

Pour en savoir plus...

Consultez le site du projet et les rapports de recherche

- Site internet du projet Armistiq : <http://armistiq.irstea.fr/>
- Etat de l'art sur les procédés avancés intensifs pour la réduction de micropolluants dans les eaux usées traitées
Sophie Besnault et Samuel Martin
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2011_039.pdf
- Matériaux adsorbants pour la rétention et le traitement de substances pharmaceutiques et phytosanitaires
Caractéristiques et éléments de choix
Alexandre Tahar, Jean-Marc Choubert, Pascal Molle et Marina Coquery
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2010_047.pdf
- Etat de l'art des processus, des protocoles de quantification des vitesses d'adsorption et de dégradation, et des outils de simulation pour l'élimination des micropolluants dans les procédés biologiques de traitement des eaux usées
Maxime Pomiès, Marina Coquery et Jean-Marc Choubert
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2010_B045.pdf
- Etat de l'art sur les procédés de traitement des boues pour l'élimination de micropolluants
Sophie Besnault et Samuel Martin
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2011_038.pdf
- Réduction des micropolluants par les traitements complémentaires : procédés d'oxydation avancée, adsorption sur charbon actif
Sophie Besnault, Samuel Martin, Sylvie Baig, Hélène Budzinski, Karyn Le Menach, Mar Esperanza, Naïke Noyon, Cyrille Gogot, Cécile Miège, Lysiane Dherret, Amandine Roussel-Galle, Marina Coquery
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2014_010.pdf
- Réduction des micropolluants par les traitements complémentaires : fossé construit sur sol imperméable, filtres garnis de matériaux adsorbants
Jean-Marc Choubert, Clément Crétollier, Alexandre Tahar, Hélène Budzinski, Karyn Le Menach, Mar Esperanza, Naïke Noyon, Cécile Miège, Lysiane Dherret, Marina Coquery
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2014_011.pdf
- Calage et validation d'un modèle dynamique pour décrire l'élimination des micropolluants par le procédé boues activées
Maxime Pomiès, Jean-Marc Choubert, Hélène Budzinski, Karyn Le Menach, Mar Esperanza, Naïke Noyon, Cécile Miège, Clément Crétollier, Lysiane Dherret, Marina Coquery
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2014_012.pdf
- 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)
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
http://www.onema.fr/IMG/pdf/2014_013.pdf

Bibliographie

- Choubert J.-M., Martin-Ruel S., Budzinski H., Miège C., Esperanza M., Soulier C., Lagarrigue C., Coquery M., 2011. Évaluer les rendements des stations d'épuration - Apports méthodologiques et résultats pour les micropolluants en filières conventionnelles et avancées, Techniques Sciences et Méthodes n° 1-2 : 44-62.

- Coquery M., Pomiès M., Martin-Ruel S., Budzinski H., Miège 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 n° 1-2: 25-43.
- Eymery F., Choubert J.M., Lepot B., Gasperi, J. Lachenal J., Coquery M., 2011. Guide technique opérationnel : Pratiques d'échantillonnage et de conditionnement en vue de la recherche de micropolluants prioritaires et émergents en assainissement collectif et industriel. Aquaref, 85 p.
- Golla G., Petit K., Hocquet C. - Oieau - Bilan 2008 de l'assainissement en France (Livrable ONEMA), 27 p.
- Henze, M., Grady, C. P. L., Gujer, W., Marais, G. V. R., Matsuo, T., 1987. *A general model for single-sludge wastewater treatment systems. Water Research, 21(5): 505-515.*
- Soulier C., Gabet, V., Lardy S., Lemenach K., Pardon P., Esperanza M., Miège C., Choubert J.M., Martin 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.

Rédaction

Céline Lacour (Onema, direction de l'action scientifique et technique)
Céline Lagarrigue (Agence de l'eau Rhône Méditerranée Corse, département des interventions et des actions de bassin)

Contribution

- Coordination du projet : Marina Coquery (Irstea)
- Responsables des actions : Jean-Marc Choubert (Irstea) et Sophie Besnault (CIRSEE - SUEZ ENVIRONNEMENT)
- Relecteurs : Hélène Budzinski (Université Bordeaux et membre du CS Onema), Anne-Sophie Allonier (Agence de l'eau Seine Normandie) et Marion-Justine Capdeville (Irstea)

Edition

Véronique Barre (Onema, direction de l'action scientifique et technique) et
Claire Roussel (Onema, délégation à l'information et à la communication)

Création et mise en forme graphiques

Béatrice Saurel (saurelb@free.fr)

ISBN 979-10-91047-33-3

Décembre 2014

La collection **Comprendre pour agir** accueille des ouvrages issus de travaux de recherche et d'expertise mis à la disposition des enseignants, formateurs, étudiants, scientifiques, ingénieurs et des gestionnaires de l'eau et des milieux aquatiques.

Contact : veronique.barre@onema.fr
<http://www.onema.fr/collection-comprendre-pour-agir>

Quelle est l'efficacité d'élimination des micropolluants en station de traitement des eaux usées domestiques?

Synthèse du projet de recherche ARMISTIQ

Céline Lacour et Céline Lagarrigue

Sommaire

- 1- Les micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées
 - 2- Le projet de recherche ARMISTIQ
 - 3- Comment optimiser l'élimination des micropolluants par le procédé boues activées ?
 - 4- Quelle efficacité des procédés de traitement complémentaires pour les grosses collectivités ?
 - 5- Quelle efficacité des procédés de traitement complémentaires pour les petites et moyennes collectivités ?
 - 6- Quel devenir des micropolluants au sein de différents procédés de traitement des boues ?
- Conclusion et perspectives

N°15

Les stations de traitement des eaux usées (STEU) domestiques, qui peuvent être considérées comme un vecteur de micropolluants vers les eaux superficielles n'ont pas été conçues pour traiter les micropolluants. Elles sont toutefois capables d'éliminer une partie des substances présentes en entrée de station (Encart 1, p. 5).

