



Lutte contre les micropolluants des eaux urbaines



AGENCE FRANÇAISE
POUR LA BIODIVERSITÉ
ÉTABLISSEMENT PUBLIC DE L'ÉTAT



Module 2. Traitement

Livrable 2.2. Efficacité et intérêt d'un pilote de bioréacteur à membrane couplé au charbon actif pour le traitement des effluents d'un hôpital généraliste.

Rapport final

Claire ALBASI (Directrice de Recherche, LGC, UMR 5503 INPT-CNRS-UPS)

Delphine LACHASSAGNE (Ingénieure de recherche – Post-doc ; avril 2015-octobre 2016 : LGC, UMR 5503 INPT-CNRS-UPS ; octobre 2016-mars 2017 : Université de Bordeaux, EPOC, équipe LPTC)

Février 2019

Porteurs du projet

Réseau



Auteurs

Claire ALBASI, Directrice de recherche, LGC – INP Toulouse, claire.albasi@ensiacet.fr

Delphine LACHASSAGNE, Ingénieure de recherche – Post-doc ; avril 2015-octobre 2016 : LGC, UMR 5503 INPT-CNRS-UPS ; octobre 2016-mars 2017 : Université de Bordeaux, EPOC, équipe LPTC, delphine.lachassagne@gmail.com

Correspondants

Agence française pour la biodiversité (anciennement ONEMA)

Estérelle VILLEMAGNE, chargée de mission innovation, esterelle.villemagne@afbiodiversité.fr

Agence de l'eau Adour-Garonne

Jean-Pierre REBILLARD, chef de service Valorisation et Connaissance, jean-pierre.rebillard@eau-adour-garonne.fr

Référence du document

Droits d'usage : accès libre

Niveau géographique : national

Couverture géographique : Bassin d'Arcachon

Niveau de lecture : public professionnel

Référence : ALBASI C., LACHASSAGNE D. 2019. REMPAP – Livrable 2.2. - Efficacité et intérêt d'un pilote de bioréacteur à membrane couplé au charbon actif pour le traitement des effluents d'un hôpital généraliste.

Contexte de programmation et de réalisation

Face à la problématique grandissante des micropolluants, le Ministère en charge de l'Ecologie, l'Office national de l'eau et des milieux aquatiques (Onema, aujourd'hui Agence française pour la biodiversité) et les Agences de l'Eau, en partenariat avec le Ministère en charge de la santé, ont lancé en 2013 un appel à projets sur les moyens de lutter contre les micropolluants présents dans les eaux usées urbaines.

Les 13 projets retenus, dont le projet **REMPAR**, mobilisent sur 5 ans (2014 – 2018) des collectivités locales et leurs partenaires locaux privés (entreprises, PME/PMI) et/ou publics (universités, laboratoires de recherches) sur des initiatives innovantes allant des changements de pratiques des usagers et des professionnels jusqu'à la réalisation de nouvelles solutions techniques (aménagement urbains pour la gestion des eaux pluviales, méthodes de diagnostic des pollutions...) prenant en compte la notion de coût /efficacité.

Le SIBA (Syndicat Intercommunal du Bassin d'Arcachon) porte le projet **REMPAR** pour **RE**seau **MicroPolluants** du Bassin d'**AR**cachon.

Le Bassin d'Arcachon, zone de transition d'importance écologique (diversité des milieux, diversité des espèces, zone de reproduction, zone d'hivernage...) et économique (conchyliculture, tourisme, pêche...) constitue un territoire particulièrement sensible aux actions anthropiques. Les récentes « crises écologiques » à l'échelle du Bassin (présence de phycotoxines, mortalité des huitres, forte variabilité du captage du naissain, recul des herbiers à zostères...) ont soulevé la question du niveau d'imprégnation du système par les micropolluants. **REMPAR** répond donc à la volonté des acteurs et des gestionnaires d'établir une veille active sur les micropolluants à l'échelle du Bassin, d'en identifier les origines et d'en réduire l'empreinte par des traitements adaptés ou des mesures de réduction à la source.

Les actions de **REMPAR** se coordonnent autour de cinq grandes thématiques.

Identifier les rejets : en cartographiant l'empreinte de plusieurs familles de micropolluants (métaux, HAP, filtres anti-UV, résidus médicamenteux, biocides...) sur le réseau d'eaux usées, les eaux douces et marines ainsi que les rejets d'eaux pluviales.

Proposer des traitements adéquats : évaluant l'efficacité, l'utilité et le coût de procédés adaptés : bassin d'infiltration pour les eaux pluviales et bioréacteur à membrane pour le traitement des effluents hospitaliers.

Mesurer l'impact : en évaluant la toxicité des rejets hospitaliers et l'efficacité des traitements proposés sur sa réduction, par des analyses écotoxicologiques développées sur les sites expérimentaux.

