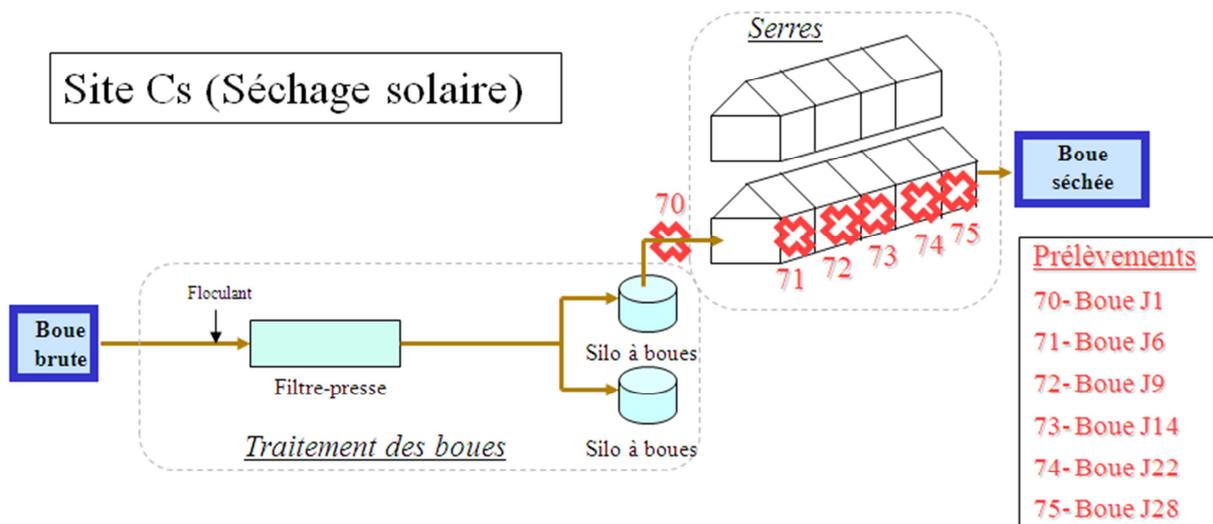


Figure 21 : Points de prélèvement du site Cs (séchage solaire)

4.5. Site D_s (digestion anaérobie) et site E_s (compostage tunnel)

4.5.1. Description du site

La digestion anaérobie n'est pas habituellement suivie d'un compostage car les objectifs de ces deux procédés de traitement des boues sont assez similaires. Ainsi, il n'a pas été facile de sélectionner un site combinant ces deux procédés. Le site D_s + E_s possède un digesteur mésophile, ainsi qu'un procédé de compostage Adonis de la société Amendor, afin de traiter les boues d'une seule station d'épuration (110 000 EH). La STEU traite les eaux usées avec un procédé R3F (réacteur à flore fixe fluidisée).

La digestion anaérobie est mésophile et traite environ 83 m³ de boues flottées par jour. Les caractéristiques de la digestion au cours de la campagne sont présentées dans le Tableau 7.

Tableau 7 : Caractéristiques du digesteur au cours de la campagne

Boue d'entrée(boue flottée)	41,2 g/L	74,9% MV
Boue digérée	27 g/L	57,2% MV
Elimination des MV	49±8%	
Température	35-37°C	
Temps de séjour des boues	20 jours	
pH	7,6	

Les boues des sites D_s et E_s sont extraites du flottateur puis égouttées et digérées lors d'une digestion anaérobie mésophile, puis déshydratées et mélangées avec des refus de criblage et des déchets verts pour être compostées. La capacité de l'unité de compostage est de 3150 tonnes de compost produit par an.

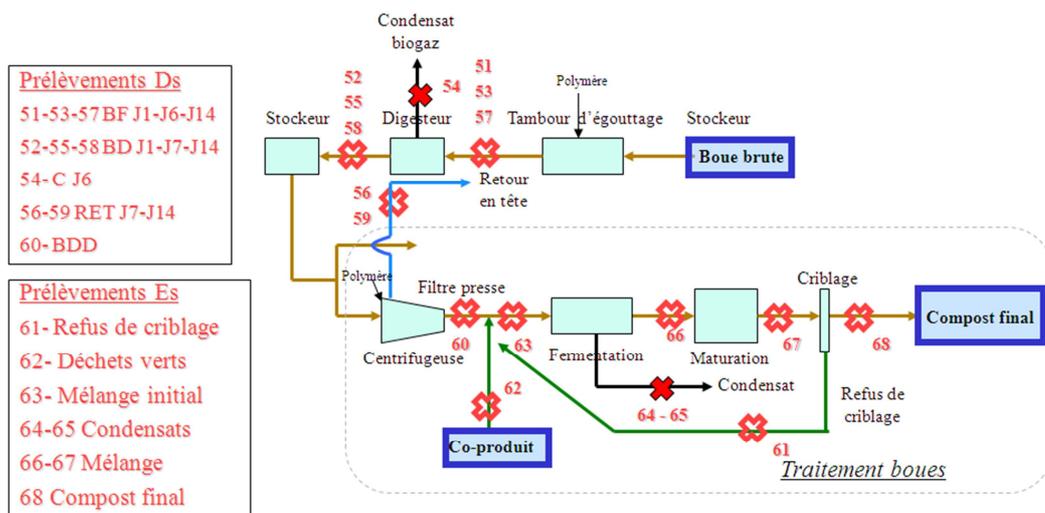
Le compostage se fait en trois étapes. D'abord, le mélange boues-déchets verts-refus de criblage est mis en fermentation dans un tunnel fermé avec recirculation d'air chaud pendant 7 à 10 jours. La température peut dépasser 70°C dans le tunnel ce qui garantit une bonne élimination des germes pathogènes. Ensuite, la phase de maturation s'effectue en tunnels en aération forcée pendant 15 à 20 jours. Le compost final est criblé à une maille de 30 mm et le refus retourne à la première étape du compostage.

4.5.2. Stratégie d'échantillonnage

Comme la digestion anaérobie est un procédé continu, il n'a pas été possible de suivre un « lot » de boue comme pour les autres campagnes. Il a été décidé de prélever trois échantillons à l'entrée du digesteur (boue flottée) pendant trois semaines et trois échantillons à la sortie du digesteur (boue digérée). Les échantillons à l'entrée ont été prélevés aux jours 1, 6 et 14 et ceux à la sortie aux jours 1, 7 et 14. Un échantillon de condensat du biogaz a également été prélevé au jour 6, ainsi qu'un prélèvement de retour en tête aux jours 7 et 14. Pour des raisons pratiques, la durée de l'échantillonnage a été plus courte que le temps de séjour dans le digesteur anaérobie (21 jours), mais la qualité des boues a peu varié entre les différents jours de prélèvement. Les points de prélèvement sont indiqués sur la Figure 22.

Après la digestion, un lot de boue correspondant à un tunnel dédié a été suivi pendant toutes les étapes du compostage. Sept échantillons de solides (boue brute, mélange de compostage, déchets de criblage et compost) ont été prélevés ainsi que 2 échantillons de condensat. Les points de prélèvement sont indiqués sur la Figure 22.

Site Ds (Digestion anaérobie) et Es (compostage)



BF : Boues flottées ; BD : Boues digérées liquides ; C : Condensat ; RET : Retour en tête ; BDD : Boues digérées déshydratées

Figure 22 : Points de prélèvement des sites Ds (digestion anaérobie) et Es (compostage tunnel)

4.5.3. Bilan matière

Afin de calculer le rendement total d'élimination du procédé de compostage du site Es, un bilan matière a été déterminé. Ce bilan matière est théorique et correspond aux données fournies par l'exploitant de l'installation de compostage. Il n'a malheureusement pas été possible de déterminer le bilan matière réel par la pesée de tous les composants ajoutés au compartiment en raison de la complexité de cette tâche. Le bilan matière est déterminé pour un tunnel, et il correspond à une moyenne basée sur une année de fonctionnement de l'installation de traitement des boues (année 2012). Le bilan matière est présenté sur la Figure 23.

Bilan matière site Es sur un tunnel



Figure 23: Bilan matière du site Es (compostage tunnel)

4.6. Site Fs (compostage casier)

4.6.1. Description du site

Le site Fs traite les boues provenant d'une dizaine de stations d'épuration. Il a une capacité de production de 15 000 T/an de compost. Les boues sont co-compostées avec des déchets verts et des refus de criblage en hiver) et uniquement avec des refus de criblage en été. La campagne d'échantillonnage ayant été faite en été, il n'y avait pas d'ajout de déchets verts. Le mélange est fermenté dans un casier semi-fermé (ventilé sous une toiture) pendant 4 à 6 semaines, comme illustré sur la Figure 24.



Figure 24 : Casiers de fermentation du site Fs (compostage casier)

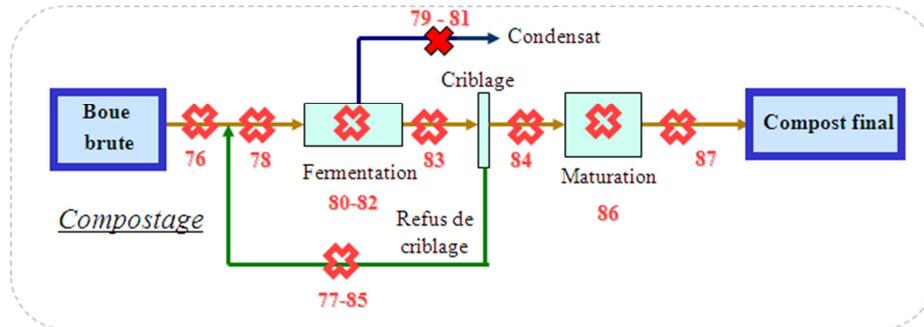
Un retournement du mélange est effectué chaque semaine. Le mélange fermenté est ensuite criblé puis subit une maturation en extérieur pendant 6 à 8 semaines.

4.6.2. Stratégie d'échantillonnage

Un lot de boue correspondant à un casier dédié a été suivi pendant toutes les étapes du compostage. Dix échantillons de solides (boue brute, mélange de compostage, déchets de criblage et compost) ont été prélevés ainsi que 2 échantillons de condensat, lors de la fermentation afin d'évaluer les transferts vers la phase liquide. Les points de prélèvement sont indiqués sur la Figure 25.

La campagne d'échantillonnage a été réalisée en été.

Site Fs (Compostage casier)



Prélèvements

- 76 Boue brute
- 77-85 Refus de criblage
- 78 Mélange initial
- 79-81 Condensat
- 80-82 Mélange en fermentation
- 83 Mélange avant criblage
- 84 Mélange criblé
- 86 Mélange en maturation
- 87 Compost final

Figure 25 : Points de prélèvement du site Fs (compostage casier)

4.6.3. Bilan matière

Afin de calculer le rendement total d'élimination du procédé de compostage du site Fs, un bilan matière a été déterminé. Ce bilan matière est théorique et il correspond aux données indiquées par l'exploitant de l'installation de compostage. Il n'a malheureusement pas été possible de déterminer le réel bilan matière par la pesée de tous les composants ajoutés au compartiment en raison de la complexité de cette tâche. Le bilan matière est déterminé pour un compartiment, et il correspond à une moyenne basée sur une année de fonctionnement de l'installation de traitement des boues. Le bilan matière est présenté sur la Figure 26.

Bilan matière site Fs sur un casier



Figure 26 : Bilan matière sur le site Fs (compostage casier)

4.7. Site Gs (compostage andains)

4.7.1. Description du site

Le site Gs est une plateforme de compostage qui traite environ 8 500 tonnes de boues par an provenant d'une quinzaine de STEU. L'installation produit environ 7 300 tonnes de compost chaque année. La campagne a été réalisée sur un andain recevant les boues de plusieurs STEU. Chaque andain représente environ 200 à 300 tonnes de mélange à composter, c'est pourquoi il a été plus difficile d'obtenir des échantillons représentatifs du lot suivi (un andain) que pour les sites Es et Fs. Les boues sont compostées sur des andains à ciel ouvert sans ventilation (Figure 27). Les andains sont retournés 6 fois pendant le procédé de compostage, qui dure 2 à 3 mois. Les condensats et les lixiviats sont recueillis dans un bassin à ciel ouvert qui reçoit les effluents de toute l'installation. Par conséquent, aucun échantillon de condensat n'a été recueilli. Le compostage du site Gs est moins contrôlé que celui des sites Es et Fs, c'est un compostage plus rustique.

En été, les boues sont mélangées à des déchets verts et à des déchets de criblage dans la proportion de 1 volume de boue pour 1 volume de déchets de criblage et 2 volumes de déchets verts. À la fin du traitement, le mélange est passé sur un crible mobile de 20 mm et stocké à l'extérieur avant l'épandage.



Figure 27 : Andain du site Gs (compostage andains)

4.7.2. Stratégie d'échantillonnage

Un lot de boue correspondant à un andain dédié a été suivi pendant toutes les étapes du compostage. Six échantillons de solides (boue brute, mélange de compostage, déchets de criblage et compost) ont été prélevés. Les points de prélèvement sont indiqués sur la Figure 28. La campagne d'échantillonnage a été réalisée au printemps.

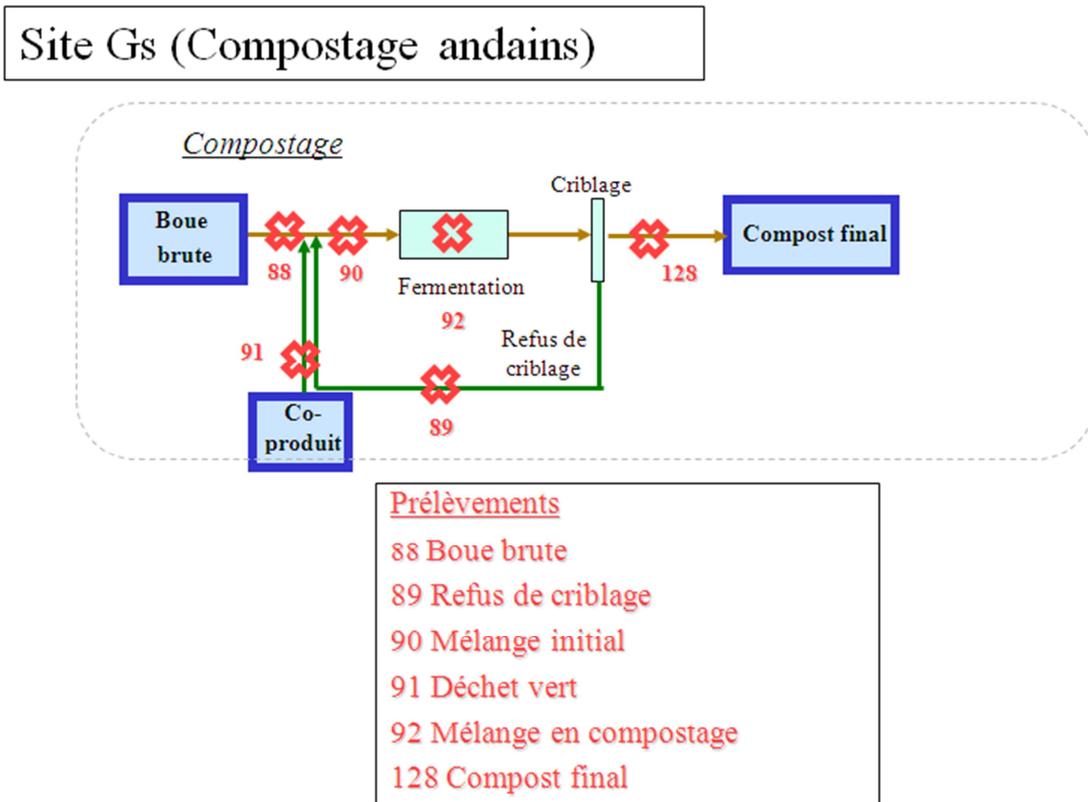


Figure 28 : Points de prélèvement du site Gs (compostage andains)

4.7.3. Bilan matière

Afin de calculer le rendement total d'élimination du procédé de compostage du site Gs, un bilan matière a été déterminé. Ce bilan matière est théorique et il correspond aux données indiquées par l'exploitant de l'installation de compostage. Il n'a malheureusement pas été possible de déterminer le réel bilan matière par la pesée de tous les composants ajoutés au compartiment en raison de la complexité de cette tâche. Le bilan matière est déterminé pour un andain et est présenté sur la Figure 29.

Bilan matière site Gs sur un andain

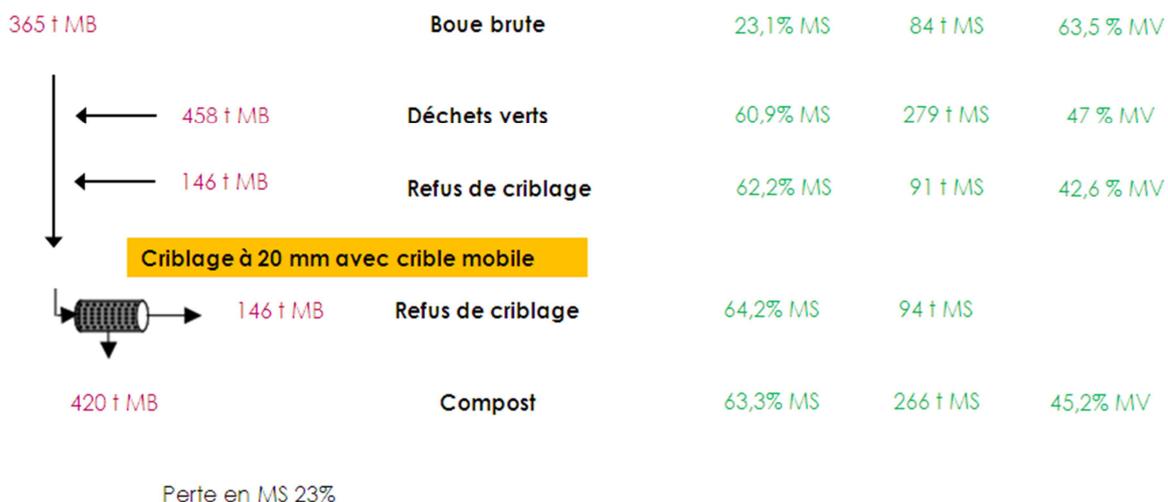


Figure 29 : Bilan matière du site Gs (compostage andains)

4.8. Site Hs (lit de séchage planté de roseaux à fréquence d'alimentation-repos élevée)

4.8.1. Description du site

Le site Hs consiste en une unité de 8 lits de séchage plantés de roseaux, construits sur une station de traitement des eaux usées domestiques de type boues activées aération prolongée. Une photo est présentée Figure 30. La STEU fonctionne à 60% de sa charge nominale de 2900 équivalents-habitants, et son réseau est séparatif mais recueille des eaux claires parasites en hiver.