L'objectif du projet ARMISTIQ était d'évaluer dans quelle mesure les micropolluants peuvent être traités en STEU. Le projet a permis de mieux comprendre le fonctionnement des filières classiques, telles que les boues activées, vis-à-vis des micropolluants, et d'acquérir des données technico-économiques sur les procédés de traitement complémentaires très peu utilisés en France.

Ainsi, le projet met en évidence qu'en optimisant les procédés de traitement biologique déjà existants, il est possible de réduire les concentrations en micropolluants en sortie de STEU. Les procédés de traitement complémentaires tels que l'ozonation, l'oxydation avancée ou le traitement par charbon actif, permettent d'aller plus loin dans la réduction des flux polluants, même si les effets des éventuels sous-produits générés au cours de ces traitements restent à préciser.

Par ailleurs, ARMISTIQ met aussi clairement en lumière qu'une grande part des micropolluants quantifiés en entrée de STEU est transférée dans les boues. Toutefois, leur impact sur l'environnement fait l'objet de plusieurs études et n'est pas complètement établi.

Ces résultats permettent d'orienter les maîtres d'ouvrages vers les solutions les plus adéquates et montrent aussi que la réduction à la source des micropolluants reste incontournable.

@ Agence de l'eau
Rhône Méditerranée Corse



1 – Les micropolluants dans les stations de traitement des eaux usées (STEU)

L'efficacité des stations de traitement des eaux usées (STEU) domestiques pour l'élimination de la pollution organique et des matières en suspension a considérablement progressé ces dernières années. En parallèle, le développement de méthodes analytiques de pointe, qui permettent la quantification de plus en plus de substances

● Qu'est-ce qu'un micropolluant ?

Un micropolluant peut être défini comme une substance détectable dans l'environnement à très faible concentration (microgramme par litre voire nanogramme par litre). Sa présence est, au moins en partie, due à l'activité humaine et peut à ces très faibles concentrations engendrer des effets négatifs sur les organismes vivants.

De nombreuses substances présentant des propriétés physico-chimiques différentes sont concernées, qu'elles soient organiques ou minérales, biodégradables ou non comme par exemple les plastifiants, détergents, métaux, hydrocarbures, pesticides, cosmétiques ou encore les médicaments (Tableau 1). Plus de 110 000 substances sont recensées par la réglementation européenne.

Issues de procédés industriels, de pratiques agricoles ou encore des activités quotidiennes, ces substances, présentes

dans les eaux et dans les boues à des niveaux de concentration très faibles, ont permis l'émergence de travaux sur ce sujet. L'attention s'est donc focalisée sur l'efficacité des STEU vis-à-vis des micropolluants, même si elles n'ont pas été conçues dans cet objectif.

sous forme de mélanges, peuvent poser des problèmes complexes en raison de leurs effets écotoxicologiques.



Figure 1. Dispositif expérimental mis en œuvre pour les analyses.

@ Irstea

● Que dit la réglementation ?

La directive cadre sur l'eau (DCE) 2000/60/CE établit un cadre communautaire pour la politique de l'eau de l'Union européenne.

La DCE inclut dans son plan d'action une réduction voire une suppression d'une liste cible de micropolluants, nommés substances prioritaires. Cette liste est régulièrement révisée et permet d'inclure des substances dites émergentes, c'est-à-dire jusqu'alors non incluses dans les réglementations mais dont la présence dans l'environnement est confirmée et potentiellement préoccupante (Directive 2013/39/CE).

En France, les objectifs de la DCE ont été traduits notamment dans le plan d'action national micropolluants (2010 - 2013 reconduit pour 2014 - 2018) qui fixe les démarches à entreprendre en termes de connaissance ou d'investissement. Par exemple, un suivi des micropolluants en sortie de STEU (action rejets des substances dangereuses dans l'environnement – dite RSDE) a été lancé en 2011 pour améliorer la surveillance des émissions.

2 – Le projet de recherche ARMISTIQ

Le projet ARMISTIQ (2010-2013), financé par l'Onema (Office national de l'eau et des milieux aquatiques), a été coordonné par Irstea (Institut national de recherche en sciences et technologies pour l'environnement et l'agriculture) et réalisé en partenariat avec le CIRSEE - SUEZ ENVIRONNEMENT (Centre International de Recherche Sur l'Eau et l'Environnement) et l'Université de Bordeaux (EPOC – UMR 5805 ; laboratoire de Physico- et Toxicochimie de l'environnement - LPTC).

Le projet ARMISTIQ s'est appuyé sur les apports méthodologiques issus du projet AMPERES (Encart 1 p.5). Son principal objectif était d'évaluer et d'améliorer la connaissance et la maîtrise des procédés de traitement des micropolluants présents dans les eaux usées et les boues urbaines des STEU domestiques. Le projet visait ainsi à (Figure 3 p.4) :

- acquérir des connaissances opérationnelles sur le devenir et le comportement des micropolluants pour différentes filières de traitement des eaux usées et des boues ;
- réaliser des évaluations techniques et économiques de procédés.

Les compétences pointues des laboratoires de recherche ont été particulièrement importantes pour répondre aux objectifs du projet.

Les travaux de recherche s'articulent autour de quatre grandes actions (Figure 3 et chapitres 3 à 6) et s'appuient sur des expérimentations de terrain, réalisées aussi bien sur des dispositifs « pilotes » (Figure 2) installés sur STEU, que sur des installations de taille réelle.