Adapter nos comportements en conséquence : en conduisant des enquêtes de pratiques dans le but d'identifier des leviers d'action pour la réduction à la source des micropolluants et d'impulser des modifications des pratiques.

Partager et diffuser l'information : **REMPAR** doit créer du lien entre les différents acteurs du territoire (collectivité, industriels, professionnels de santé, universitaires, acteurs économiques locaux et grand public) autour de la thématique des micropolluants dans les eaux (eaux naturelles, usées et pluviales). Il s'agit de partager une culture commune sur les sources et les rejets de micropolluants pour que chacun adapte ses pratiques au mieux ; et au-delà, de croiser les regards de chacun sur l'eau pour en comprendre les différents usages et sensibiliser l'ensemble du territoire à la préservation de cette ressource.

Titre

Efficacité et intérêt d'un pilote de bioréacteur à membranes couplé au charbon actif pour le traitement des effluents d'un hôpital généraliste.

Résumé

Dans cette partie du projet **REMPAR**, un bioréacteur pilote, à l'échelle semi industrielle, a été mis en service sur le réseau des effluents du Pôle de Santé de La Teste de Buch. Il traite environ 500l d'eau par jour sur les 74,4m³ produits par le Pole. Une première campagne expérimentale a consisté à analyser le comportement de ce procédé dans des conditions opératoires spécifiques auparavant éprouvées sur le site hospitalier de Purpan à Toulouse. Un traitement d'affinage par adsorption sur Charbon actif a été dimensionné et expérimenté lors d'une seconde campagne. Les résultats se déclinent d'une part en termes de performances hydrauliques, d'autre part en termes de performance d'élimination de molécules traceurs et de persistance ou diminution d'effets écotoxicologiques (pour cette seconde partie, se référer au livrable 3 de REMPARG).

Il est ainsi démontré que dans les conditions opératoires fixées (temps de séjour hydraulique (35h) et âge de boues élevé (40j), flux de filtration nominal faible (3LMH)), il est possible de conduire un BaM dans des conditions économiquement acceptables, sans rétrolavage ni lavage chimique, seul un rinçage à l'eau chaude est effectué 2 fois par mois. L'eau produite respecte les normes de rejets en terme de macropollution, avec des teneurs de faible amplitude de variation. Ainsi, elle a pu alimenter sans autre forme de traitement une colonne de charbon actif pour l'affinage des micropolluants. Du point de vue de l'élimination des micropolluants, seuls quelques micropolluants persistants ont été suivis, il s'agit de ceux qui conservent leur caractère persistant après traitement par le bioréacteur à membrane seul. Néanmoins, la qualité de l'eau traitée permet d'envisager, avec des facilités, le post-traitement par charbon actif qui présente une efficacité remarquable d'élimination de ces molécules persistantes. Les bioessais viennent confirmer la pertinence de ce couplage BaM/Charbon Actif pour l'élimination d'effets biologiques. L'évaluation technico économique pointe des pistes d'amélioration en lien avec l'échelle de l'installation.

Mots clés (thématiques et géographiques)

Bassin d'Arcachon ; Effluent hospitalier ; Bioréacteur à membranes ; Charbon actif ; Médicaments.

Title

Interest and Efficiency of a MBR pilot combined with active carbon for the treatment of effluents from a general hospital

Abstract

In this part of the **REMPAR** project, a semi-industrial scale membrane bioreactor pilot was put into operation in order to treat part of the effluent of La teste de Buch Health Pole (about 500l of water per day of the 74.4m³ produced) . A first experimental campaign aimed at analysing the behaviour of this process under specific operating conditions previously tested at the Purpan hospital site in Toulouse. An adsorption refining process based on active carbon was designed and tested in a second period. The results vary in terms of hydraulic performance, on the one hand, and in terms of the performance of removal of tracer molecules and persistence or reduction of ecotoxicological effects (for this second part, refer to Deliverables 2.3 and 3). It is thus demonstrated that under the set operating conditions (hydraulic residence time (35h) and high sludge age (40d), low nominal filtration flux (3LMH)), it is possible to conduct the MBR process under economically acceptable conditions, without backwashing or chemical washing, only a hot water rinsing is performed twice a month. The water produced meets the standards for discharges in terms of macropollution, with levels of low amplitude of variation. Thus, it was able to feed a column of activated carbon for the refining of micropollutants without any other form of treatment. From the point of view of the elimination of micropollutants, only a few persistent micropollutants have been followed; these are those which keep their persistent character after treatment by the membrane bioreactor alone. Nevertheless, the quality of the treated water makes it possible, with facilities, to envisage post-treatment with activated carbon, which has a remarkable efficiency of eliminating these persistent molecules. The bioassays confirm the relevance of this MBR/Active Carbon combination for the elimination of biological effects. The technical economic evaluation points to areas for improvement in relation to the scale of the installation

Key words (thematic and geographical area)

Arcachon Bay; hospital wastewater; Membrane Bioreactor; Activated carbon; Pharmaceuticals.