Chaque lit de séchage planté de roseaux a une surface de 75 m², et est soumis à une alimentation en boues issues du bassin d'aération de la STEU au rythme de 2 jours d'alimentation et de 14 jours de repos, pour une charge surfacique annuelle d'environ 30 kg MS/m².an.



Figure 30 : Lit de séchage de boues planté de roseaux et bassin d'aération de la file eau (premier plan) du site Hs

4.8.2. Stratégie d'échantillonnage

Dans l'objectif de suivre l'évolution de la boue au cours du temps, des prélèvements de boues ont été réalisés sur deux horizons d'un des lits de séchage (le n°6), sur une même verticale située à 2 m du point d'alimentation, et 2 mètres du bord.

Deux campagnes d'échantillonnage ont été réalisées, au cours desquelles deux échantillons de boues pâteuses ont été prélevés, comme indiqué dans la Figure 31. En décembre 2010 où la hauteur de boue était de 50 cm, les prélèvements ont été réalisés à 25 cm et 45 cm de profondeur ; en septembre 2012 où la hauteur de boue était de 60 cm, les prélèvements ont été effectués à 35 et 55 cm de profondeur, en vue d'analyser la composition de boue de 2010, plus vieille de 21 mois.

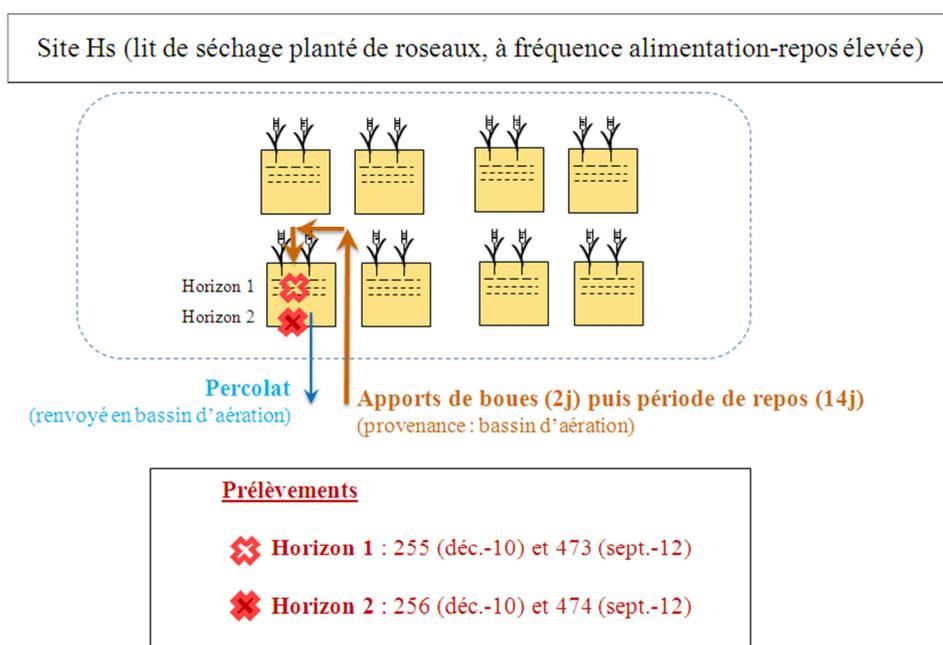


Figure 31 : Points de prélèvement du site Hs (LSPR à fréquence alimentation-repos élevée)

4.8.3. Estimation des rendements d'élimination

Les bilans matières ne sont pas faisables pour ce type de procédé. Pour estimer l'élimination des micropolluants (notée R_s), nous avons calculé la modification des concentrations pour chaque horizon entre décembre 2010 et septembre 2012 (Figure 32).

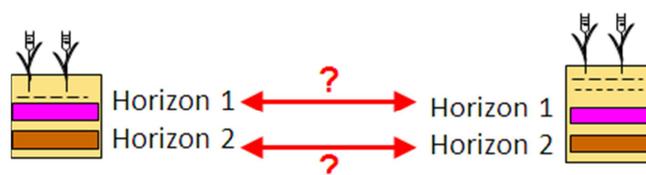


Figure 32 : Représentation des comparaisons de concentrations effectuées

4.9. Site Is (lit de séchage planté de roseaux à faible fréquence alimentation-repos)

4.9.1. Description du site

Le site Is est équipé de 8 lits de séchage plantés de roseaux situés sur une STEU boues activées fonctionnant à 50% de sa charge nominale de 13000 équivalents-habitants. Une photo est présentée Figure 33.

Le réseau de la STEU est unitaire, et la charge admise comprend des matières de vidange (<10% de la charge nominale). Le lit étudié est soumis à une charge de 50 kg MS/m².an, au rythme de 2 semaines d'alimentation et 14 semaines de repos.



Figure 33 : Lit de séchage de boues planté de roseaux et bassin d'aération de la file eau (arrière-plan) du site Is

4.9.2. Stratégie d'échantillonnage

Dans l'objectif de suivre l'évolution de la boue au cours du temps, des prélèvements de boues ont été réalisés sur deux horizons d'un des lits de séchage. Dans chaque horizon, des prélèvements individuels ont été collectés sur trois verticales situées à une distance de 2 m, 4 m et 6 m d'un point d'alimentation. Les trois échantillons individuels collectés à la même profondeur ont ensuite été mélangés pour constituer un échantillon représentatif de l'horizon étudié.

Deux campagnes d'échantillonnage ont été réalisées, au cours desquelles deux échantillons de boues pâteuses ont été constitués, comme indiqué dans la Figure 34. En décembre 2010 où la hauteur de boue était de 60 cm, les prélèvements ont été réalisés à 30 cm et 55 cm de profondeur ; en septembre 2012, où la hauteur de boue était de 70 cm, les prélèvements ont été effectués à 45 et 65 cm de profondeur, en vue d'analyser la composition de la boue de 2010, plus vieille de 21 mois. Lors de cette deuxième campagne, le lit n'avait pas été alimenté depuis 4 mois, en vue de son curage, et épandage agricole.

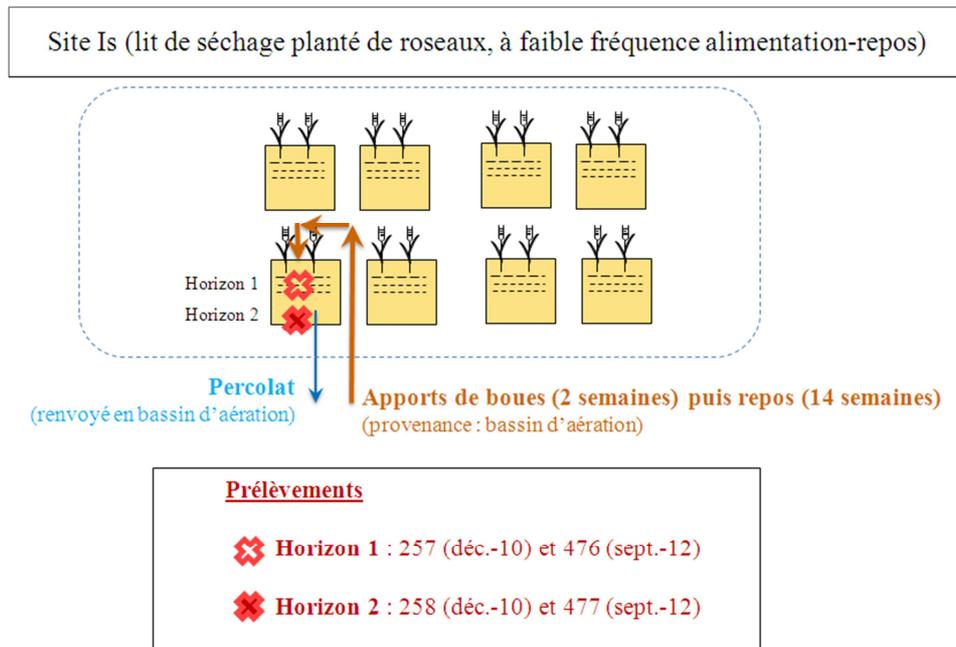


Figure 34 : Points de prélèvement du site Is (LSPR à faible fréquence alimentation-repos)

4.9.3. Estimation des rendements d'élimination

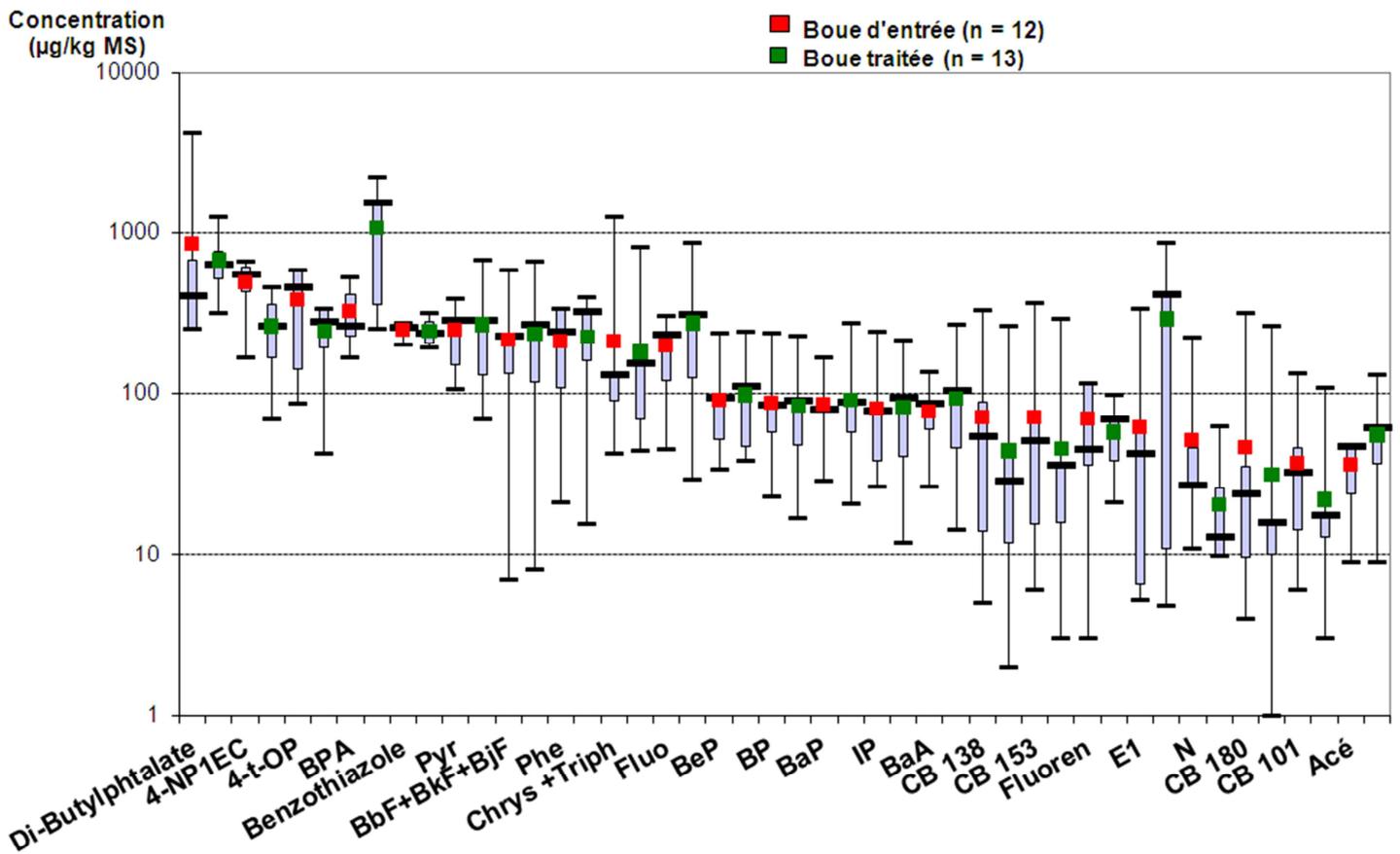
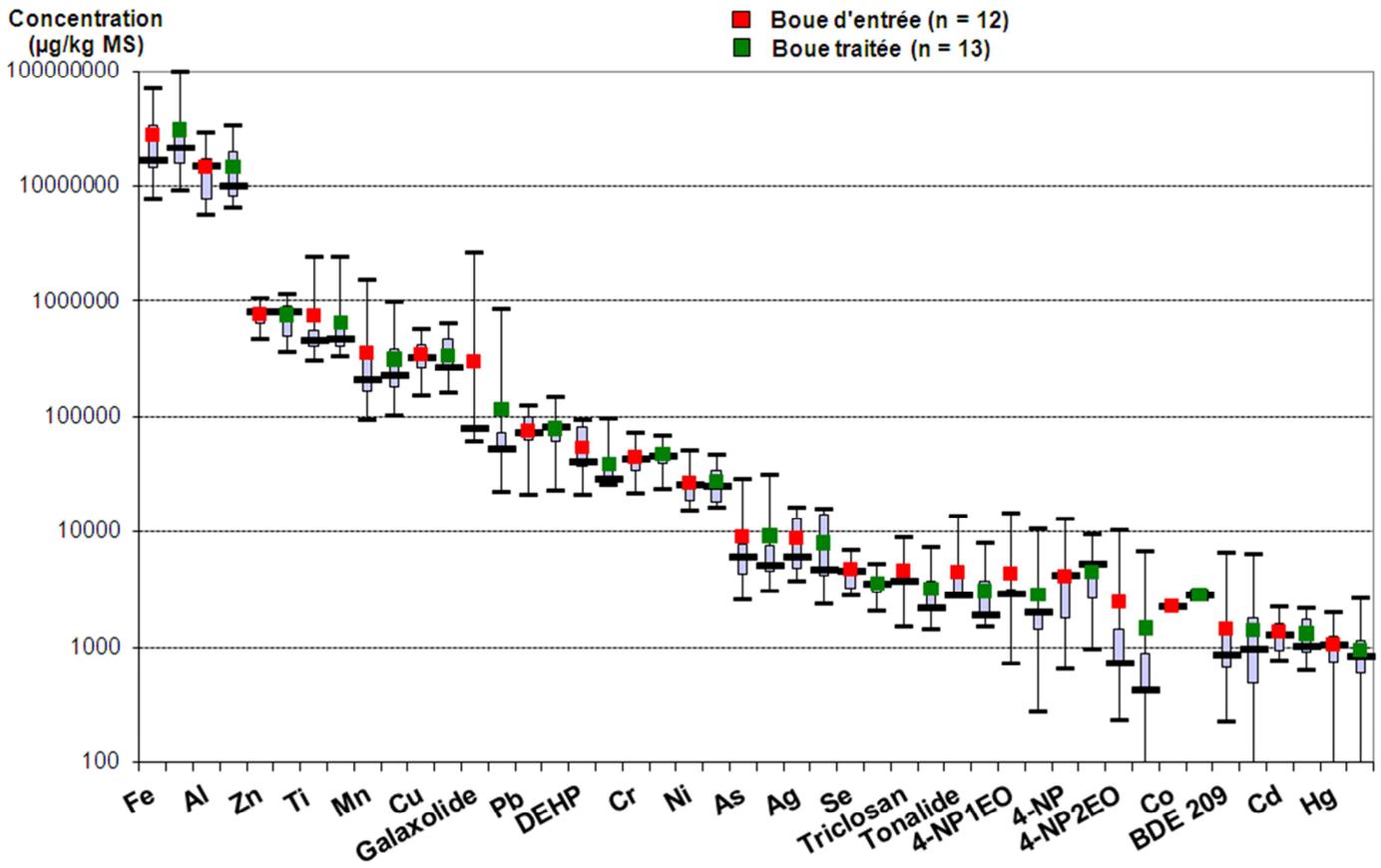
Comme pour l'installation Hs, les bilans matières ne sont pas faisables. Nous avons déterminé l'élimination des micropolluants (Rs) en calculant la modification des concentrations pour chaque horizon, entre décembre 2010 et septembre 2012 (Figure 32).