Le projet ARMISTIQ comprend l'analyse d'une soixantaine de micropolluants dans les eaux et d'environ 80 dans les



Figure 2. Pilotes garnis de matériaux adsorbants (argile expansée, zéolite et charbon actif).

@ Irstea

boues. Ces micropolluants ont été choisis en fonction de leur occurrence dans les eaux traitées et dans les boues (Coquery *et al.*, 2011 ; Soulier *et al.* 2011), de leurs propriétés physico-chimiques et des connaissances acquises sur leur élimination en STEU. Certains micropolluants étudiés (métaux, HAP, pesticides, alkylphénols) font partie de la liste des substances prioritaires de la DCE.

Cependant l'objectif du projet n'était pas de se limiter à cette liste mais d'étudier une gamme de substances (dites émergentes) assez large qui permette également de mieux comprendre les mécanismes intervenant au cours du traitement (c'est-à-dire sorption, biotransformation, oxydation).

Les familles choisies sont les métaux, les médicaments (bêtabloquants, antibiotiques, etc.), les HAP, les alkylphénols, les pesticides, les hormones, les PCB, les PBDE et une dizaine d'autres molécules (muscs, phtalates, bisphénol A...). Ces listes ont été adaptées en fonction des objectifs des différentes actions (Figure 3 chapitres 3 à 6).

Les questions liées à la toxicité des micropolluants recherchés n'ont pas été abordées dans le cadre de ce projet.

1
Tableau

Des exemples de micropolluants étudiés dans le projet ARMISTIQ.

Famille	Exemples de micropolluants	Exemples de source ou d'usage
Métaux	zinc, plomb, nickel, aluminium, fer, cuivre, cadmium, titane, chrome	Bâtiments (toitures, etc.), freins, pneumatiques, batteries
Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)	Benzo(a)anthracène, fluoranthène, acénaphthène, anthracène	Produits pétroliers, combustion incomplète de la matière organique
Alkylphénols	4 nonylphénol, nonylphénol mono éthoxylate	Composants de détergents, phytosanitaires, peintures
Polychlorobiphényles (PCB)	CB 58, CB 101	Isolants électriques
Pesticides	AMPA, glyphosate, diuron, atrazine	Herbicides, détergents, peintures
Polybromodiphényléthers (PBDE)	BDE 7, BDE 15	Retardateurs de flamme
Phtalates	DEHP	Composés des plastiques, notamment présents dans le PVC
Bisphénol	bisphénol A	Composants des plastiques dont le PVC
Médicaments	aténolol, métoprolol	Bêtabloquants
	carbamazépine, amitriptyline, fluoxétine	Antidépresseurs
	ibuprofène, paracétamol, diclofenac	Anti-inflammatoires
	roxithromycine, sulfaméthoxazole	Antibiotiques
Hormones	17β-estradiol	Contraceptifs, traitements hormonaux

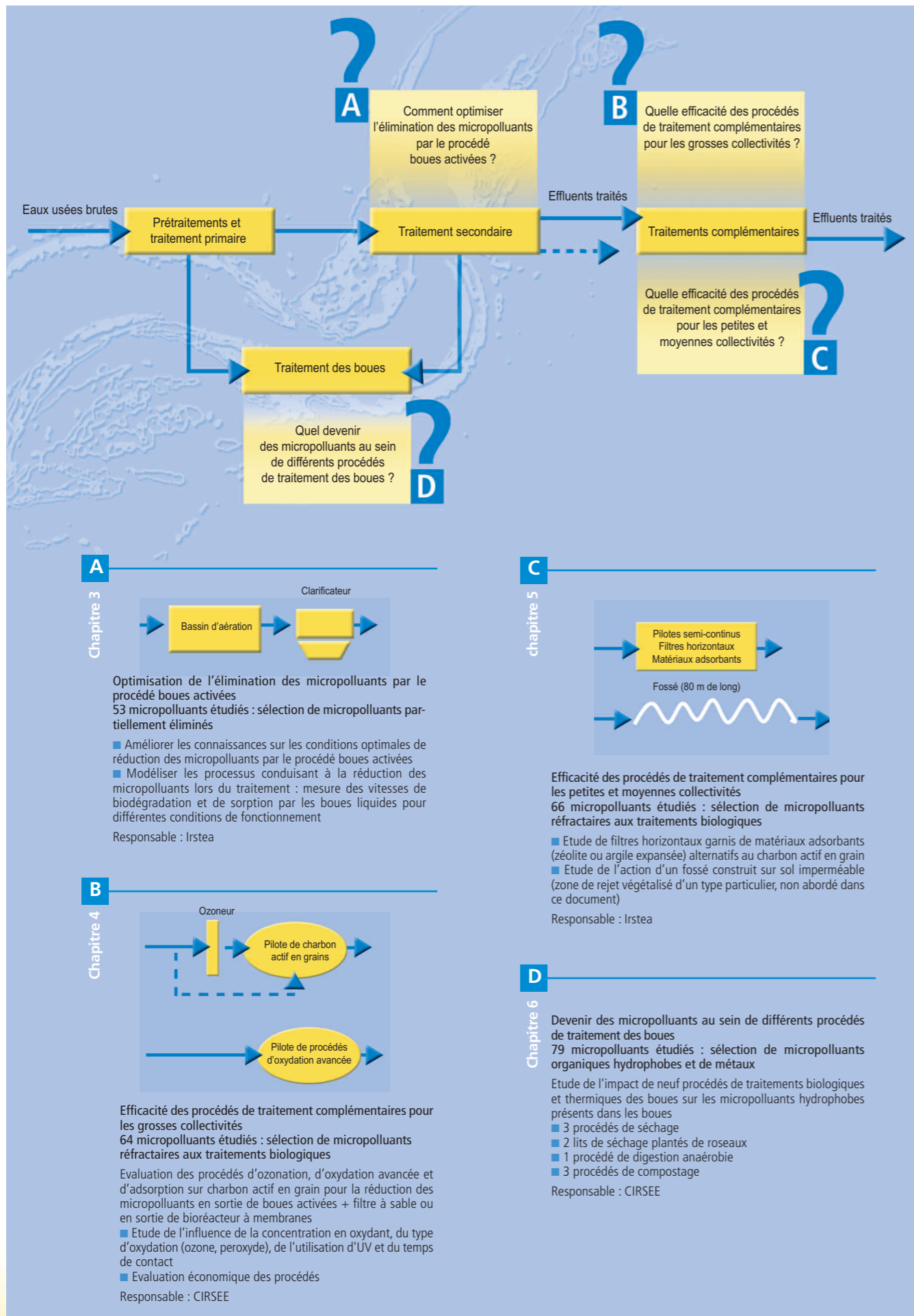


Figure 3. Organisation et actions du projet ARMISTIQ.

Retour sur le projet AMPERES

Le projet de recherche AMPERES (2006-2009), coordonné par Irstea, a mis en évidence que sur une centaine de micropolluants quantifiés en entrée de station de traitement des eaux usées (STEU), environ la moitié était éliminée des eaux usées avec un rendement de plus de 70 %. Certains micropolluants sont biodégradés, d'autres sont volatilisés ou bien encore adsorbés sur les boues. Cependant, certains micropolluants que l'on peut qualifier de « réfractaires », comme certains pesticides ou médicaments, ne sont pas affectés par le passage à travers les procédés biologiques (Coquery *et al.*, 2011 ; Soulier *et al.* 2011). Ces micropolluants sont donc parfois présents à des concentrations supérieures à 0,1 µg/L en sortie de STEU. Par ailleurs, des protocoles de prélèvement (repris dans le guide technique AQUAREF, Eymery *et al.*, 2011) et d'analyses robustes des micropolluants aux très faibles concentrations ont été spécifiquement développés. Les performances des méthodes d'analyses ont été établies en termes de limite de quantification (quelques nanogrammes par litre), rendement d'extraction, répétabilité, reproductibilité, et précautions vis-à-vis des effets matrice (ex. : étalons internes, dopages en concentration connue). Des règles strictes de calcul des rendements d'élimination ont été élaborées (Choubert *et al.*, 2011).

<https://projetamperes.cemagref.fr/>

Encart

1

3- Comment optimiser l'élimination des micropolluants par le procédé boues activées ?

D'après Golla *et al.* (2008), le procédé boues activées équipe plus de 90% des stations de traitement des eaux usées françaises (stations de taille supérieure à 2 000 équivalents-habitants - EH). Dans le projet ARMISTIQ, une étude approfondie a été réalisée sur le procédé boues activées aération prolongée. Elle a permis de déterminer les mécanismes d'élimination des micropolluants et d'identifier les pistes d'amélioration possibles sans traitement complémentaire, grâce à l'association d'expérimentations et de la modélisation.

Deux mécanismes ont été étudiés, la biotransformation et la sorption :

- la biotransformation concerne la majorité des micropolluants biodégradables qui sont alors dégradés en sous-produits. Elle est lente et se déroule essentiellement en condition aérobie, simultanément à la dégradation des paramètres majeurs carbone et azote (cométabolisme). Seuls trois micropolluants (dont le nonylphénol) sont éliminés par action directe des microorganismes sur les micropolluants (sans cométabolisme) ;

- la sorption est un mécanisme qui fixe sur les boues de nombreux micropolluants hydrophobes et/ou adsorbables. Elle est très rapide par comparaison au temps de séjour

hydraulique. Une fois fixés, ces micropolluants sont susceptibles d'être biotransformés. En revanche, les vitesses de biotransformation en phase particulaire sont très lentes, et donc peu compatibles avec le fonctionnement des bassins boues activées.

La figure 4 page 6 précise les comportements de certains micropolluants vis-à-vis de ces mécanismes.

Un modèle ASM1-MiP (Encart 2, p.6) a été développé pour étudier l'influence sur les rendements et les concentrations de sortie, des conditions de fonctionnement (température, concentration des boues dans les bassins et durée d'aération). Les résultats des simulations montrent des possibilités d'optimisation de l'élimination des micropolluants en augmentant la concentration des boues ou la durée d'aération dans les bassins. Ces gains peuvent se révéler importants soit en termes d'augmentation des rendements, soit en termes de diminution des concentrations au rejet. Ainsi, même lorsque le gain en rendement est faible (de 1 à 3 %), les concentrations au rejet peuvent diminuer de 30 à 40 %, par exemple pour l'ibuprofène ou le paracétamol (Tableau 2 p.6).