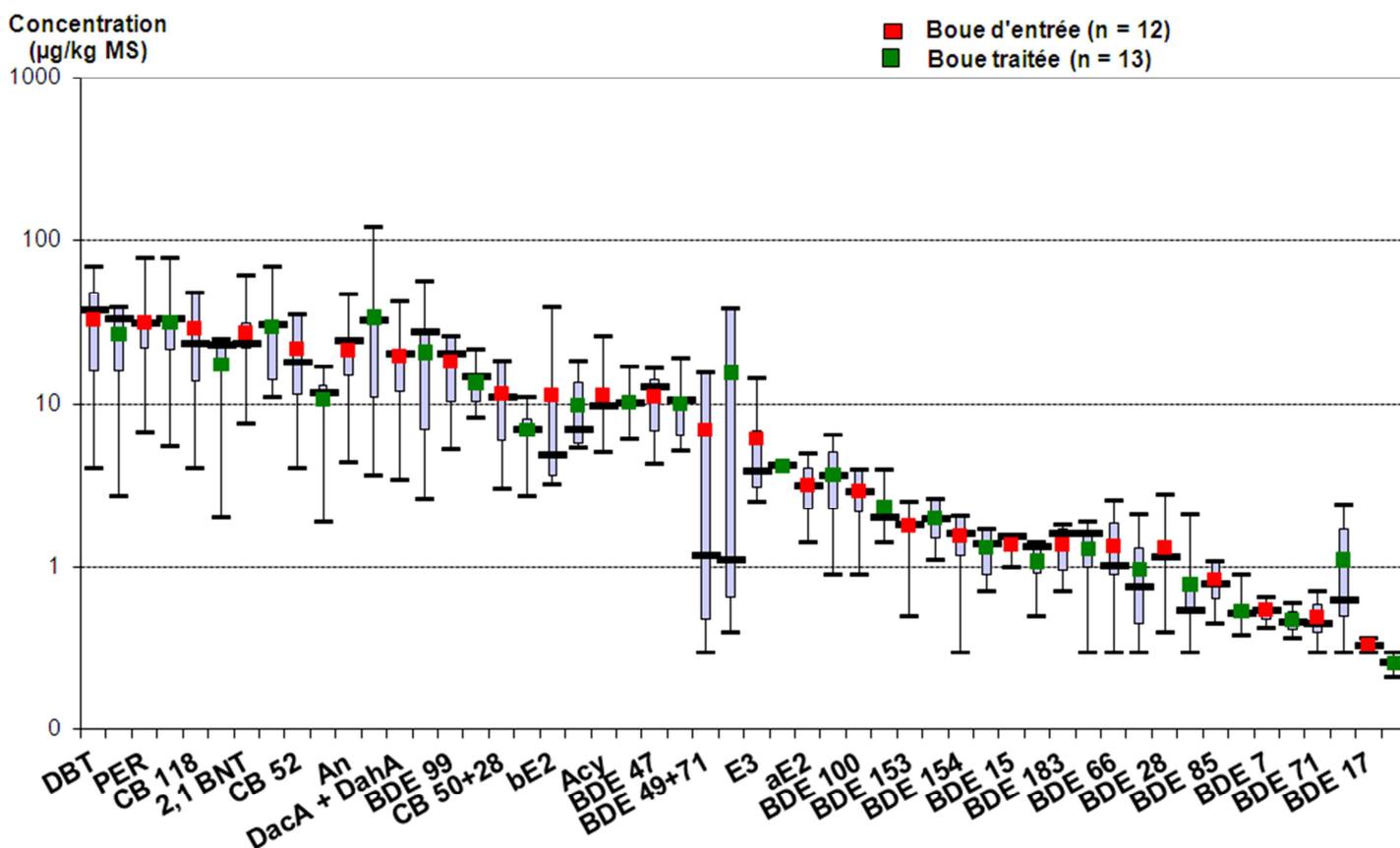
5. Concentrations en micropolluants dans les boues, les déchets verts et les condensats

5.1. Concentrations dans les boues en entrée et sortie de traitement

La Figure 35 présente les valeurs de concentrations en micropolluants mesurées dans les boues d'entrée en rouge (12 échantillons) et dans les boues traitées en vert (13 échantillons), avec un graphique sous forme de boîte à moustaches. On observe que les micropolluants sont retrouvés dans les mêmes catégories logarithmiques de concentrations pour la plupart des échantillons de boues (le mercure par exemple est toujours retrouvé entre 100 et 1000 µg/kg MS). Les niveaux de concentrations sont le plus souvent comparables entre boues d'entrée et de sortie.

Le 17α éthinylestradiol, le terbutylphénol et le pentachlorophénol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de boues d'entrée ou de boue traitée, c'est pourquoi ils n'apparaissent pas dans cette figure. Les BDE 206, 207 et 208 n'ont été quantifiés que dans un échantillon de boue. Ils n'ont donc pas non plus été inclus dans cette figure.





Moyenne en rouge ■ pour les boues d'entrée et en vert ■ pour les boues traitées, le rectangle bleu représente les premiers et troisièmes quartiles, la médiane ainsi que le maximum et le minimum sont représentés par -

Figure 35 : Concentrations en micropolluants dans les boues d'entrée (rouge) et dans les boues traitées (vert), échelle logarithmique

5.2. Concentrations dans les déchets verts

Pour les installations de compostage (sites Es, Fs et Gs), il est intéressant de comparer l'apport en micropolluants par les boues et les déchets verts, puisque ceux-ci sont mélangés pour produire du compost.

Pour toutes les familles de micropolluants analysées, excepté les HAP, les concentrations en micropolluants sont nettement inférieures dans les déchets verts et les refus de criblage à celles de la boue brute. La Figure 36 présente l'exemple des concentrations en PCB moyennes pour les sites Es, Fs et Gs. L'apport en micropolluants dans le compost est donc majoritairement dû aux boues et non aux déchets verts ou aux refus de criblage.

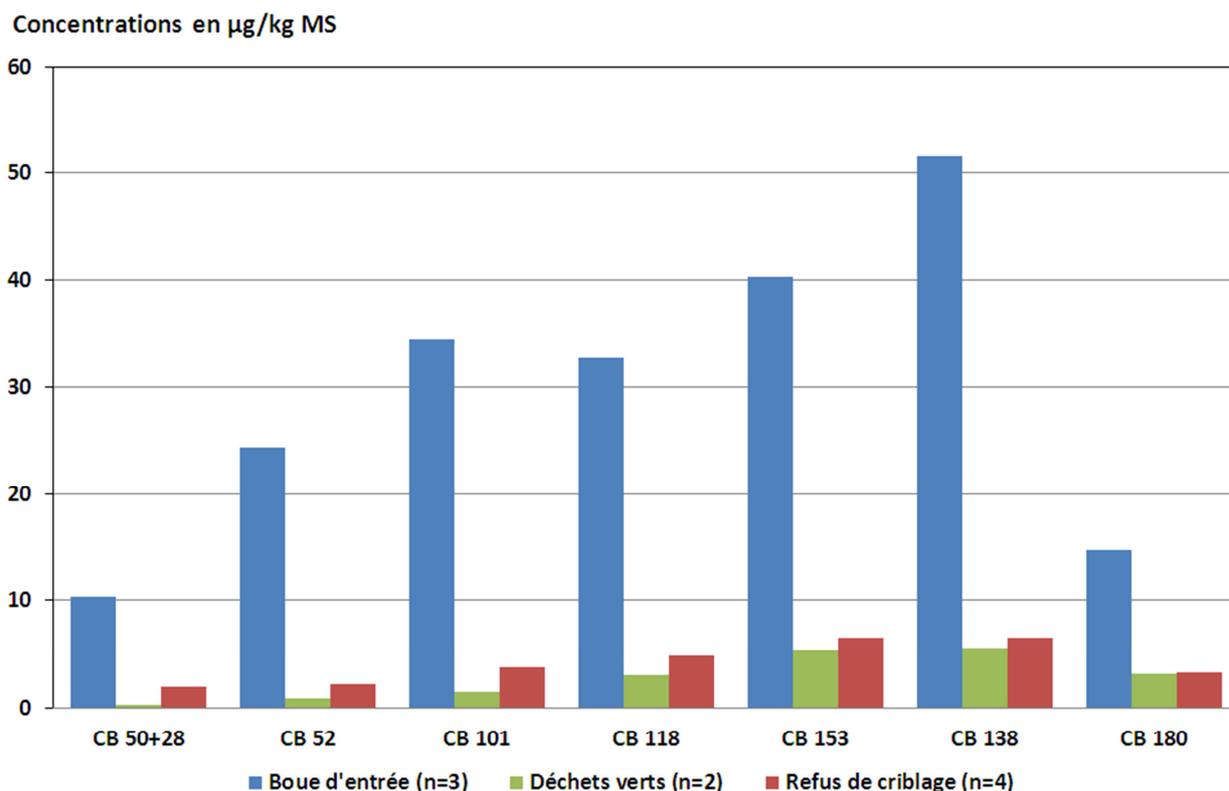


Figure 36 : Comparaison des concentrations moyennes en PCB dans les boues d'entrée, les refus de criblage et les déchets verts (sites Es, Fs et Gs)

En revanche, en ce qui concerne la plupart des HAP étudiés, des concentrations similaires à celles des boues sont retrouvées dans les déchets verts et les refus de criblage (Figure 37). De nombreuses études ont démontré que les plantes peuvent accumuler les HAP lorsqu'elles poussent dans des environnements urbains (De Nicola *et al.*, 2005) ou sur des sols ou des sédiments contaminés par les HAP (Watts *et al.*, 2006). Pour les HAP, une partie de la charge en micropolluants vient donc des déchets verts et pas uniquement des boues de STEU.

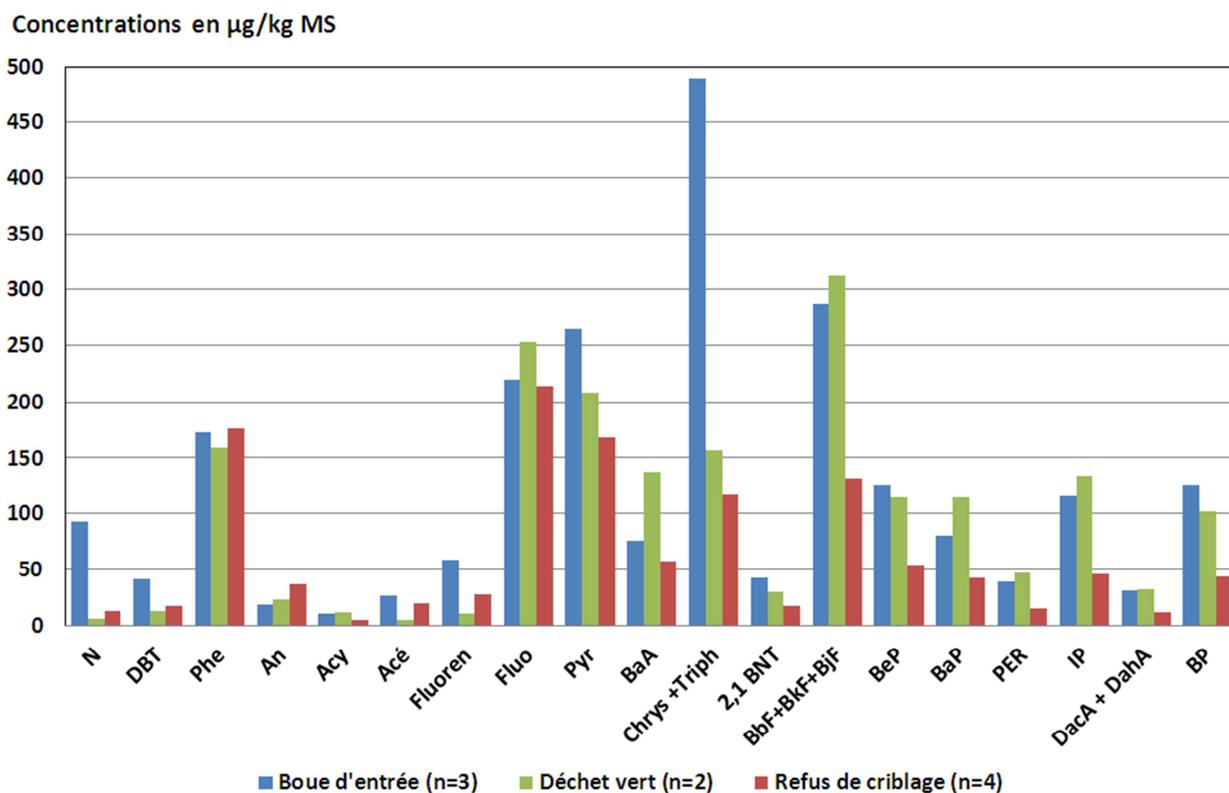


Figure 37 : Comparaison des concentrations moyennes en HAP dans les boues d'entrée, les refus de criblage et les déchets verts

5.3. Concentrations dans les condensats

Tous les micropolluants analysés n'ont pas été quantifiés dans les échantillons de condensats (sites As, Bs, Ds, Es, Fs, 7 échantillons). Hg, hormones, CB 50+28, CB 118, tous les PBDE excepté les BDE 47 et 99 et 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 en micropolluants sont présentées dans la Figure 38 pour les condensats.

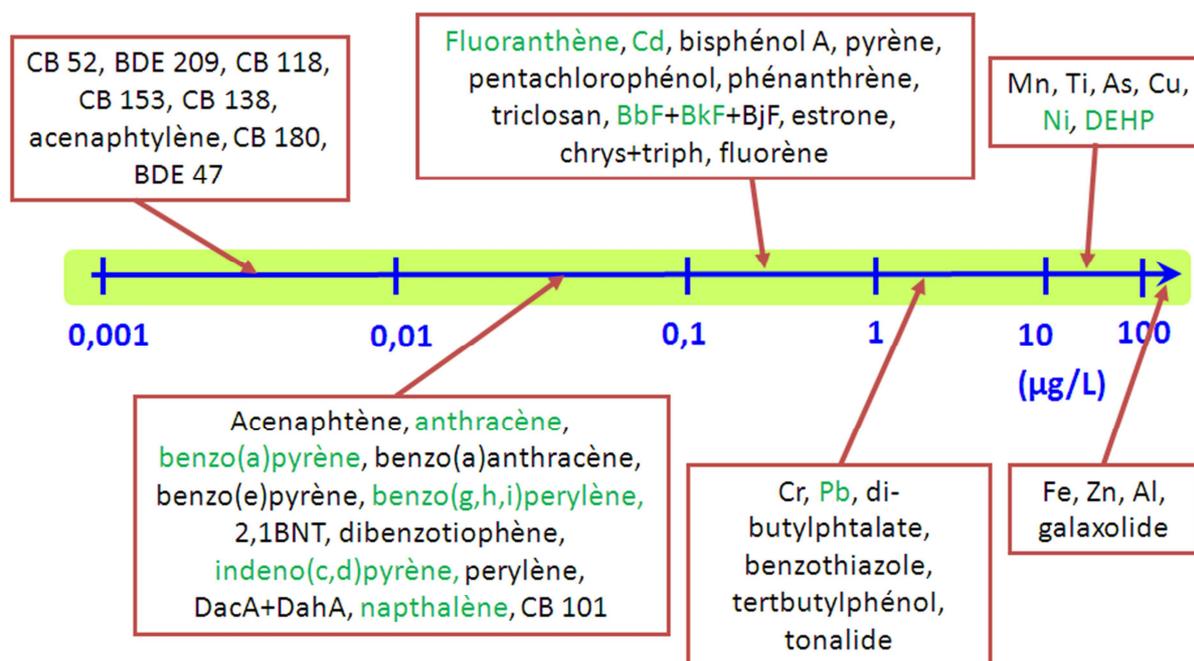


Figure 38 : Concentrations moyennes en micropolluants dans les condensats (en vert, substances prioritaires de la DCE)

6. Evaluation technique sur les performances d'élimination des micropolluants par les procédés de traitement des boues

6.1. Fonctionnement des installations pendant les campagnes

Le sécheur haute température (site As) a fonctionné correctement pendant la campagne d'échantillonnage mais l'un des sécheurs (ligne 2) a été arrêté à plusieurs reprises à cause de problèmes de bourrage de la vis d'extraction en sortie du sécheur. La boue d'entrée de la ligne 1 avait une siccité de 20% et celle de la ligne 2 de 36%. Après séchage, ces deux boues ont atteint respectivement 91% et 98% de siccité. Le pourcentage de matière volatile est resté autour de 60% pour la ligne 1 et de 65% pour la ligne 2.

Le sécheur basse température (site Bs) a fonctionné correctement pendant la campagne, il est resté en opération 24h sur 24. La boue avait une siccité d'environ 32% en entrée du sécheur et a atteint 90% de siccité en sortie. Le pourcentage de matière volatile est resté autour de 67%.

Le sécheur solaire (site Cs) a fonctionné correctement pendant la campagne. Comme le montre la Figure 39, la boue avait une siccité de 24% au début du séchage et a atteint 87% de siccité au bout de 27 jours. La campagne a été effectuée pendant une période de beau temps, ce qui explique ce temps de séjour assez court. Le pourcentage de matière volatile est resté autour de 75% pendant le séchage.

Les trois installations de séchage des boues ont permis d'atteindre une siccité supérieure à 85% pour toutes les boues traitées. La siccité la plus élevée a été obtenue avec le sécheur haute température.