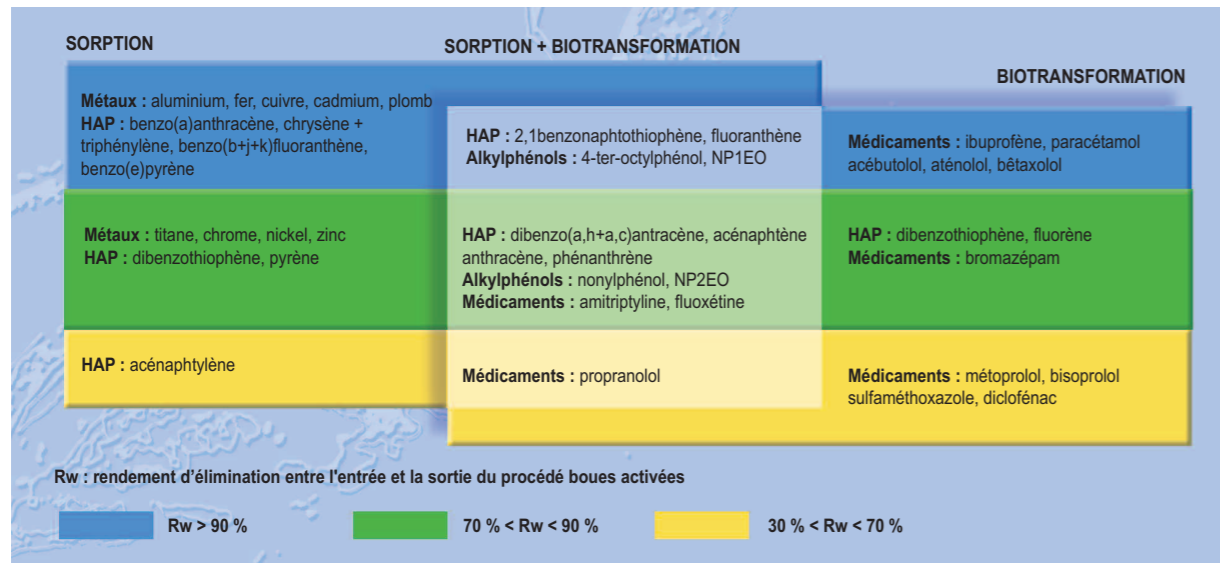


Figure 4. Mécanismes d'élimination des micropolluants au sein des boues activées.

Tableau 2

Gains d'optimisation issus de la modélisation numérique.

	Rendements initiaux (avant optimisation)		
	de 30 à 70 %	de 70 à 90 %	> 90%
Résultats de l'optimisation : augmentation du rendement (en unité de rendement)	+10 à +15%	+5 à +8%	+1 à +3%
Micropolluants concernés de la famille des médicaments	métoprolol, bisoprolol, diclofénac, sulfaméthoxazole	bromazépan, fluoxétine	ibuprofène, paracétamol, aténolol, acébutolol

Comment prédire les performances des stations à boues activées : utilisation de la modélisation

L'utilisation d'un modèle numérique permet de simuler le fonctionnement d'une station de traitement des eaux usées (STEU). L'intérêt est de prévoir les performances de traitement pour différentes conditions d'utilisation et ainsi de dégager les conditions optimales de fonctionnement. Dans le cas du procédé boues activées aération prolongée, deux phénomènes sont pris en compte pour tous les micropolluants étudiés : la sorption sur les boues liquides et la biotransformation (en conditions aérobie et anoxie). La sorption est décrite par un coefficient de partage K_d qui est calculé par le rapport entre la concentration en micropolluants en phase dissoute et la concentration en phase particulaire (boues). La biotransformation est décrite par une somme de trois fonctions correspondant à trois conditions de substrat (absence de substrat, substrat carboné et azoté, substrat azoté) et pour chaque phase (dissoute et particulaire). Chaque fonction est basée sur l'utilisation du modèle ASM1 largement utilisé pour décrire le procédé boues activées (Henze *et al.*, 1987). Pour chaque micropolluant, sept paramètres sont donc déterminés permettant de prédire précisément les concentrations en sortie de STEU en fonction des concentrations en entrée en micropolluants, et des paramètres classiques (DCO, O_2 dissous, NH_4 , NO_3). La modélisation complète a été réalisée sur une sélection de micropolluants. La représentation de la dynamique du système reste à affiner et nécessiterait l'acquisition de données à pas de temps très fin difficile à obtenir.

Encart 2

4- Quelle efficacité des procédés de traitement complémentaires pour les grosses collectivités ?

Quelle élimination des micropolluants ?

Différents procédés peuvent être utilisés pour éliminer les micropolluants réfractaires au traitement biologique. L'ozonation, l'adsorption sur du charbon actif en grain (Encart 4 p.10) et l'oxydation avancée (combinaison d'ozonation, de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) et d'ultra-violet (UV) Encart 3 p.9) ont été étudiées à l'échelle pilote semi-industriel. Ces procédés ont été testés dans des conditions compatibles avec une application en STEU :

- après un bioréacteur à membranes ou une boue activée suivi d'un filtre à sable ;
- sans renouvellement du charbon actif en grain pendant six mois et avec dix minutes de temps de contact (après un filtre à sable et une ozonation pour la désinfection) ;
- avec une concentration en ozone et un temps de séjour faibles ($5 \text{ g } O_3/m^3$ et 3 minutes de temps de contact).

Les procédés étudiés ont permis une bonne élimination de la plupart des micropolluants organiques analysés. En revanche, les métaux sont peu éliminés par ces procédés.

Plus des deux tiers des micropolluants organiques étudiés ont été éliminés avec un rendement supérieur à 70 % en utilisant de l'ozone seul (à une concentration de $5 \text{ g } O_3/m^3$) ou du charbon actif en grain seul (après un filtre à sable). Ces deux procédés ne ciblent toutefois pas forcément les mêmes micropolluants (Tableau 3).

L'ozone seul est très efficace sur la plupart des médicaments étudiés. Toutefois, certains alkylphénols et certains pesticides ne sont que partiellement éliminés par l'ozonation (rendements compris entre 30 et 70 %).

Le charbon actif en grain est efficace pour de nombreux micropolluants (rendement supérieur à 70%) et ce, même après six mois de fonctionnement en continu, en particulier pour les médicaments et certains pesticides. En revanche, on observe une perte d'efficacité au cours du temps pour les HAP, les alkylphénols ainsi que pour l'AMPA et le glyphosate.

L'utilisation de procédés d'oxydation avancée a généré des gains significatifs en termes d'élimination de micropolluants : par rapport à l'ozone seul, l'ajout de peroxyde d'hydrogène à l'ozone en proportion stœchiométrique permet d'augmenter de 20% le nombre de micropolluants organiques éliminés avec un rendement supérieur à 70% (notamment dans la famille des pesticides, glyphosate et AMPA par exemple), mais cela n'augmente pas le nombre de micropolluants déjà très bien éliminés (avec un rendement supérieur à 90%) (Tableau 3) ;

- les combinaisons ozone/UV et UV/ H_2O_2 n'ont pas permis d'augmenter le nombre de micropolluants organiques bien éliminés par rapport à l'ozone seul.

Tableau 3

Efficacité de différents procédés complémentaires pour l'élimination des micropolluants.

Famille	Charbon actif en grain	Ozone	$O_3+H_2O_2$
Médicaments Béta bloquants	4	4	4
Médicaments Antibiotiques	1	5	4
Autres médicaments	3	3	4
HAP	6	7	8
Alkylphénols	4	6	4
Pesticides urée et triazine	2	2	2
Pesticides (glyphosate, AMPA)	1	1	1
Métaux	12	12	13

■ Rw<30%
■ 30<Rw<70%
■ 70<Rw<90%
■ Rw>90%

Rw = rendement d'élimination entre sortie de procédé de traitement secondaire et sortie de procédé de traitement complémentaire

Le chiffre correspond, pour chaque famille, au nombre de micropolluants pour lequel un rendement Rw a été calculé.

Quels coûts ?

L'évaluation économique des cinq procédés de traitement complémentaires étudiés (ozone seul, ozone/péroxyde, ozone/UV, peroxyde/UV et charbon actif en grain) avait pour objectif de calculer et comparer les coûts d'investissement et de fonctionnement sur 20 ans.

Les hypothèses choisies dans le cadre de cette étude ont été les suivantes :

- l'analyse des coûts porte uniquement sur les équipements des procédés listés et ne prend pas en compte les traitements amont éventuels y compris les équipements d'affinage tel qu'un filtre à sable ;
- l'étude est basée sur un scénario d'atteinte d'objectif en termes de réduction des micropolluants : 50% des micropolluants étudiés éliminés à plus de 90% pour chaque procédé étudié. L'atteinte de cet objectif, fixé arbitrairement, dépend donc fortement de la liste de micropolluants initiale. Dans la définition du scénario, la part imputable à la STEU en amont (traitement secondaire) n'est pas prise en compte ;
- l'étude a été réalisée pour deux tailles de station (200 000 EH et 60 000 EH) ;

■ les conditions de fonctionnement optimales déterminées lors des études techniques ont été utilisées pour établir les coûts.

Il existe de fortes disparités entre les procédés étudiés que ce soit en termes d'investissement ou de fonctionnement (Figure 5).

La figure 5 présente ainsi le coût relatif d'investissement (a) ou de fonctionnement (b) par rapport à une référence définie par le traitement à l'ozone pour une STEU de 60 000 EH. Par exemple la combinaison ozone/UV coûterait environ 1,8 fois plus cher en investissement que l'ozone seul pour une STEU de 60 000 EH.

L'ozone utilisé seul semble donc la solution la moins coûteuse quelle que soit la taille de la station. Compte tenu des hypothèses de calcul de l'étude, la mise en place de ce procédé conduirait à une augmentation du prix de l'eau de deux centimes d'euros par m³ (incluant investissement et fonctionnement) ce qui correspond à une facture additionnelle d'environ 2€ HT par habitant et par an. Cette facture peut atteindre jusqu'à 20€ HT par habitant et par an pour le procédé peroxyde/UV.



Figure 5. Coût relatif de fonctionnement et d'investissement des différents procédés par rapport à une référence définie par le traitement à l'ozone pour une station de traitement des eaux usées de 60 000 EH.

Qu'est-ce que l'ozonation et les procédés d'oxydation avancée ?

L'ozonation

L'ozone (O₃) est un oxydant puissant qui permet la dégradation de substances chimiques présentes dans les mélanges gazeux et liquides. Les réactions chimiques peuvent être de deux types :

- une réaction d'oxydation directe de la substance avec la molécule d'ozone : dégradation très sélective de certains types de substances comme les phénols ou les amines ;
- une réaction d'oxydation indirecte par les radicaux libres HO^o (oxydants très puissants) formés par la décomposition de l'ozone au contact de l'eau. Ce mode d'action n'est pas sélectif.

L'ozone réagit non seulement avec les micropolluants, mais aussi avec la matière organique, les nitrites et d'autres composés inorganiques (chlorures, bromures, iodures, alcènes). Cela engendre un risque de formation de sous-produits mais qui dépend aussi des conditions de traitement (doses, temps de contact, température...). Le devenir et la toxicité des sous-produits sont encore à établir et n'ont pas été étudiés dans le cadre du projet ARMISTIQ.

Les procédés d'oxydation avancée : combinaisons UV/H₂O₂, O₃/UV, O₃/H₂O₂

L'objectif des procédés d'oxydation avancée (POA) est de créer des radicaux libres HO^o en quantité plus importante qu'avec l'ozone seul. Cela entraîne la dégradation d'un plus grand nombre de substances par des réactions d'oxydation peu sélectives. Les paramètres de fonctionnement de ces procédés sont les concentrations en oxydants, en UV et le temps de contact.

Encart
3

5- Quelle efficacité des procédés de traitement complémentaires pour les petites et moyennes collectivités ?