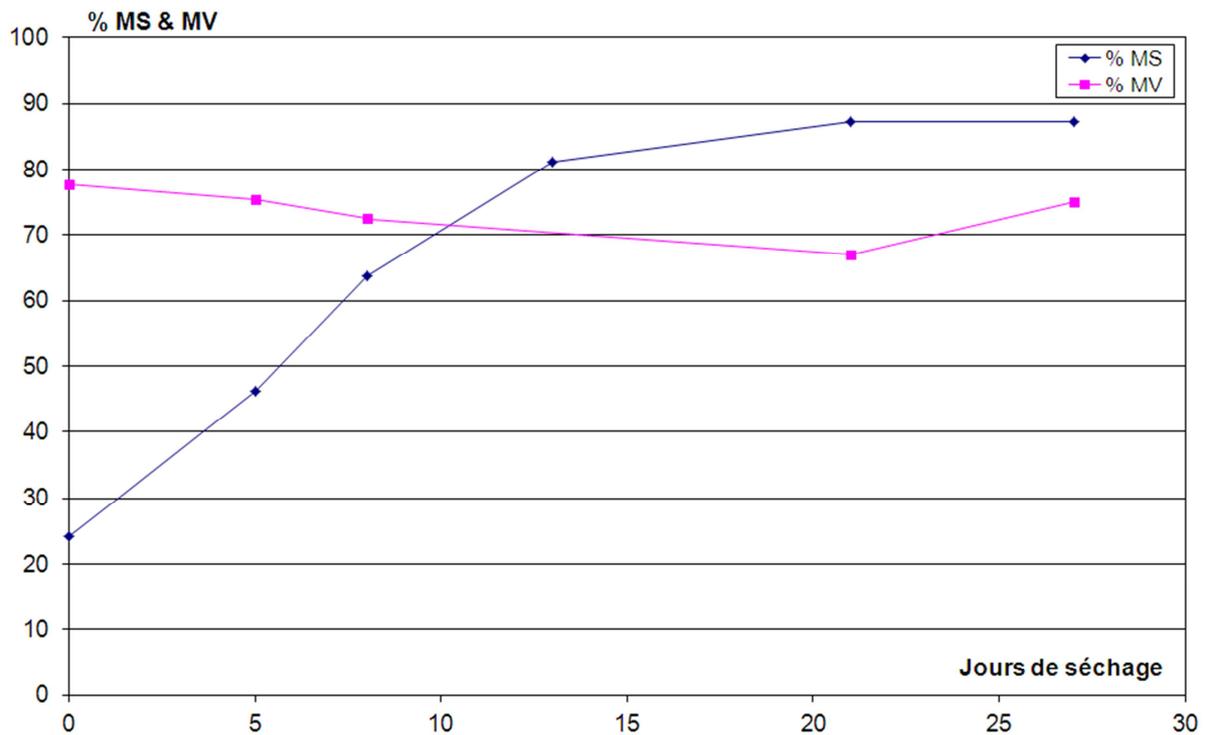


Figure 39 : Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) en séchage solaire (Cs)

La digestion anaérobie (site Ds) a fonctionné correctement pendant la campagne d'échantillonnage (élimination des matières volatiles autour de 49%), malgré le fait qu'elle ait été alimentée par une charge élevée et que le temps de séjour ait été réduit (20 jours) par rapport à la valeur habituelle (30 jours).

Le compostage tunnels (site Es) a fonctionné correctement pendant la campagne d'échantillonnage. La durée du compostage était normale pour le site (un mois). Le contenu en matière sèche et en matière volatile a été analysé sur chaque échantillon prélevé. Les résultats sont présentés sur la Figure 40. Il n'y a pas de dégradation des matières volatiles (MV) car c'est une boue qui a déjà été digérée. Une dégradation des MV s'est faite préalablement pendant la digestion anaérobie.

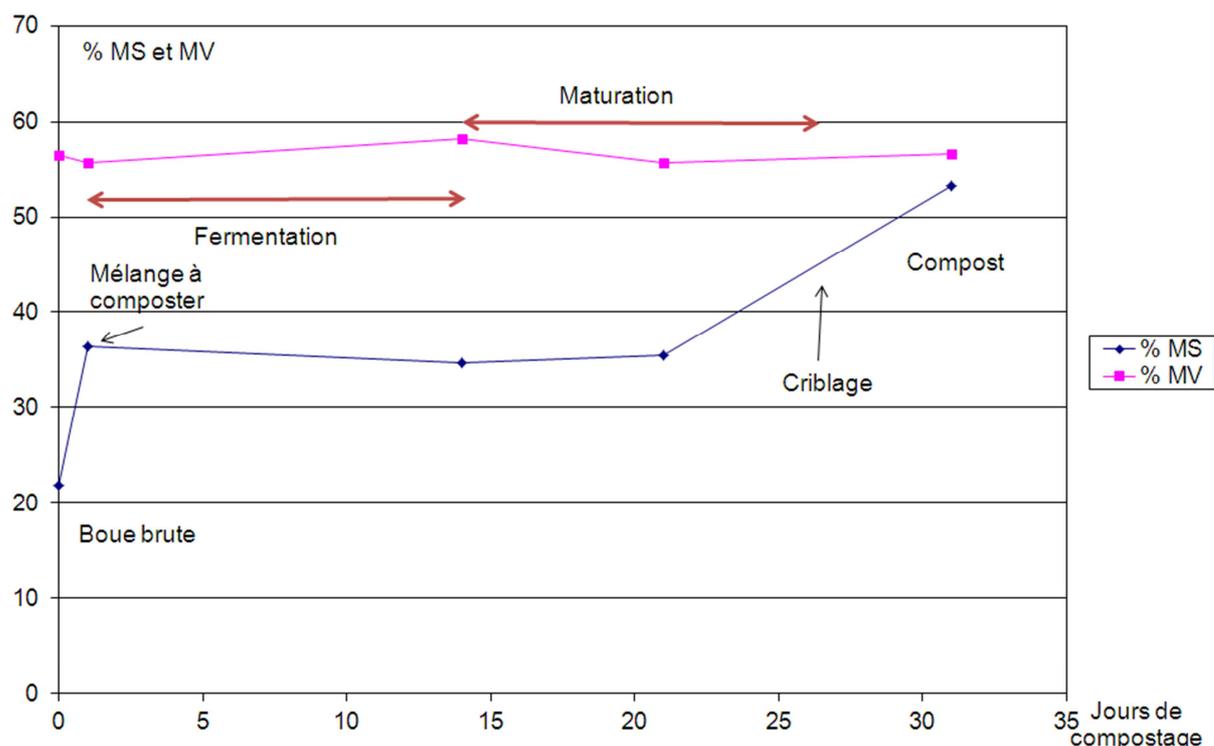


Figure 40 : Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) en compostage (site Es)

Le compostage casiers (site Fs) a fonctionné correctement pendant la campagne d'échantillonnage. La durée du compostage était normale pour le site (deux mois). Les refus de criblage recueillis en fin de fermentation sont un peu trop secs (64 % MS) et la production de compost est relativement faible (50 % des boues brutes) avec un criblage à 30 mm. Le contenu en matière sèche et en matière volatile a été analysé sur chaque échantillon prélevé. Les résultats sont présentés sur la Figure 41. Le contenu en matière sèche est trop élevé dans le mélange à composter (54 % MS). Ceci est probablement dû à un échantillon trop hétérogène, qui ne doit donc pas être pris en compte. Par ailleurs, le contenu en matière sèche est réduit au début de la fermentation ce qui n'est pas possible sauf si le mélange de compostage a été noyé par la pluie. Comme ce compostage était réalisé sous un toit, ceci démontre que l'échantillon du mélange de compostage n'est pas représentatif du procédé. Cet échantillon n'a donc pas été considéré dans l'exploitation des résultats.

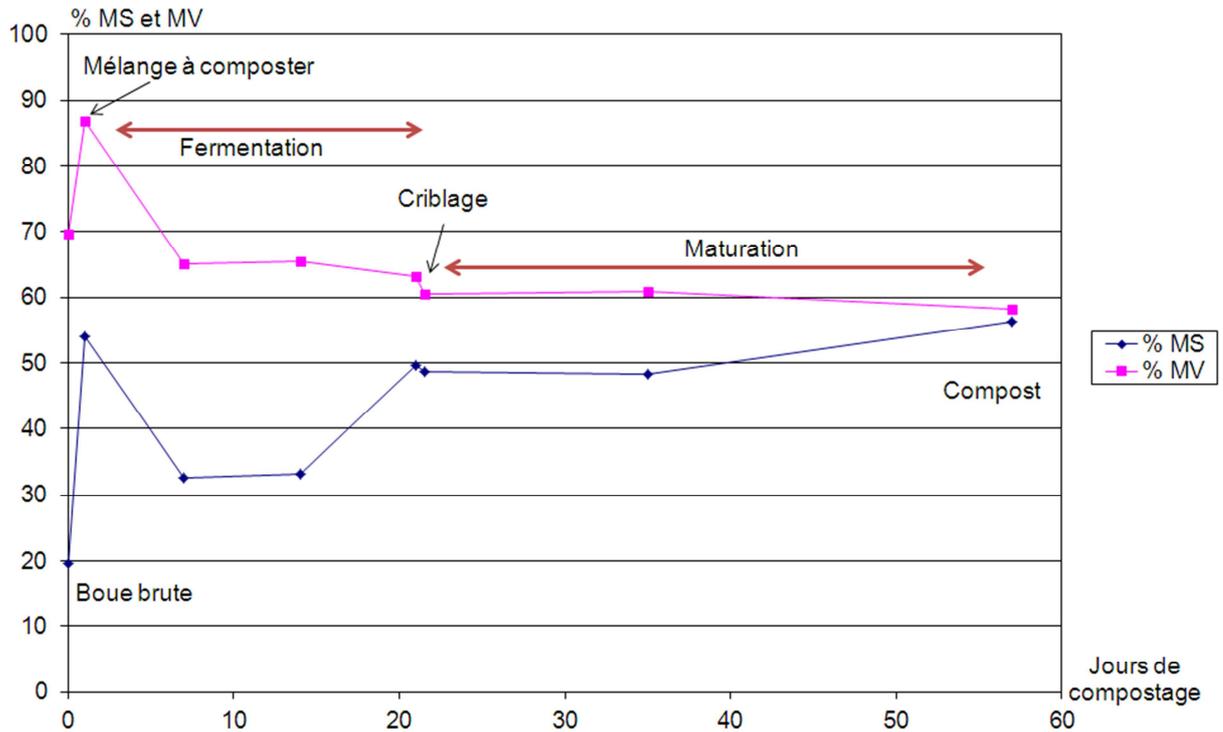


Figure 41 : Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) pendant le compostage (site Fs)

Le compostage en andains (site Gs) a fonctionné correctement pendant la campagne d'échantillonnage. La durée du compostage était un peu courte pour le site (50 jours) mais la campagne a été menée au cours de l'été avec un temps plutôt sec et chaud. Le compostage dure généralement deux à trois mois sur le site Gs. Le contenu en matière sèche et en matière volatile a été analysé sur chaque échantillon prélevé. Les résultats sont présentés sur la Figure 42. La production de compost est très élevée (1,15 tonne de compost par tonne de boues traitées) mais ceci s'explique par la consommation de déchets verts qui est également élevée. Le compost final est très sec (63 % MS).

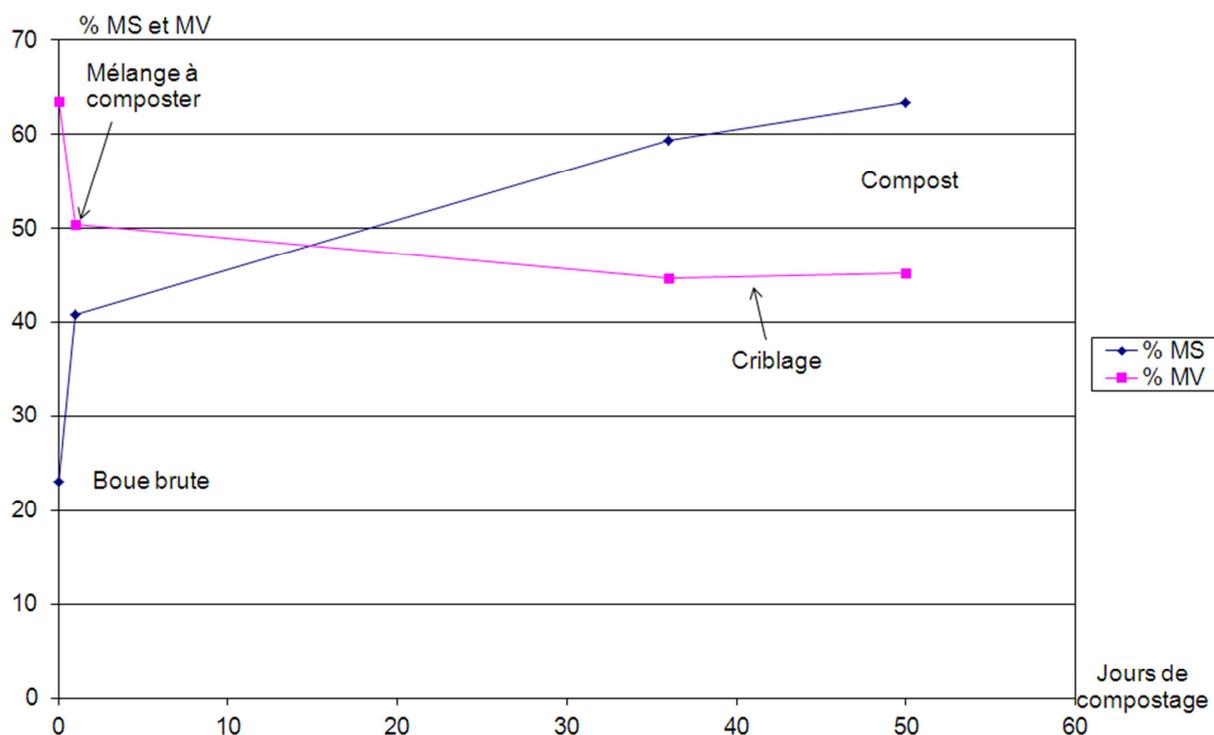


Figure 42: Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) pendant le compostage (site Gs)

Les derniers sites étudiés sont les lits de séchages plantés de roseaux. Pour le site Hs, dont le rythme d'alimentation-repos était élevé, l'horizon 1 a évolué de 7% MS (66% MV) à 10% MS (65% MV) entre les deux campagnes de prélèvement. L'horizon 2 (fond du lit) a évolué de 7% MS (63% MV) à 16% MS (58% MV). L'épaisseur de boue a augmenté de 50 à 60 cm entre les deux campagnes de prélèvements. Lors de la première campagne, la boue était presque liquide et insuffisamment aérée.

Pour le site Is, dont le rythme d'alimentation-repos était faible, l'horizon 1 a évolué de 12% MS (60% MV) à 47% MS (59% MV). L'horizon 2 (fond), est passé de 21% MS (60% MV) à 58% MS (50% MV) entre les deux campagnes de prélèvement. L'épaisseur de boue a augmenté de 60 à 70 cm entre les deux campagnes de prélèvements. Les boues étaient très bien déshydratées et contenaient des vers de terre, témoignant d'un bon niveau d'oxygène.

6.2. Elimination des micropolluants

6.2.1. Devenir des micropolluants pendant le séchage

6.2.1.1. Métaux

Globalement, les métaux ne sont pas affectés (rendement Rs compris entre -30% et +30%) par le séchage thermique à haute ou à basse température, sauf le mercure. Certains métaux semblent s'accumuler dans les boues séchées (chrome, fer et arsenic) mais seulement pour le sécheur haute température. Le mercure est volatilisé dans le sécheur haute température mais pas dans le sécheur basse température. Le mercure est le seul métal dont la température d'ébullition est inférieure à 650 °C (357 °C) et le seul volatil à température ambiante. Les métaux ne sont pas non plus affectés par le séchage solaire.

6.2.1.2. Hormones

Les hormones sont présentes en concentrations très faibles, proches des limites de quantification (<15 ng/g MS), dans les boues d'entrée des sécheurs. C'est pourquoi peu de rendements d'élimination ont

pu être calculés pour les hormones. Le rendement d'élimination de l'estrone pour le sécheur haute température est proche de 0%, suggérant que cette molécule n'est pas affectée par le traitement thermique. Pendant le séchage solaire, le rendement d'élimination de l'estrone est d'environ 20% ; alors que le 17 α -éthinyloestradiol, l'estriol et le 17 α -estradiol n'ont jamais été quantifiées dans les échantillons de boue. Malgré les faibles concentrations, nous observons des concentrations qui décroissent légèrement pendant le séchage solaire pour 17 β -estradiol et estrone (Figure 43).