Le traitement complémentaire des micropolluants pour les petites et moyennes collectivités pourrait s'appuyer sur les principes de conception et d'exploitation des filtres plantés de roseaux, déjà largement utilisés.

Trois installations pilotes de type filtres horizontaux ont été garnies de matériaux adsorbants (Encart , p10) : charbon actif (1h30 de temps de contact), zéolite et argile expansée (4h et 24h de temps de contact testés). La zéolite et l'argile expansée ont été choisies comme alternatives au charbon actif étant donné leur coût d'achat nettement plus faible.

Le suivi des pilotes avait pour objectif de déterminer les performances atteignables tout au long de la durée de vie du matériau (c'est-à-dire avant atteinte de la saturation).

Pour le filtre à charbon actif, des rendements proches de 100% ont été obtenus sur les médicaments et les pesticides pour un temps de séjour de 1,5 h. Ces performances ont été observées pendant environ une année sans que la saturation du matériau soit atteinte.

En comparaison, des rendements d'élimination supérieurs à 70% ont été obtenus pour seulement la moitié des médicaments et des pesticides étudiés pour les filtres garnis de matériaux adsorbants alternatifs (argile expansée, zéolite).

Quel que soit le matériau mis en œuvre, aucune efficacité d'élimination n'a été mise en évidence pour les HAP et plusieurs métaux (lithium, bore, arsenic, titane) (Tableau 4).

Pour les filtres garnis de matériaux alternatifs qui fonctionnent avec un temps de séjour de 24h, la saturation a été obtenue au bout de quatre à six mois.

Malgré le faible coût de la zéolite et de l'argile expansée (comparativement au charbon actif), les résultats montrent que le calcul technico-économique n'est pas favorable à leur utilisation puisque l'atteinte rapide de la saturation implique un remplacement fréquent des matériaux.

Efficacité de différents filtres garnis de matériaux adsorbants.

Famille	Filtre à argile expansée (temps de séjour 24 h)	Filtre à zéolite (temps de séjour 24 h)	Filtre à charbon actif en grain (temps de séjour 1,5 h)
Médicaments Betabloquants	4	4	4
Médicaments Antibiotiques	3	3	3
Autres médicaments	4	4	4
HAP	7	7	8
Alkylphénols	2	2	3
Pesticides urée et triazine	4	4	4
Métaux	14	15	14

■ $R_w < 30\%$
■ $30 < R_w < 70\%$
■ $70 < R_w < 90\%$
■ $R_w > 90\%$

Rw = rendement d'élimination entre sortie de procédé de traitement secondaire et sortie de procédé de traitement complémentaire

Le chiffre correspond, pour chaque famille, au nombre de micropolluants pour lequel un rendement R_w a été calculé.

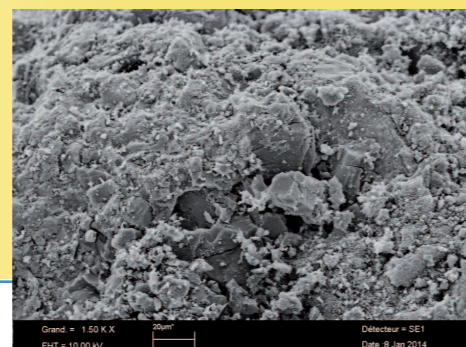
Qu'est-ce que l'adsorption ?

En chimie, l'adsorption, à ne pas confondre avec l'absorption, est un phénomène de surface par lequel des molécules de gaz ou de liquides (adsorbats) se fixent sur une surface solide (adsorbant). Il existe deux types d'adsorption :

- adsorption physique liée aux interactions de Van Der Waals (liaisons faibles de type électromagnétiques) ;
- adsorption chimique qui met en jeu des liaisons chimiques fortes.

Les adsorbants possèdent un nombre limité de sites disponibles pour l'adsorbat. Lorsque tous les sites sont occupés, le matériau a atteint sa saturation, aucune rétention supplémentaire n'est possible.

Grâce à leur structure cristalline en feuillets, les argiles et les zéolites sont de bons adsorbants naturels. Le charbon actif est l'adsorbant le plus utilisé ; il est surtout reconnu pour sa capacité d'adsorption des molécules organiques, mais adsorbe également quelques métaux.



6- Quel devenir des micropolluants au sein de différents procédés de traitement des boues ?

Lors du traitement des eaux usées, la sorption de micropolluants dans les boues est un phénomène majeur : les micropolluants organiques hydrophobes et certains métaux s'y accumulent. Le projet AMPERES (Encart 1 p. 5) a évalué que 60% (sur une liste de 127 micropolluants) des micropolluants quantifiés en entrée de station étaient stockés dans les boues. Etudier le devenir des micropolluants au sein des filières de traitement des boues est donc essentiel.

Trois types de séchage (basse température, haute température, solaire), trois types de compostage (tunnel, casiers, andains), deux types de lits de séchage plantés de

roseaux (à forte et faible fréquence d'alternance alimentation/repos) et une installation de digestion anaérobie, soit neuf procédés de traitement des boues, ont fait l'objet de cette étude. L'objectif était de réaliser des bilans matière par procédé et de déterminer le comportement des micropolluants.

Les modalités d'échantillonnage constituent l'un des principaux enjeux pour s'assurer de la représentativité des prélèvements et déterminer des valeurs fiables de rendements pour la filière boues (R_s). Les analyses de micropolluants dans ces matrices complexes induisent des incertitudes plus importantes que pour les eaux, par

exemple sur les échantillons de condensats (effluents liquides issus des procédés de séchage thermique). L'étude a permis de calculer des rendements d'élimination des micropolluants entre la boue d'entrée et la boue de sortie de chaque procédé étudié. Les rendements globaux incluant les micropolluants stockés dans les condensats et les micropolluants éliminés par volatilisation n'ont pas pu être calculés en raison de difficultés analytiques.