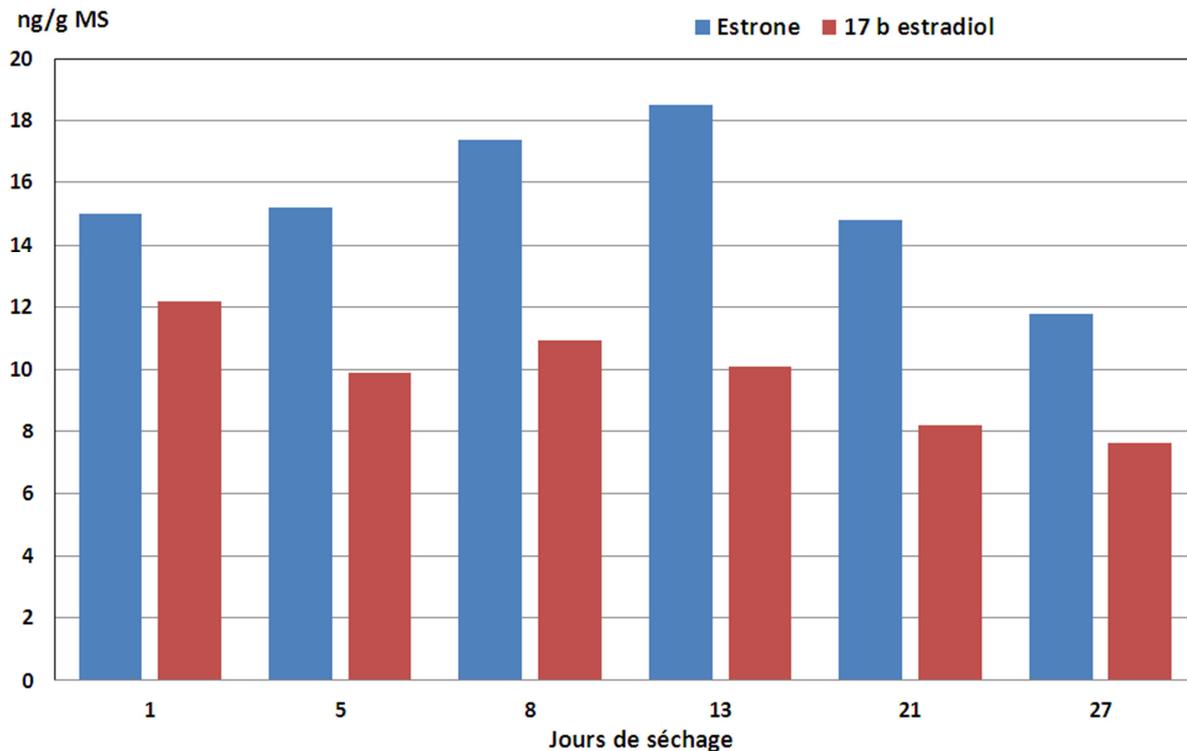


Figure 43 : Concentrations en hormones quantifiées dans les boues pendant le séchage solaire (site Cs)

6.2.1.3. HAP

Pour les HAP, les tendances varient entre les deux lignes de traitement du site As et les deux jours d'échantillonnage du site Bs. Pour le sécheur haute température (site As), les HAP sont partiellement éliminés de la boue de la ligne 2 ($R_s > 30\%$) alors qu'ils s'accumulent dans la ligne 1 ($R_s < -30\%$). Les concentrations en HAP dans la boue d'entrée de la ligne 2 étaient beaucoup plus basses que dans la ligne 1 (4 à 10 fois plus faibles) suggérant que la concentration initiale est un facteur important pour expliquer les rendements d'élimination dans les sécheurs. Certains HAP de faible poids moléculaire (naphtalène, acénaphthylène et acénaphthène) sont éliminés ($R_s > 30\%$) dans le sécheur haute température, quelle que soit leur concentration initiale. Ces HAP sont plutôt volatils (constante de Henry supérieure à $1 \text{ Pa}\cdot\text{m}^3\cdot\text{mol}^{-1}$). Amir *et al.* (2005) et Oleszczuk (2007) ont vérifié que les HAP de haut poids moléculaire ont une capacité d'adsorption sur la boue plus élevée que les HAP de faible poids moléculaire et par conséquent sont plus difficiles à éliminer de la boue. Dans le sécheur basse température, les HAP n'ont pas été affectés (jour 1) ou ont été partiellement éliminés ($R_s > 30\%$, jour 2) bien que les concentrations aient été similaires entre les deux jours. Seuls les HAP de faible poids moléculaire ont été éliminés par le séchage basse température (R_s de 30 à 60%).

Pendant le séchage solaire, globalement, tous les HAP (sauf 5, anthracène, 2,1 Benzo Naphtothiophène, Chrysène + Triphénylène, Benzo(b+j+k)Fluoranthène, et Benzo(e) Pyrène) sont retrouvés en concentrations plus faibles dans la boue séchée que dans la boue déshydratée (avant séchage).

6.2.1.4. Alkylphénols

Les nonylphénols mono et di-éthoxylates sont éliminés dans les deux sècheurs thermiques ainsi que dans le sécheur solaire (Rs 25 à 60%), de même que l'acide 4-nonylphénoxyacétique (Rs de 30 à 100%). Ces molécules sont facilement dégradées en nonylphénols qui se concentrent dans les boues traitées (Bennie *et al.*, 1998). Le séchage thermique haute température permet également de réduire les concentrations en octylphénols contrairement au séchage basse température et au séchage solaire.

6.2.1.5. PCB

Les PCB peuvent être partiellement éliminés lors du séchage thermique haute température (Rs 5 à 30%) mais le rendement d'élimination dépend de la concentration initiale en PCB. Les PCB sont retrouvés en concentrations plus élevées dans les boues de la ligne 2 que dans la ligne 1 (2 à 20 fois supérieures) et sont mieux éliminés dans la ligne 2 que dans la ligne 1. Excepté pour la somme des PCB 50+28 qui augmente pendant le traitement, les PCB ne sont pas affectés par le séchage basse température.

Excepté pour la somme des PCB 50+28, dont la concentration n'a pas varié au cours du traitement, les PCB sont globalement bien éliminés par le séchage solaire (Rs>50%). Il faut cependant remarquer que les PCB ont été mesurés en concentrations très faibles dans les boues du sécheur solaire (< 10 ng/g MS) et proches des limites de quantification contrairement aux concentrations mesurées dans les boues des sècheurs thermiques.

Selon Gibson *et al.* (2007), la volatilisation est le principal mécanisme de réduction des PCB dans les boues. La biodégradation des PCB est possible avec un phénomène de déchloration selon l'INERIS (2005). C'est la position des atomes de chlore qui détermine les possibilités de biodégradation.

6.2.1.6. PBDE

Les concentrations en PBDE dans les boues des sècheurs sont faibles (<10 ng/g MS), excepté pour le BDE 209. Lors du séchage solaire, on peut observer une augmentation de la concentration des PBDE de faible poids moléculaire dans les boues, tandis que les PBDE de haut poids moléculaire sont volatilisés ou plus probablement transformés en congénères de plus faible poids moléculaire (Figure 44).

Pour le séchage thermique en revanche, il n'y a pas de tendance claire.

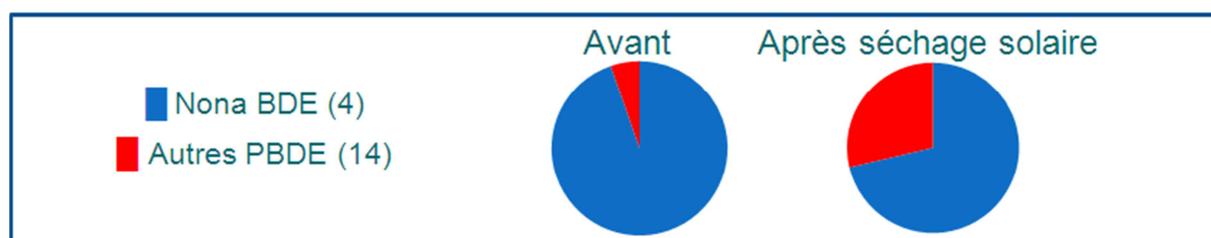


Figure 44 : Proportion de PBDE lourds/légers avant et après le séchage solaire

6.2.1.7. Autres substances

Le galaxolide et la tonalide (muscs synthétiques), qui sont des molécules semi-volatiles, sont éliminés de manière significative (Rs de 35 à 65%) des boues lors du séchage haute température (site As), mais ne sont pas affectés par le séchage basse température (site Bs). Le triclosan et le benzothiazole sont partiellement éliminés (Rs de 15 à 25%) par le séchage basse température, alors qu'ils ne sont pas affectés par le séchage haute température ou se concentrent dans les boues ; ce qui peut s'expliquer en partie par les concentrations de benzothiazole et de triclosan plus faibles dans les boues en entrée du site As que dans les boues en entrée du site Bs. Le DEHP et le bisphénol A se concentrent dans les boues lors du séchage thermique. Excepté la tonalide partiellement éliminée (Rs =20%), les autres substances ne sont pas affectées (galaxolide, triclosan) ou ont eu tendance à se concentrer dans les boues (DEHP, bisphénol A et di-butylphtalate) en sortie de séchage solaire.

6.2.2. Devenir des micropolluants pendant la digestion anaérobie

6.2.2.1. Métaux

La concentration en métaux augmente après la digestion anaérobie par rapport à celle des boues flottées à l'entrée. Par conséquent, le rendement d'élimination des métaux (sauf le mercure) dans les boues est toujours légèrement négatif dans la digestion anaérobie. Ce résultat est en accord avec ceux d'études précédentes (Camacho *et al.*, 2010 par exemple). Karvelas *et al.* (2003) ont démontré que l'augmentation des teneurs en métaux dans les boues digérées est due à la réduction de matière organique au cours de la digestion anaérobie (environ 35 % du contenu en matière sèche dans les boues). Cette réduction entraîne une concentration des métaux qui restent adsorbés dans la fraction particulaire. Le mercure, qui est le métal le plus volatile, peut passer en partie dans la phase gazeuse puis se condenser, ce qui explique qu'il ne s'accumule pas dans les boues digérées.

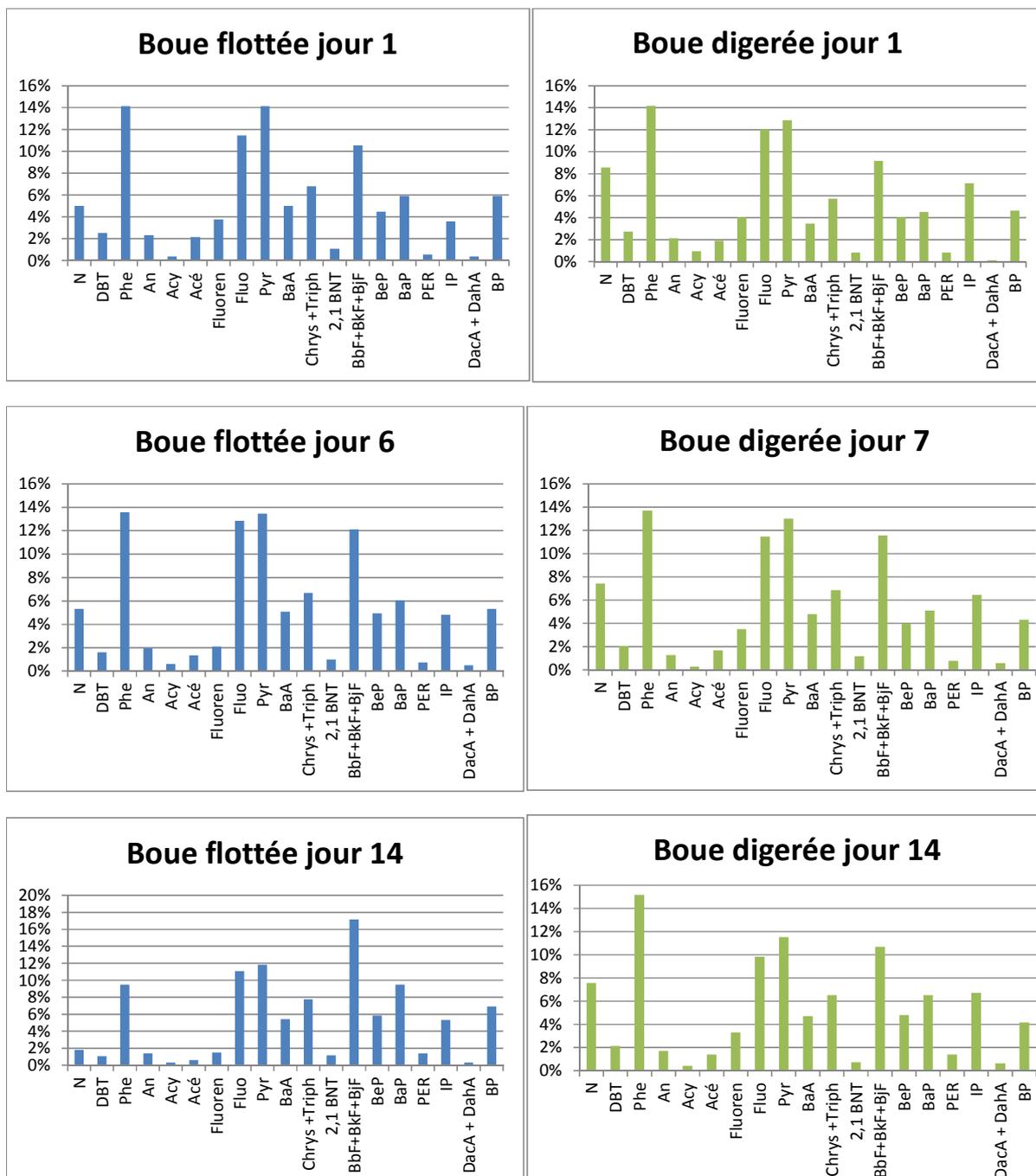
6.2.2.2. Hormones

Les hormones sont présentes à des concentrations faibles (< 60 ng/g MS) dans les boues flottées et dans les boues digérées. Le 17 α -éthinyloestradiol et le 17 α -estradiol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de boue de la digestion anaérobie (LQ respectivement de 5 et 10 ng/g MS). Les concentrations de toutes les hormones étaient plus élevées en sortie de DA, mais comme les valeurs sont très faibles, aucune tendance nette ne peut être observée.

6.2.2.3. HAP

Le comportement des HAP est variable. Les HAP de faible poids moléculaire (naphtalène, dibenzothiophène, phénanthrène, acénaphthylène, acénaphtène) semblent s'accumuler dans les boues, alors que certains HAP de haut poids moléculaire sont partiellement éliminés des boues. Le rendement d'élimination du benzo(a)anthracène, du benzo(b+j+k)fluoranthène, du benzo(e)pyrène, du benzo(a)pyrène et du benzo(ghi)pérylène dans les boues est supérieur à 30 % (Rs de 30 à 45%). Cependant, Amir *et al.* (2005) et Oleszczuk (2007) ont démontré que la capacité d'adsorption sur les boues des HAP à poids moléculaire élevé est supérieure à celle des HAP à poids moléculaire faible. Par conséquent, les HAP à poids moléculaire élevé sont plus difficiles à éliminer des boues. Bernal-Martinez *et al.* (2005) ont également observé une élimination pouvant atteindre 50 % pour certains HAP avec la digestion anaérobie.

La Figure 45 représente le pourcentage de chaque HAP par rapport à la concentration totale des 19 HAP analysés dans les 6 échantillons prélevés en entrée (boue flottée) et en sortie (boue digérée) du procédé de traitement par DA. La répartition est très semblable entre les 3 échantillons prélevés à l'entrée et les 3 échantillons prélevés à la sortie, contrairement à ce qui est observé au cours du compostage (Cf. paragraphe 6.2.3.3).



Ordre des HAP : Naphtalène, dibenzothiophène, phénanthrène, anthracène, acenaphthylène, acenaphène, fluorène, fluoranthène, pyrène, benzo(a)anthracène, triphénylène, chrysène + triphénylène, 2,1 benzo-naphtothiophène, benzo(b+j+k)fluoranthène, benzo(e)pyrène, benzo(a)pyrène, perylène, indeno(c-d)pyrène, dibenzo(a,h + a,c)anthracène, benzo(ghi)perylène

Figure 45 : Profil des HAP lors de la digestion anaérobie (pourcentage des concentrations en HAP individuel par rapport à la somme des concentrations des 19 HAP analysés) en entrée (boue flottée) et en sortie (boue digérée) (site Ds)

6.2.2.4. Alkylphénols

Les nonylphénols monoéthoxylates et diéthoxylates sont éliminés au cours de la digestion anaérobie (Rs de 30 à 50%), alors que les 4-nonylphénols et le 4-ter-octylphénol s'accroissent dans les boues digérées. Selon Ahel *et al.* (1994) et Bennie *et al.* (1998), les alkylphénoléthoxylates se dégradent facilement en alkylphénols hydrophobes qui s'accroissent dans les boues traitées. Les concentrations

en 4-nonylphénols et en 4-ter-octylphénol sont 4 à 6 fois plus élevées dans les boues digérées (en sortie) que dans les boues flottées (en entrée).

6.2.2.5. PCB

Les PCB sont présents à faible concentration dans les boues flottées et dans les boues digérées (< 20 ng/g MS). A l'exception des composés avec les poids moléculaires les plus faibles (PCB 50+28 et PCB 52) qui s'accumulent dans les boues digérées, les PCB sont partiellement éliminés par la DA (Rs> 30 %). Le rendement d'élimination de la somme des PCB est de 40 %. Cependant, il semble que la digestion anaérobie ne dégrade pas les PCB mais les transforme en PCB de faible poids moléculaire.

6.2.2.6. PBDE

De manière comparable à ce qui se produit avec les PCB, les PBDE de faible poids moléculaire semblent s'accumuler dans les boues digérées, alors que ceux de haut poids moléculaire sont partiellement éliminés (Rs=33% pour BDE 209 par exemple). Cette tendance a été observée également dans le sécheur solaire. Cependant, les concentrations en PBDE à poids moléculaire faible sont très faibles dans les boues (< 15 ng/g MS pour les PBDE 7 à 183), c'est pourquoi peu de rendements sont calculables.

6.2.2.7. Autres

Le benzothiazole, le tertbutylphénol et le pentachlorophénol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de boues de la DA (LQ 200 ng/g MS).

Le DEHP, le di-butylphtalate et le triclosan sont partiellement éliminés pendant la DA (Rs respectivement 60 %, 40 % et 33 %). Contrairement à ce qui a été observé dans les études antérieures (Cheng *et al.*, 2000 ; Bright and Healey, 2003), les concentrations en DEHP diminuent de manière significative dans les boues digérées par rapport aux boues flottées (concentration moyenne de 66 179 ng/g MS versus 109 081 ng/g MS).

En revanche, les boues digérées contiennent des concentrations plus élevées en bisphénol A, galaxolide et tonalide que les boues flottées.

6.2.3. Devenir des micropolluants pendant le compostage

6.2.3.1. Métaux

Comme anticipé, les métaux ne sont globalement pas affectés par le compostage. A cause de la dégradation de la matière organique, le rendement d'élimination final est légèrement négatif (mais supérieur à -30%). Certaines éliminations ponctuelles ou accumulations sont observées mais elles ne se reproduisent pas pour les trois compostages. Cette conservation des métaux permet de confirmer que les bilans matière sont corrects.

6.2.3.2. Hormones

Le 17 α -éthinylestrodiol, l'estriol et le 17 α -estradiol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de boue de compostage (LQ respectivement de 5, 10 et 10 ng/g MS) (Tableau 8).

Tableau 8: Rendement d'élimination des hormones au cours du compostage

	Compostage tunnels (Site Es)	Compostage casier (site Fs)	Compostage andains (site Gs)
Estrone			
17 b estradiol		NC	NC
17 a ethinylestrodiol	NC	NC	NC
Estriol	NC	NC	NC
17 a estradiol	NC	NC	NC

Légende : ■ R<-30% ■ -30<R<30% ■ R >30%

NC: Non calculable

L'estrone a été quantifiée à des concentrations relativement faibles dans les boues brutes des compostages casiers et andains (5,6 et 67,4 ng/g MS), alors que sa concentration était beaucoup plus élevée (340 ng/g MS) dans les boues issues du compostage tunnels. Les concentrations en estrone sont toujours supérieures dans le compost à celles dans les boues brutes. Elles sont également élevées (> 300 ng/g MS) dans les échantillons de déchets de criblage. On observe une accumulation d'estrone pendant les procédés de compostage, en particulier tunnels et andains. En effet, l'estrone peut être un produit de dégradation d'autres hormones, en particulier le 17 β -estradiol (Yu *et al.*, 2007), et la dégradation du 17 β -estradiol par le compostage a effectivement été observée au cours du compostage tunnel.

6.2.3.3. HAP

Les HAP ont un comportement variable, et les tendances ne sont pas rigoureusement équivalentes entre les procédés de compostage (Tableau 9). Le naphtalène, le HAP à plus faible poids moléculaire, est éliminé (Rs=72% pour le compostage tunnels par exemple), alors que l'acénaphène s'accumule. Les HAP à poids moléculaire élevé sont éliminés dans le procédé de compostage en andains (Rs de 37 à 50 %) alors que d'après la littérature, ils sont plus difficiles à éliminer en raison de leur plus grande capacité d'adsorption sur les boues. Certains HAP s'accumulent dans les boues compostées, peut-être en raison de la réduction de matière due à la dégradation de la matière organique.

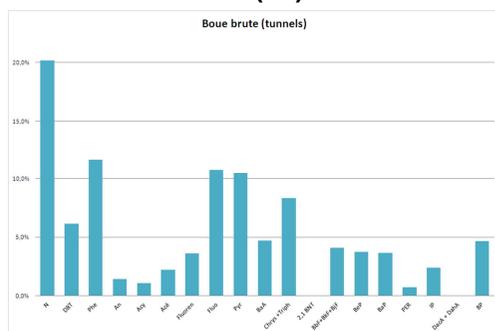
Tableau 9 : Rendement d'élimination des HAP au cours du compostage

Substance	Compostage tunnels (Site Es)	Compostage casiers (site Fs)	Compostage andains (site Gs)
N			
DBT			
Phe			
An			
Acy			
Acé			
Fluoren			
Fluo			
Pyr			
BaA			
Chrys +Triph			
2,1 BNT			
BbF+BkF+BjF			
BeP			
BaP			
PER			
IP			
DacA + DahA			
BP			

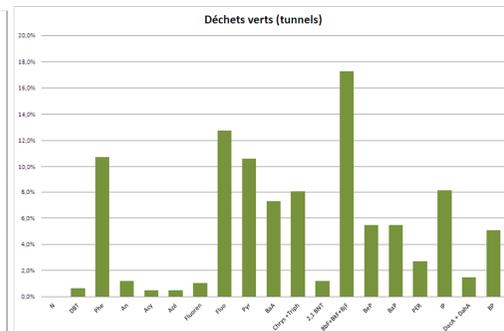
Légende : ■ R<-30% ■ -30<R<30% ■ R >30%

La Figure 46 représente le pourcentage de chaque HAP par rapport à la concentration totale des 19 HAP analysés dans les échantillons prélevés à l'entrée et à la sortie des procédés de compostage, ainsi que dans les échantillons de déchets verts ou refus de criblage (pour le site Fs casiers dans lequel il n'y a pas d'ajout de déchets verts) et dans les échantillons de mélange initial au début du compostage. La répartition est très différente dans les 3 échantillons de boues brutes prélevés à l'entrée. En effet, les boues brutes provenaient de STEU différentes avec des procédés de traitement des eaux usées et des origines variés. Cependant, la répartition dans la famille des HAP est très semblable entre les trois composts étudiés ainsi que dans les mélanges initiaux. La composition en HAP des déchets verts/refus de criblage est également assez proche. Le mélange des boues brutes avec des déchets verts ou des refus de criblage modifie donc la répartition des HAP. Ceci est cohérent avec l'observation faite précédemment de la concentration en HAP dans les déchets verts qui peut être du même ordre de grandeur que celle dans les boues.

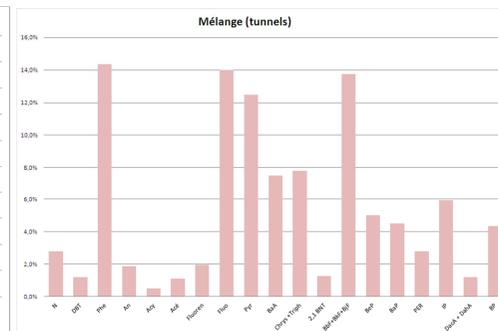
Boue brute Tunnels (Es)



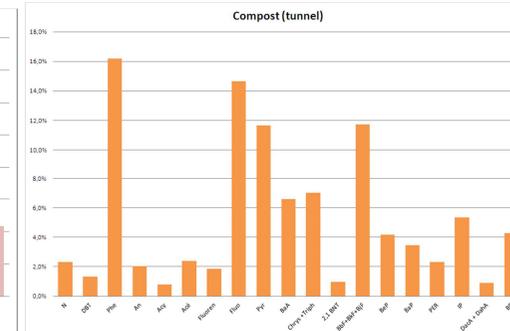
Déchets verts/refus de criblage



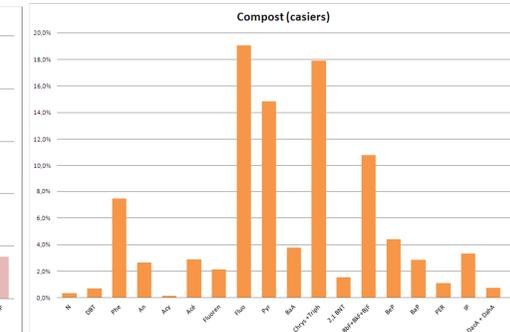
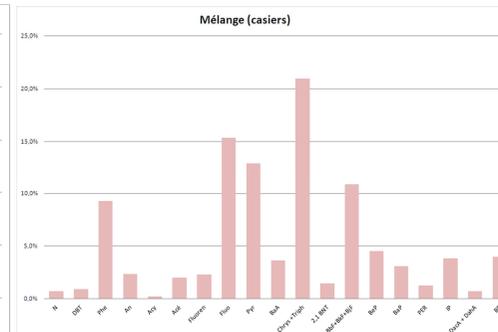
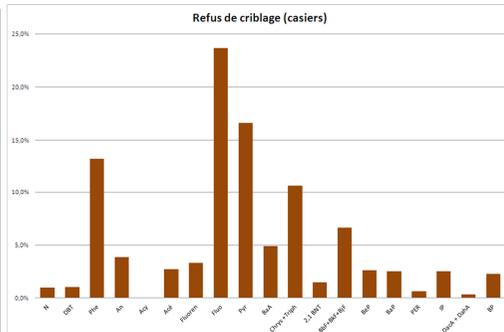
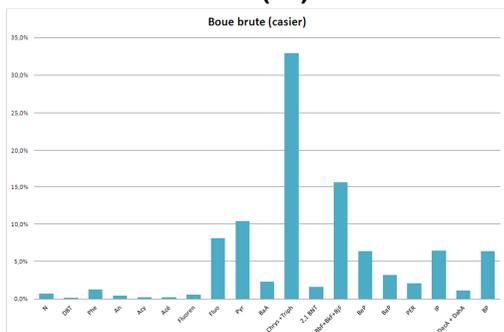
Mélange (début compostage)



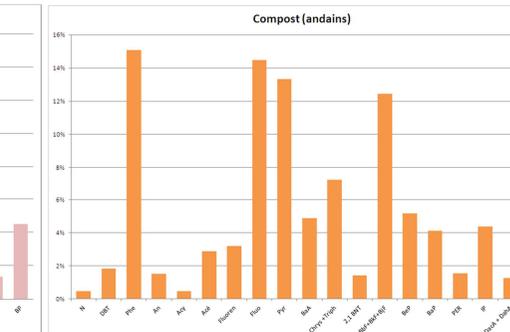
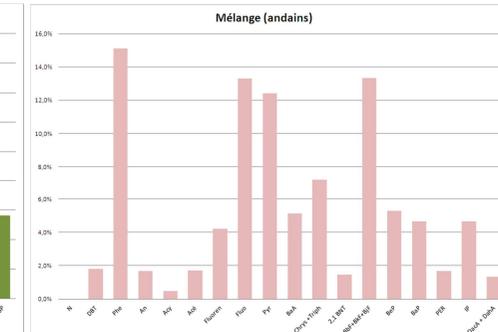
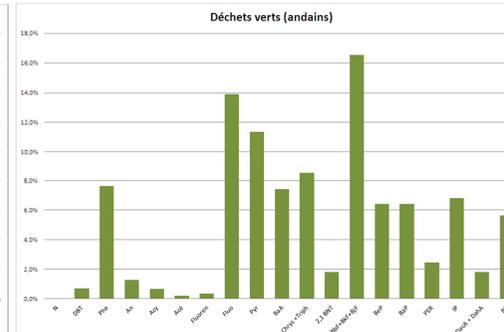
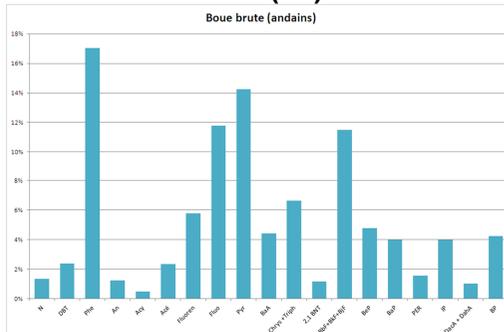
Compost



Casiers (Fs)



Andains (Gs)



Ordre des HAP : Naphtalène, dibenzothiophène, phénanthrène, anthracène, acénaphthylène, acénaphtène, fluorène, fluoranthène, pyrène, benzo(a)anthracène, chrysène + triphénylène, 2,1 benzo naphthothiophène, benzo(b+j+k)fluoranthène, benzo(e)pyrène, benzo(a)pyrène, perylène, indeno(c-d)pyrène, dibenzo(a,h + a,c)anthracène, benzo(ghi)perylène

Figure 46 : Répartition des HAP individuels (en %) dans le compostage par rapport à la concentration totale en HAP

6.2.3.4. Alkylphénols

Les nonylphénols monoéthoxylates et diéthoxylates, ainsi que les 4-nonylphénols, sont bien éliminés au cours du procédé de compostage casier et tunnel ($R_s > 50\%$) (Tableau 10). Le compostage casier n'a aucun effet sur le 4-ter-octylphénol. Selon Gibson *et al.* (2007) et Pakou *et al.* (2009), les procédés aérobies sont capables de dégrader les alkylphénoléthoxylates ainsi que les nonylphénols. Contrairement à la digestion anaérobie, uniquement efficace sur les alkylphénoléthoxylates, le compostage réduit également la concentration en nonylphénols dans les boues.

Pour le compostage en andains, une légère diminution de la concentration en alkylphénols est observée dans le compost par rapport à la boue d'entrée, mais cela résulte en une accumulation au final lorsque l'on prend en compte le mélange avec les déchets verts qui contiennent très peu d'alkylphénols.

Tableau 10 : Rendement d'élimination des alkylphénols au cours du compostage

Substance	Compostage tunnels (Site Es)	Compostage casiers (site Fs)	Compostage andains (site Gs)
4-NP1EO			
4-NP2EO			
4-NP			
4-t-OP		NC	
4-NP1EC	NC	NC	NC

Légende : ■ $R < -30\%$ ■ $-30 < R < 30\%$ ■ $R > 30\%$
 NC: Non calculable

6.2.3.5. PCB

La somme des concentrations en PCB augmente globalement au cours du compostage. Ceci peut s'expliquer par la réduction de matière due à la dégradation de la matière organique. Brandli *et al.* (2007) ont également observé une accumulation des PCB de faible poids moléculaire pendant le compostage.

Tableau 11 : Rendement d'élimination des PCB au cours du compostage

Substance	Compostage tunnels (Site Es)	Compostage casiers (site Fs)	Compostage andains (site Gs)
CB 50+28			
CB 52			
CB 101			
CB 118			
CB 153			
CB 138			
CB 180			

Légende : ■ $R < -30\%$ ■ $-30 < R < 30\%$ ■ $R > 30\%$

6.2.3.6. PBDE

Les PBDE semblent s'accumuler dans les boues compostées. Cette tendance est observée pour les trois types de compostage. Certaines éliminations ponctuelles de PBDE sont observées mais elles ne se reproduisent pas pour les trois compostages.

6.2.3.7. Autres substances

Le benzothiazole, le tertbutylphénol et le pentachlorophénol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de boues de compostage (LQ 200 ng/g MS).

Le DEHP est partiellement éliminé au cours du compostage, ce qui est cohérent avec la bibliographie. Le compostage casiers obtient la meilleure élimination, suivi du compostage tunnels (Rs 60 et 29 % respectivement). Aucune élimination du DEHP n'est observée pendant le compostage en andains. Selon Cheng *et al.* (2008), les conditions d'exploitation du procédé de compostage ont une influence sur la performance d'élimination du DEHP.

Pour les autres substances, on observe le même classement : casiers > tunnels > andains. La galaxolide, la tonalide, le di-butylphtalate et le triclosan sont bien éliminés par le compostage casiers (Rs de 30 à 70%). Ils sont partiellement éliminés par le compostage tunnels (Rs de 1 à 50%) et ils ne sont pas par le compostage en andains (Tableau 12). Un temps de séjour prolongé et un meilleur contrôle du procédé pourraient expliquer la meilleure performance du compostage casiers.

Dans tous les procédés de compostage, le bisphénol A s'accumule dans les boues compostées. La concentration en bisphénol A est également toujours plus élevée dans les déchets de criblage (x2) que dans les boues brutes.

Tableau 12 : Rendement d'élimination des autres substances au cours du compostage

Substance	Compostage tunnels (Site Es)	Compostage casiers (site Fs)	Compostage andains (site Gs)
Benzothiazole	NC	NC	NC
Terbutylphénol	NC	NC	NC
Galaxolide			
Tonalide			
Di-Butylphtalate			NC
Pentachlorophénol	NC	NC	NC
Triclosan			
DEHP			
BPA			NC

Légende : ■ R < -30% ■ -30 < R < 30% ■ R > 30%
NC: Non calculable

6.2.4. Devenir des micropolluants en lits de séchage planté de roseaux

On observe que le nombre de rendements calculables pour les lits de séchage plantés de roseaux (LSPR) est de 40 à 50, valeur inférieure à celle des autres procédés étudiés (parfois > 60). Cette situation provient du fait qu'un nombre important de substances ont des concentrations comprises entre LQ et 10xLQ, en entrée et en sortie, empêchant de calculer un rendement (cas 2.b de la Figure 40).

6.2.4.1. Métaux

Les rendements ont pu être calculés pour la quasi-totalité des métaux. Les concentrations en métaux restent pour la plupart similaires (Rs compris entre -30 et +30%) dans chaque horizon des lits de séchage de boue. Quelques valeurs sont inférieures à -30% ou supérieures à 30%, mais les Rs restent proches de ces limites. Ainsi, la conservation des métaux dans le procédé permet de confirmer que la démarche de prélèvement est correcte.

6.2.4.2. Hormones

Parmi les 5 hormones analysées, 4 n'ont pas de rendements calculables (17β-estradiol, 17α-éthinyloestradiol, estriol et 17α-estradiol) car elles n'ont jamais été quantifiées dans les échantillons de boue de LSPR (LQ respectivement de 2, 1, 2 et 5 ng/g MS).

En 2010, l'estrone a été quantifiée à des concentrations relativement faibles dans les boues de LSPR (30 et 20 ng/g MS dans les horizons du LSPR à forte fréquence alimentation-repos ; 40 et 4 ng/g MS dans les horizons du LSPR à faible fréquence alimentation-repos). En 2012 (après 20 mois de séchage), la concentration en estrone a augmenté dans l'horizon du milieu du LSPR à forte fréquence alimentation-repos (70 ng/gMS) alors qu'elle est restée similaire dans le fond (20 ng/g MS). Les concentrations des deux horizons étudiés du LSPR à faible fréquence alimentation-repos ont diminué à 2 et 1 ng/g MS (Tableau 13).

Tableau 13: Rendement d'élimination des hormones en lit de séchage planté

Substance	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2
Estrone				NC
17 b estradiol	NC	NC	NC	NC
17 a ethinylestradiol	NC	NC	NC	NC
Estriol	NC	NC	NC	NC
17 a estradiol	NC	NC	NC	NC

Légende : ■ R<-30% ■ -30<R<30% ■ R >30%
NC: Non calculable

6.2.4.3. HAP

Parmi les 19 HAP, 7 n'ont pas de rendements d'élimination calculables sur les sites Is et Hs (N, DBT, An, Acy, Acé, Fluoren, DacA+DahA) comme le montre le Tableau 14.

Tableau 14 : Rendement d'élimination des HAP en lit de séchage planté

Substance	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2
N	NC	NC	NC	NC
DBT	NC	NC	NC	NC
Phe				
An	NC	NC	NC	NC
Acy	NC	NC	NC	NC
Acé	NC	NC	NC	NC
Fluoren	NC	NC	NC	NC
Fluo				
Pyr				
BaA				
Chrys +Triph				
2,1 BNT	NC	NC		NC
BbF+BkF+BJF				
BeP				
BaP				
PER	NC	NC		
IP				
DacA + DahA	NC	NC	NC	NC
BP				

Légende : ■ R<-30% ■ -30<R<30% ■ R >30%
NC: Non calculable

Deux HAP n'ont pas de rendements calculables sur Hs (2,1 BNT, PER). Le rendement d'élimination du phénanthrène est compris entre -30 et 30% (les concentrations restent similaires) sur les deux sites Hs et Is.