La figure 6 montre ainsi 3 gammes de rendements d'élimination entre l'entrée et la sortie des 9 procédés de

traitement étudiés pour tous les micropolluants pour lesquels un rendement R_s était calculable. Pour la plupart des micropolluants quantifiés, les teneurs sont similaires en entrée et en sortie, et ce quel que soit le procédé de traitement des boues appliqué ($-30\% < R_s < 30\%$). Les micropolluants affectés par le séchage basse température, haute température ou solaire (c'est-à-dire avec $R_s > 30\%$) sont les micropolluants les plus volatils (HAP légers, mercure). Le DEHP et les alkylphénols (sauf 4-Nonylphénol) peuvent être partiellement éliminés ($R_s > 30\%$) lorsqu'un procédé de dégradation biologique aérobie est mise en œuvre (compostage, lits de séchage plantés de roseaux). Les PBDE lourds peuvent être transformés en PBDE de poids moléculaire plus léger (digestion anaérobie, séchage solaire). Cependant, aucun des procédés de traitement des boues étudiés n'a permis une diminution de la charge globale en micropolluants dans les boues ($-30\% < R_s < 30\%$ pour le plus grand nombre de micropolluants). On observe même pour certains micropolluants une accumulation ($R_s < -30\%$), principalement car ce sont des sous-produits de dégradation d'autres micropolluants.

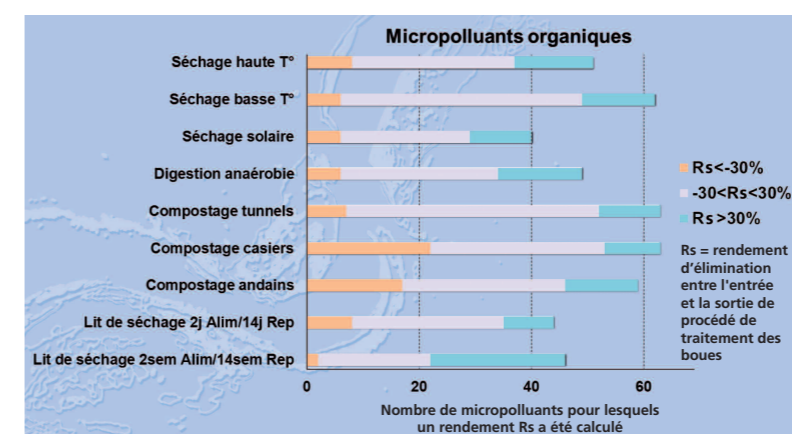


Figure 6. Nombre de micropolluants dans chaque gamme de rendement ($R_s < -30\%$; $-30\% < R_s < 30\%$; $R_s > 30\%$) pour différents procédés de traitement des boues.

Conclusion et perspectives

Le projet ARMISTIQ a montré qu'il est possible d'augmenter les rendements d'élimination des micropolluants dans les STEU. Il est ainsi possible d'optimiser les procédés existants et d'aller plus loin en ajoutant un procédé de traitement complémentaire. Ces actions s'accompagnent toutefois de contraintes techniques d'exploitation et d'une augmentation des coûts de fonctionnement et d'investissement. Par ailleurs, les micropolluants accumulés dans les boues sont peu affectés par les procédés de traitement actuellement utilisés. La réduction à la source reste donc primordiale dans l'objectif d'une réduction globale des émissions de micropolluants.

Le projet ARMISTIQ a également soulevé des pistes de recherche complémentaires, par exemple dans l'objectif de déterminer si les zones de rejets végétalisées¹ (ZRV) pourraient contribuer à l'élimination des micropolluants pour les petites collectivités, ou encore sur le devenir des micropolluants dans les boues notamment après épandage².

Enfin, ARMISTIQ n'avait pas pour objectif l'évaluation de la toxicité des micropolluants transitant dans les STEU

et/ou rejetées dans le milieu récepteur (molécules cibles, métabolites ou sous-produits). Cette question fait, entre autres, l'objet du projet ECHIBIOTEB³. Le sujet de la toxicité des rejets est essentiel. En effet, l'approche par la chimie qui permet de déterminer quelles substances sont présentes en sortie de STEU, souvent à de faibles niveaux de concentrations (de l'ordre du $\mu\text{g/L}$ voire du ng/L) doit aller de pair avec une évaluation des effets sur les milieux récepteurs en tenant compte de leur sensibilité. Cette double approche permettra de mieux cibler les actions opérationnelles à mettre en œuvre.

La réduction à la source est la voie à privilégier. Elle permet de faire porter l'effort sur tous les acteurs contribuant aux émissions de micropolluants. C'est pour encourager ces pratiques que l'Onema, les agences de l'eau et le Ministère chargé de l'écologie ont lancé en 2013 un appel à projets sur ce thème⁴. Par ailleurs, les procédés développés dans ARMISTIQ pourraient être des solutions possibles pour des milieux particulièrement sensibles, lorsque la réduction à la source ne suffit pas.

1- Projet ZRV 2013-2015 financé par l'Onema, coordonné par Irstea, 2- Projet RISQ-PRO 2013-2015 financé par l'Onema, coordonné par l'Inra, 3- Projet ECHIBIOTEB 2011-2014, financé par l'ANR, coordonné par Irstea <http://lechibioteb.irstea.fr>
4- Appel à projets "Innovation et changements de pratiques : micropolluants des eaux urbaines" <http://www.onema.fr/LUTTE-CONTRE-LES-MICROPOLLUANTS>