Les comportements des autres HAP diffèrent selon les configurations de LSPR étudiés. Dans le LSPR à forte fréquence alimentation-repos (Hs), les concentrations restent similaires dans les deux horizons. En revanche, dans le procédé du LSPR à faible fréquence alimentation-repos (Is), le comportement des HAP à fort poids moléculaire diffèrent selon l'horizon étudié. Dans l'horizon 1, les rendements sont

supérieurs à 30%, sauf pour BeP et BP. Dans l'horizon 2 (fond), les rendements sont en majorité compris entre -30 et 30% (les concentrations restent inchangées).

Nous n'avons pas observé d'accumulation de HAP dans les boues (pas de rendements < -30%).

6.2.4.4. Alkylphénols

Les nonylphénols mono et diéthoxylates, ainsi que le 4-NP ont un rendement calculable. Le 4-t-OP n'a pas de rendement calculable, sauf pour l'horizon 1 du site Is. Le 4-NP1EC n'a pas été analysé (soudis lors de l'analyse).

Les nonylphénols monoéthoxylates et diéthoxylates sont bien éliminés par les lits de séchage planté de roseaux ($R_s > 50\%$) (Tableau 15), quel que soit le type de rythme d'alimentation-repos appliqué, et donc quel que soit la présence d'oxygène. En revanche, le devenir de 4-NP diffère : le 4-NP s'accumule ($R_s < -30\%$) dans les boues du LSPR à forte fréquence alimentation-repos (Hs), probablement en raison de la production à partir des éthoxylates et de l'absence d'oxygène pour dégrader le 4-NP. Le 4-NP disparaît ($R_s > 30\%$) dans le LSPR à faible fréquence alimentation-repos (Is) dont la boue est plus aérée.

L'élimination du 4-t-OP a été observée pour l'horizon 1 du LSPR à faible fréquence alimentation-repos (Is).

Tableau 15 : Rendement d'élimination des alkylphénols en lit de séchage planté

Substance	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2
4-NP1EO				
4-NP2EO				NC
4-NP				
4-t-OP	NC	NC		NC
4-NP1EC	NA	NA	NA	NA

Légende : ■ $R < -30\%$ ■ $-30 < R < 30\%$ ■ $R > 30\%$

NC: Non calculable

NA: Non analysé

6.2.4.5. PCB

Les PCB sont présents à faible concentration dans les boues (< 20 ng/g MS) de lits de séchage plantés de roseaux. La quasi-totalité des 7 PCB analysés ont un rendement calculable, à l'exception du CB50+28 (site Hs) et CB52 (horizon 2 des sites Hs et Is).

La somme des concentrations en PCB diminue lors du séchage par LSPR, avec les deux configurations testées. On observe de meilleurs rendements avec le LSPR à faible fréquence alimentation-repos (Is), avec un R_s de 66% en moyenne, contre 30% en moyenne pour le LSPR à forte fréquence alimentation-repos (Hs)

Nous n'observons d'accumulation des PCB de faible poids moléculaire.

Tableau 16 : Rendement d'élimination des PCB en lit de séchage planté

Substance	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2
CB 50+28	NC	NC		
CB 52		NC		NC
CB 101				
CB 118				
CB 153				
CB 138				
CB 180				

Légende : ■ $R < -30\%$ ■ $-30 < R < 30\%$ ■ $R > 30\%$

NC: Non calculable

6.2.4.6. PBDE

Les résultats de rendement d'élimination en PBDE sont présentés dans le Tableau 17. Parmi les 16 PBDE analysés, 10 n'ont pas de rendement calculable pour le site Hs, et 8 pour le site Is. Les PBDE sont présents à faible concentration dans les boues (< 50 ng/g MS) de lits de séchage plantés de roseaux, excepté pour BDE209 pour lequel les valeurs sont comprises entre 800 et 6000 ng/g.

Certains PBDE semblent s'accumuler ($R_s < -30\%$) dans les boues de lits de séchage (BDE47, 99, 154, 209). Cette tendance est observée pour les deux horizons du LSPR Hs (rythme alimentation-repos élevé) et l'horizon 1 du site Is (faible rythme alimentation-repos) pour BDE47 et 99. D'autres PBDE (BDE28, 49, 85, 153, 154, 209) ont été partiellement éliminés ($R_s > 30\%$) dans l'horizon 2 (fond) du LSPR à faible rythme alimentation-repos. Enfin, pour d'autres les concentration restent similaires (BDE100 pour les sites Hs et Is ; BDE 183 pour le site Is).

Tableau 17 : Rendement d'élimination des PBDE en lit de séchage planté

Substance	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2
BDE 71	NC	NC	NC	NC
BDE 85	NC			
BDE 99				
BDE 100				
BDE 153				
BDE 154			NC	
BDE 183	NC	NC	NC	
BDE 206	NC	NC	NC	NC
BDE 207	NC	NC	NC	NC
BDE 208	NC	NC	NC	NC
BDE 209				

Légende : ■ $R < -30\%$ ■ $-30 < R < 30\%$ ■ $R > 30\%$
NC: Non calculable

6.2.4.7. Autres substances

Le benzothiazole, le tertbutylphénol et le pentachlorophénol n'ont jamais été quantifiés dans les échantillons de boues de lits de séchage plantés (LQ 200 ng/g). Le di-butylphtalate et le bisphénol A ont été quantifiés, mais n'ont pas de rendement calculables pour les sites Hs et Is. La tonalide et le triclosan n'ont pas de rendement calculable pour l'horizon 1 du site Hs.

Le galaxolide, la tonalide et le triclosan ne sont pas éliminés par le LSPR à forte fréquence alimentation-repos (Hs) ; en revanche, ils sont éliminés avec un rendement de 50 à 80% par le LSPR à faible fréquence alimentation-repos (Is). Le DEHP est partiellement éliminé aux mêmes rendements (50 à 80% selon les horizons) par les deux sites Hs et Is.

Tableau 18 : Rendement d'élimination des autres substances en lit de séchage planté

Substance	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2
Benzothiazole	NC	NC	NC	NC
Terbutylphénol	NC	NC	NC	NC
Galaxolide				
Tonalide	NC			
Di-Butylphthalate	NC	NC	NC	NC
Pentachlorophénol	NC	NC	NC	NC
Triclosan	NC			
DEHP				
BPA	NC	NC	NC	NC

Légende : ■ R<-30% ■ -30<R<30% ■ R >30%

NC: Non calculable

6.2.5. Comparaison des procédés étudiés

Certains procédés de traitement des boues permettent une élimination partielle de micropolluants. Cependant, pour la plupart d'entre eux, il s'agit uniquement d'une transformation et d'autres micropolluants s'accumulent dans les boues à travers le traitement, principalement car ce sont des produits de dégradation d'autres composés.

La Figure 47 permet une comparaison globale des rendements d'élimination de tous les procédés de traitement des boues étudiés.

Pour la plupart des micropolluants (en moyenne, 58% des micropolluants analysés avec un rendement calculable, soit 32 substances, le procédé de traitement des boues n'a pas d'effet significatif (Rs entre -30% et 30%). Pour environ 20% des micropolluants avec un rendement calculable (soit 10 substances), on observe une accumulation à travers le procédé de traitement des boues (Rs < -30%). Et pour un peu plus de 20% des micropolluants analysés avec un rendement calculable (soit 12 substances), le procédé de traitement des boues semble permettre une élimination partielle (Rs > +30

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de la charge globale en micropolluants dans les boues. La comparaison des 9 procédés étudiés ne permet pas d'établir un classement en termes de meilleur procédé pour l'élimination des substances étudiées.

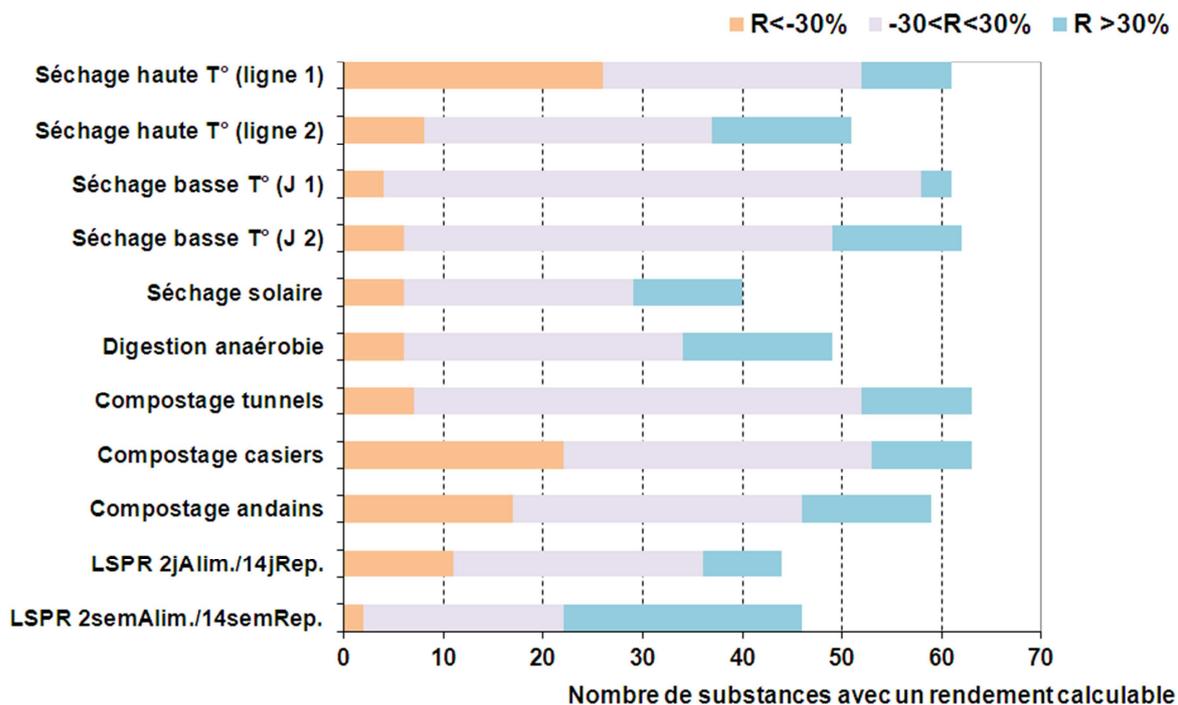


Figure 47 : Comparaison globale des rendements d'élimination (R) des micropolluants par les procédés de traitement des boues étudiés

7. Conclusion et perspectives

Le devenir des micropolluants à travers les procédés de traitement des boues a été étudié. L'étude a porté sur 79 micropolluants qui ont été analysés dans les échantillons de boue brute et traitée (séchée, compostée, digérée), ainsi que dans des déchets verts, des refus de criblage et des condensats. Les micropolluants étudiés ont été choisis en fonction de leur occurrence dans les boues de STEU, de leurs propriétés physico-chimiques, de leur toxicité, de la réglementation en cours, mais également en fonction des limites des techniques d'analyse dans la matrice boue.

Des campagnes d'échantillonnage ont été réalisées par Suez Environnement et l'Irstea dans 9 installations de traitement des boues : un sécheur thermique basse température, un sécheur thermique haute température, un sécheur solaire, une digestion anaérobie suivie d'un compostage accéléré en tunnels, une unité de compostage en casiers ventilés, une unité de compostage rustique en andains et des lits de séchage plantés de roseaux, à forte et faible fréquence d'alimentation-repos.

Un protocole d'échantillonnage spécifique a été développé afin de suivre un « lot » de boue à travers le procédé de traitement. Des bilans matière ont été effectués afin de calculer des rendements d'élimination pour les installations étudiées. Des règles de calcul spécifiques ont été appliquées afin d'obtenir des données de rendements robustes, permettant de s'affranchir des incertitudes liées à l'échantillonnage et à l'analyse chimique.

L'ensemble des résultats est synthétisé dans le tableau 2 de la synthèse opérationnelle au début du document. Les résultats obtenus montrent que certains micropolluants sont partiellement éliminés lors du traitement des boues ($R_s > 30\%$), tandis que d'autres ont tendance à s'accumuler ($R_s < -30\%$) :

- Le séchage solaire semble permettre 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 permettre 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 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, di-butylphtalate et triclosan. Par contre, le bisphénol A s'est accumulé dans les boues pour le compostage ;
- Les PCB sont partiellement éliminés par le séchage solaire, la digestion anaérobie et les lits de séchage plantés de roseaux.
- Le comportement des PBDE est 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 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 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 méthodologie de prélèvement.

Aucun des procédés de traitement des boues étudiés dans ce projet n'a permis une élimination de la charge globale en micropolluants dans les boues. De plus, certains micropolluants s'accumulent dans les boues traitées, principalement car ce sont des produits de dégradation d'autres composés, partiellement éliminés pendant le traitement.

Les micropolluants adsorbés dans les boues brutes sont retrouvés dans les boues traitées : certains sont retrouvés aux mêmes niveaux de concentrations, d'autres ont des concentrations partiellement réduites, tandis que quelques-uns sont présents en concentrations plus fortes.

Ces boues chargées en micropolluants sont-elles toxiques pour l'environnement ?

Dans un projet parallèle au projet ARMISTIQ, le projet ANR ECOTECH 2010 Echibioteb (Coordination : IRSTEA, partenaires : CIRSEE, LPTC, Paris Sud 11 UMR 8079, INERIS et Envoleure), des outils de mesure de la toxicité ont été mis en place sur certains des échantillons des campagnes boues présentées dans ce document. Les résultats de ces essais seront disponibles en 2014.

Les micropolluants adsorbés dans les boues peuvent-ils se désorber après épandage ?

Dans le cadre du projet Sipibel Boue, Suez Environnement, par l'intermédiaire de sa filiale Degrémont, co-encadre une thèse avec le GRESE Limoges, sur le devenir des micropolluants du traitement vers l'épandage, avec des essais de désorption des micropolluants en laboratoire.

8. Sigles & Abréviations

Sigles

AMPERES	Analyse de micropolluants prioritaires et émergents dans les rejets et les eaux superficielles (Projet ANR PRECODD 2006-2009)
ARMISTIQ	Amélioration de la réduction des micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées domestiques (Projet ONEMA 2010-2013)
DA	Digestion anaérobie
DCE	Directive cadre sur l'eau
EH	Equivalent habitant
LQ	Limite de quantification
LSPR	Lit de séchage planté de roseaux
MO	Matière organique
MS	Matière sèche
MV	Matière volatile
NQE	Normes de qualité environnementale
ONEMA	Office national de l'eau et des milieux aquatiques
R	Rendement d'élimination (%)
SP	Substance prioritaire
SPD	Substance prioritaire dangereuse
STEU	Station de traitement des eaux usées
UE	Union européenne

Méthodes d'analyses

AAS	Spectrométrie d'absorption atomique
ASE	Extraction accélérée par solvant
ECD	Détecteur à capture d'électrons
GC-MS	Chromatographie gazeuse couplée à la spectrométrie de masse
ICP-MS	Spectromètre de masse couplé à un plasma inductif
HPLC-MS/MS	Chromatographie liquide haute performance couplée à la spectrométrie de masse en tandem
SPE	Extraction sur phase solide
Min.MO	Minéralisation sous champ de micro-ondes
SPME	Micro-extraction sur phase solide

Substance ou familles

17βE (bE2)	17β-estradiol	DEHP	Di-2-éthylhexyl phtalate
2,1 BNT	2,1 benzonaphtothiophène	E1	Estrone
4-NP	4-nonylphénol	E3	Estriol
4-tBP	4-tertbutyl phénol	Fe	Fer
4-t-OP	4-ter-octylphénol	Fluo	Fluoranthène
Acé	Acénaphtène	Fluoren	Fluorène
Acy	Acénaphtylène	Hg	Mercure
aE2	17α-estradiol	HAP	Hydrocarbure

aEE2	17 α -éthynylestradiol	IP	aromatique polycyclique
Ag	Argent	Mn	Indéno(1,2,3-cd)pyrène
AKP	Alkylphénols	N	Manganèse
Al	Aluminium	Ni	Naphtalène
An	Anthracène		Nickel
		NP1EC	Acide
APEO	Alkylphénols polyéthoxylés		nonylphénoxyacétique
As	Arsenic	NP1EO	Nonylphénol
BaA	Benzo(a)anthracène		monoéthoxylate
BaP	Benzo(a)pyrène	NP2EO	Nonylphénol diéthoxylate
BbF+BkF+BjF	Benzo(b+j+k)fluoranthène	Pb	Plomb
BeP	Benzo(e)pyrène	PBDE	Polybromodiphényléthers
BP	Benzo(g,h,i)pérylène	PCB	Polychlorobiphényles
Cd	Cadmium	PER	Pérylène
Chrys+Triph	Chrysène + triphénylène	Phe	Phénanthrène
Cr	Chrome	Pyr	Pyrène
Cu	Cuivre	Se	Sélénium
DacA+DahA	Dibenzo(a,h+a,c)anthracène	Ti	Titane
DBT	Dibenzothiophène	Zn	Zinc

9. Bibliographie

Ahel M., Giger W., Koch M. (1994) Behaviour of alkylphenol polyethoxylate surfactants in the aquatic environment – 1. Occurrence and transformation in sewage treatment. *Water Research*, 28, (5), 1131-1142.

Amir S., Hafidi M., Merlina G., Hamidi H., Revel J.C. (2005) Fate of polycyclic aromatic hydrocarbons during composting of lagooning sewage sludge. *Chemosphere*, 58, (4), 449-458.

Bennie DT., CA.Sullivan, HB.Lee, RJ.Maguire (1998) Alkylphenol polyethoxylate metabolites in canadian sewage treatment plant waste streams. *Water Quality Research*, 33, (2), 231-252.

Besnault S. et Martin S. (2011). Etat de l'art sur les procédés de traitement des boues pour l'élimination de micropolluants, Rapport bibliographique, (projet ARMISTIQ). 55 p.

Choubert, J.-M., Martin-Ruel, S., Budzinski, H., Miège, C., Esperanza, M., Soulier, C., Lagarrigue, C. and Coquery, M. (2011). Evaluer les rendements en stations d'épuration. Apports méthodologiques et résultats pour les micropolluants en filières conventionnelles et avancées. *Techniques Sciences et Méthodes*, 1/2, 44-62.

Coquery M., Pomies M., Martin-Ruel S., Budzinski H., Miegé C., Esperanza M., Soulier C., Choubert J.-M. (2011) Mesurer les micropolluants dans les eaux usées brutes et traitées. Protocoles et résultats pour l'analyse des concentrations et des flux, *Techniques Sciences et Méthodes*, 1/2, 25-43.

DEGREMONT, (2005) *Mémento technique de l'eau*, 10^{ème} édition- Lavoisier, Cachan et Paris, tome 1 et 2. 1751p.

Gibson, M.-J. Wang, E. Padgett, J.M. Lopez-Real, A.J. Beck (2007) Impact of drying and composting procedures on the concentrations of 4-nonyphenols, di (2-ethylhexyl)phthalates and poly chlorinated biphenyls in anaerobically digested sewage sludge, *Chemosphere*, 68, 1352-1358.

Karvelas M., Katsoyiannis A., Samara C. (2003) Occurrence and fate of heavy metals in the wastewater treatment plant process. *Chemosphere*, 53, 1201-1210.

INERIS (2005) Fiches de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques : Polychlorobiphényles Version N°2-1.

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.

Martin Ruel S., Choubert J.M., Budzinski H., Miegé 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.

Nielsen S. (2005). Sludge reed bed facilities: operation and problems. *Water Science and Technology*, 51(9), 99-107.

Oleszczuk Patryk (2007) Changes of polycyclic aromatic hydrocarbons during composting of sewage sludges with chosen physico-chemical properties and PAHs content. *Chemosphere*, 67 (3), 582-591.

Pakou C., Kornaros M., Stamatelatos K., Lyberatos G. (2009) On the fate of LAS, NPEOs and DEHP in municipal sewage sludge during composting, *Bioresource Technology*, 100, (4), 1634-1642.

Soulier C., Gabet V., Lardy S., Lemenach K., Pardon P., Esperanza M., Miège C., Choubert J.M., Martin Ruel S., Bruchet A., Coquery M., Budzinski H. (2011). Zoom sur les substances pharmaceutiques : présence, partition, devenir en station d'épuration. *Techniques Sciences et Méthodes*, 1/2, 63-77.

Troesch S. (2009). Traitement et valorisation des boues et des matières de vidange par lits de séchage plantés de roseaux. Thèse de doctorat de l'université de Savoie, spécialité génie des procédés, 292 p.

Yu C., Roh H. and Chu K. (2007) 17 β -estradiol degrading bacteria isolated from activated sludge. Environ. Sci. Technol., 41, 486-492.

10. Table des illustrations

10.1. Figures

Figure 1 : Présentation schématique des conditions de fonctionnement (température, temps de séjour) des installations de traitement des boues étudiées	8
Figure 2 : Comparaison globale de l'élimination des micropolluants par les procédés de traitement des boues étudiés (R : rendement d'élimination).....	12
Figure 3 : Principe du séchage solaire (Mémento technique de l'eau)	17
Figure 4 : Scarificateur en fonctionnement dans une serre	17
Figure 5 : Crible pour séparer le compost du support carboné.....	19
Figure 6 : Principaux mécanismes impliqués dans un lit de séchage planté de roseaux (Nielsen, 2005 in Troesh, 2009)	19
Figure 7 : Prélèvements de boue avant quartage	23
Figure 8 : Méthode manuelle de quartage (méthode du cône).....	23
Figure 9 : Méthode du quartage appliquée à un compost.....	24
Figure 10 : Prélèvement de boue liquide à l'aide d'une canne munie d'un béccher en verre	24
Figure 11 : Bonbonne en verre munie d'un agitateur téflon pour l'homogénéisation des prélèvements de boue liquide	25
Figure 12: Représentation schématique des règles de calculs des rendements (adaptée de Choubert et al., 2011) (Rs : rendement d'élimination boue ; NC : non calculable ; E : concentration en entrée ; S : concentration en sortie).....	27
Figure 13 : Dispersion des rendements d'élimination (Rs) pour la digestion anaérobie (site Ds)	28
Figure 14 : Schéma d'un sécheur thermique haute température – modèle NARA.....	29
Figure 15 : Sécheur thermique haute température – modèle NARA	29
Figure 16 : Points de prélèvements du site As (séchage thermique haute température).....	30
Figure 17 : Boue déshydratée extrudée entrant dans le sécheur thermique basse température.....	31
Figure 18 : Deux sécheurs basse température – marque STC.....	31
Figure 19 : Points de prélèvement du site Bs (séchage thermique basse température)	32
Figure 20 : Serres de séchage solaire du site Cs	33
Figure 21 : Points de prélèvement du site Cs (séchage solaire).....	33
Figure 22 : Points de prélèvement des sites Ds (digestion anaérobie) et Es (compostage tunnel)	35
Figure 23: Bilan matière du site Es (compostage tunnel)	35
Figure 24 : Casiers de fermentation du site Fs (compostage casier)	36
Figure 25 : Points de prélèvement du site Fs (compostage casier)	37
Figure 26 : Bilan matière sur le site Fs (compostage casier)	38
Figure 27 : Andain du site Gs (compostage andains)	38
Figure 28 : Points de prélèvement du site Gs (compostage andains)	39
Figure 29 : Bilan matière du site Gs (compostage andains)	40
Figure 30 : Lit de séchage de boues planté de roseaux et bassin d'aération de la file eau (premier plan) du site Hs.....	40
Figure 31 : Points de prélèvement du site Hs (LSPR à fréquence alimentation-repos élevée).....	41
Figure 32 : Représentation des comparaisons de concentrations effectuées	41

Figure 33 : Lit de séchage de boues planté de roseaux et bassin d'aération de la file eau (arrière-plan) du site Is	42
Figure 34 : Points de prélèvement du site Is (LSPR à faible fréquence alimentation-repos)	43
Figure 35 : Concentrations en micropolluants dans les boues d'entrée (rouge) et dans les boues traitées (vert), échelle logarithmique	45
Figure 36 : Comparaison des concentrations moyennes en PCB dans les boues d'entrée, les refus de criblage et les déchets verts (sites Es, Fs et Gs)	46
Figure 37 : Comparaison des concentrations moyennes en HAP dans les boues d'entrée, les refus de criblage et les déchets verts	47
Figure 38 : Concentrations moyennes en micropolluants dans les condensats (en vert, substances prioritaires de la DCE)	48
Figure 39 : Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) en séchage solaire (Cs).....	49
Figure 40 : Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) en compostage (site Es).....	50
Figure 41 : Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) pendant le compostage (site Fs).....	51
Figure 42: Evolution de la matière sèche (MS) et matière volatile (MV) pendant le compostage (site Gs)	52
Figure 43 : Concentrations en hormones quantifiées dans les boues pendant le séchage solaire (site Cs)	53
Figure 44 : Proportion de PBDE lourds/légers avant et après le séchage solaire	54
Figure 45 : Profil des HAP lors de la digestion anaérobie (pourcentage des concentrations en HAP individuel par rapport à la somme des concentrations des 19 HAP analysés) en entrée (boue flottée) et en sortie (boue digérée) (site Ds).....	56
Figure 46 : Répartition des HAP individuels (en %) dans le compostage par rapport à la concentration totale en HAP	59
Figure 47 : Comparaison globale des rendements d'élimination (R) des micropolluants par les procédés de traitement des boues étudiés	66

10.2. Tableaux

Tableau 1 : Caractéristiques des procédés de traitement des boues étudiés	7
Tableau 2 : Tableau de synthèse, tendances observées sur les rendements d'élimination selon le procédé de traitement des boues, et les familles de micropollutants	10
Tableau 3 : Micropolluants analysés, méthodes analytiques et limites de quantification	21
Tableau 4 : Echantillons de boues collectés sur les 9 procédés de traitement des boues étudiés	26
Tableau 5 : Caractéristiques des 2 sécheurs haute température du site As	29
Tableau 6 : Caractéristiques des 4 sécheurs du site Bs	31
Tableau 7 : Caractéristiques du digesteur au cours de la campagne	34
Tableau 8: Rendement d'élimination des hormones au cours du compostage	57
Tableau 9 : Rendement d'élimination des HAP au cours du compostage	58
Tableau 10 : Rendement d'élimination des alkylphénols au cours du compostage	60
Tableau 11 : Rendement d'élimination des PCB au cours du compostage	60
Tableau 12 : Rendement d'élimination des autres substances au cours du compostage	61
Tableau 13: Rendement d'élimination des hormones en lit de séchage planté.....	62
Tableau 14 : Rendement d'élimination des HAP en lit de séchage planté	62
Tableau 15 : Rendement d'élimination des alkylphénols en lit de séchage planté.....	63
Tableau 16 : Rendement d'élimination des PCB en lit de séchage planté	63
Tableau 17 : Rendement d'élimination des PBDE en lit de séchage planté.....	64
Tableau 18 : Rendement d'élimination des autres substances en lit de séchage planté	65

10. Annexe I : Substances étudiées

Méthodes d'analyse des micropolluants dans les boues et LQ associées. La méthode d'extraction ou de minéralisation est spécifiée pour les phases dissoutes (diss.) et particulaire (part.).

Famille	Substance	Laboratoire d'analyse	Extraction diss./ part.	Analyse	LQ boues $\mu\text{g}/\text{kgMS}$ ($\text{mg}/\text{kg MS}$ métaux)
Métaux	Al	LAMA (Irstea de Lyon-Villeurbanne)	- / Min. MO	ICP-MS (sauf Hg, AAS automatisé)	6,7
	Ti				0,33
	Cr				0,33
	Mn				0,33
	Fe				6,7
	Ni				0,33
	Cu				0,33
	Zn				6,7
	As				0,67
	Se				0,33
	Ag				0,33
	Cd				0,033
	Pb				0,17
	Hg				0,010
Hormones	E1	LAMA (Irstea de Lyon-Villeurbanne)	SPE/ASE	HPLC-MS/MS	1 à 5
	bE2				1 à 20
	aEE2				1 à 30
	E3				2 à 15
	aE2				1 à 30
HAP	N	EPOC LPTC Univ. Bdx 1	ASE ou extraction par micro-ondes-SPE	GC-MS	10
	DBT				3
	Phe				3
	An				3
	Acy				3
	Acé				3
	Fluoren				3
	Fluo				3
	Pyr				3
	BaA				3
	Chrys +Triph				3
	2,1 BNT				3
	BbF+BkF+BjF				3
	BeP				3
	BaP				3
	PER				3
	IP				3
	DacA + DahA				3
BP	3				
AKP	4-t-OP	EPOC LPTC Univ. Bdx 1	SPE/Min.MO	GC-MS	20
	4-NP				10
	NP1EO		SPE/Min.MO	HPLC-MS/MS	50
	NP2EO				20
	NP1EC				10 à 50
	4tBP				10 à 50
PCB	CB 50+28	EPOC LPTC Univ. Bdx 1	MO - GC	ECD - GC/MS	0,5
	CB52				0,5
	CB 101				0,5
	CB 118				0,5
	CB 153				0,5
	CB 138				0,5
	CB 180				0,5

Famille	Substance	Laboratoire d'analyse	Extraction diss./ part.	Analyse	LQ boues µg/kgMS (mg/kg MS métaux)
PBDE	BDE 7				0,3
	BDE 15				0,3
	BDE 17				0,3
	BDE 28				0,3
	BDE 47				0,3
	BDE 49+71				0,3
	BDE 66				0,3
	BDE 71				0,3
	BDE 85	EPOC LPTC			0,3
	BDE 99	Univ. Bdx 1	Min.MO	GC-MS	0,3
	BDE 100				0,3
	BDE 153				0,3
	BDE 154				0,3
	BDE 183				0,3
	BDE 206				0,3
	BDE 207				0,3
	BDE 208				0,3
BDE 209				1	
	Benzothiazole				200
	Terbutylphénol				200
	Galaxolide				2000
	Tonalide				200
	Di-Butylphtalate	CIRSEE			200
	Pentachlorophénol	Suez	SPE/ASE	GC-MS	200
	Triclosan	Environnement			200
	Di(2-éthylhexyl)phtalate				2000
	Bisphenol A				200

ASE : extraction accélérée par solvant ; SPE : Extraction sur phase solide ; SPME : micro-extraction sur phase solide ; Min.MO : Minéralisation sous champ de micro-ondes ; HPLC-MS/MS : chromatographie liquide haute performance couplée à la spectrométrie de masse en tandem ; ECD : détecteur à capture d'électrons ; 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.

11. Annexe II : Rendements d'élimination (Rs) des micropolluants dans toutes les installations de traitement des boues étudiées

Famille	Substance	Haute T° (As)		Basse T° (Bs)		Séchage solaire (Cs)	Digestion anaérobie (Ds)	Compostage tunnels (Es)	Compostage casiers (Fs)	Compostage andains (Gs)	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (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	NC							
	Ag									NA				
	Cd													
	Pb													
Hg														
Hormones	Estrone		NC	NC	NC									NC
	17 b estradiol	NC	NC	NC	NC		NC		NC	NC	NC	NC	NC	NC
	17 a ethinylestradiol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	Estriol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC
	17 a estradiol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC

Famille	Substance	Haute T° (As)		Basse T° (Bs)		Séchage solaire	Digestion anaérobie	Compostage tunnels (Es)	Compostage casiers (Fs)	Compostage andains (Gs)	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2	
		Ligne 1	Ligne 2	Jour 1	Jour 2										
HAPs	N	NC	NC			NC			NC	NC	NC	NC	NC	NC	
	DBT		NC			NC					NC	NC	NC	NC	
	Phe														
	An		NC			NC					NC	NC	NC	NC	
	Acy		NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	
	Acé		NC				NC				NC	NC	NC	NC	
	Fluoren		NC				NC				NC	NC	NC	NC	
	Fluo														
	Pyr														
	BaA														
	Chrys +Triph														
	2.1 BNT		NC				NC	NC	NC			NC	NC		NC
	BbF+BkF+BjF														
	BeP														
	BaP														
	PER				NC	NC	NC	NC				NC	NC		NC
IP															
DacA + DahA			NC	NC	NC	NC	NC				NC	NC	NC	NC	
BP															
Alkylphénols	4-NP1EO														
	4-NP2EO													NC	
	4-NP														
	4-t-OP								NC		NC	NC		NC	
	4-NP1EC					NC	NC	NC	NC	NC	NA	NA	NA	NA	
PCBs	CB 50+28					NC					NC	NC			
	CB 52					NC	NC					NC		NC	
	CB 101														
	CB 118					NC	NC								
	CB 153														
	CB 138														
CB 180					NC										

Famille	Substance	Haute T° (As)		Basse T° (Bs)		Séchage solaire	Digestion anaérobie	Compostage tunnels (Es)	Compostage casiers (Fs)	Compostage andains (Gs)	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 1	LSPR Alim. 2j / Rep. 14j. (Hs) horizon 2	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 1	LSPR Alim. 2sem / Rep. 14sem (Is) horizon 2	
		Ligne 1	Ligne 2	Jour 1	Jour 2										
PBDEs	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	
	BDE 28					NC	NC				NC	NC	NC		
	BDE 47														
	BDE 49														
	BDE 66					NC	NC	NC		NC	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 71		NC			NC	NC			NA	NC	NC	NC	NC	NC
	BDE 85					NC					NC				
	BDE 99														
	BDE 100					NC									
	BDE 153	NC	NC	NC	NC	NC									
	BDE 154					NC	NC							NC	
	BDE 183					NC	NC				NC	NC	NC		
	BDE 206	NC	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	NC
BDE 208	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	
BDE 209															
Autres	Lindane		NC			NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	NA	
	Benzothiazole					NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	
	Terbutylphénol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	
	Galaxolide														
	Tonalide										NC				
	Di-Butylphtalate					NC				NC	NC	NC	NC	NC	
	Pentachlorophénol	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	NC	
	Triclosan										NC				
	DEHP														
BPA	NC	NC	NC	NC	NC	NC			NC	NC	NC	NC	NC	NC	

Non analysé	NA
Non calculable	NC

R<-30%	-30%<R<30%	>30%

12. Remerciements

Les auteurs remercient l'Onema pour son soutien financier au projet ARMISTIQ.

Les auteurs adressent également leurs remerciements à Corinne Brosse, Dominique Gorini, Julie Iaciancio, Paul Lepimpec, Loïc Richard, Hélène Sanejouand, Séverine Schiavone, Caroline Michard, Eloïse Vray (Irstea) ; Cyril Gogot (Suez-Environnement) ; Pierre Labadie, Patrick Pardon, Sylvie Augagneur (LPTC, université Bordeaux 1), pour leurs contributions aux analyses chimiques.

Les auteurs remercient Bruno Barillon (Suez Environnement), Marion-Justine Capdeville (Irstea), Céline Lagarrigue (AE RMC) et Céline Lacour (Onema) pour la relecture du document.

Les auteurs remercient les maîtres d'ouvrage et les exploitants, pour avoir facilité l'accès et aidé à l'instrumentation des sites.

Onema
Hall C – Le Nadar
5 square Félix Nadar
94300 Vincennes
01 45 14 36 00
www.onema.fr

Irstea
Parc de Tourvoie
BP 44,
92163 Antony cedex
01 40 96 61 21
www.irstea.fr