Synthèse pour l'action opérationnelle

Les eaux usées d'origine hospitalière ont été considérées ces dernières années comme une voie d'entrée importante de micropolluants dans le réseau d'assainissement d'eaux usées et dans l'environnement, sans toutefois entrer sous le coup d'une réglementation, hormis pour les déchets radioactifs. Toutefois, les résultats de la plupart des études existantes au niveau national rapportent une faible contribution des rejets hospitaliers par rapport aux rejets urbains, tout en pouvant varier au cas par cas. En conséquence, dans le cadre de **REMPAR**, une étude intégrée des rejets du Pôle de Santé d'Arcachon (PSA) a été menée entre 2013 et 2017.

Cette étude a été rendue possible par la création d'un réseau de collecte spécifique au moment de la création du PSA. Cette volonté résultait du souhait du SIBA de pouvoir caractériser les effluents hospitaliers et de se réserver la possibilité d'isoler cet effluent si un traitement spécifique devait s'avérer nécessaire.

L'étude intégrée des rejets du PSA a été découpée en 3 objectifs

- Un volet « chimique », qui concerne ce livrable ; destiné à mieux connaître les rejets du PSA en termes qualitatifs et quantitatifs, et à établir une comparaison avec les rejets urbains, ce volet est décliné dans le livrable 2.3.
- Un volet « traitement » portant sur l'efficacité et l'intérêt d'un pilote de bioréacteur à membrane couplé à une unité de charbon actif pour le traitement des rejets du PSA, qui concerne aussi le présent rapport.
- Un volet « impact » qui s'est intéressé à la caractérisation des effets écotoxicologiques des rejets du PSA et à leur réduction par le pilote de bioréacteur (livrable 3).

Cette synthèse porte plus particulièrement sur le protocole de traitement : le choix a été fait de s'intéresser au procédé Bioréacteur à membrane, couplé à une colonne de charbon actif. En effet, avec des conditions opératoires adaptées, en particulier un long temps de séjour des boues (âge des boues), les BaM permettent une élimination significative des molécules médicamenteuses. Néanmoins, de façon à encore améliorer l'efficacité du traitement, un couplage avec du charbon actif, susceptible de piéger les polluants a été envisagé. Ce couplage peut s'avérer particulièrement intéressant car le passage par le BaM va éliminer de l'eau la matière organique biodégradable, qui en général pourrait venir en compétition pour l'adsorption sur le charbon actif avec les molécules organiques réfractaires dont l'élimination est visée par cette étape d'adsorption.

Dans **REMPAR**, cette étude organisée sur 18 mois, est la suite logique des travaux menés antérieurement sur l'utilisation d'un pilote BaM pour le traitement des effluents d'un centre anti-cancéreux (ANR CD2I, Panacée, impliquant les partenaires EPOC et LGC, ainsi que Polymem sous-traitant fournisseur du pilote BaM). Les phases de mises au point ont déjà été réalisées lors de ce précédent projet (et en particulier l'évaluation de l'impact des rejets hospitaliers sur le fonctionnement des procédés), et les conditions opératoires établies ont constitué le point de départ des essais « **REMPAR** ».

L'intérêt scientifique de l'étude réside dans le fait que **REMPAR** appuie ses expérimentations sur un hôpital généraliste, contrairement à Panacée où une activité d'oncologique était prédominante. Par ailleurs, dans le cadre du même appel à projets, un pilote identique a été opéré dans le projet SMS et sur une eau usée domestique. Les 2 études ont eu l'appui de compétences toxicologiques dans l'évaluation de leur efficacité, sur la base de biotests utilisant des organismes différents. Cela fait tout l'intérêt de ces études.

Du point de vue hydraulique, les conditions opératoires choisies, qui sont une filtration intermittente (3min ON /3min OFF) à 4 LMH, avec une aération de décolmatage (1min ON

/1moins OFF), ont permis un fonctionnement sur 2 mois sans rétrolavage ni lavage chimique avec une dérive de la pression transmembranaire de l'ordre de 0.025 bar par mois.

Les conditions opératoires biologiques étaient un temps de séjour hydraulique de 24 à 30 heures et un âge de boues (AB) de 20 ou 40 jours, avec une aération bio (1h30 OFF/20 min ON). Des soucis de fonctionnement simultanés à l'essai AB=20 jours ne nous permettent pas de tirer de conclusions (mais des essais dans SMS portant sur le même paramètre AB sont défavorables à sa diminution dans le cadre de l'élimination des micropolluants).

Le suivi **des paramètres physicochimiques** relatant la pollution macroscopique, en entrée de BaM, sortie de BaM et sortie de colonne de charbon actif a permis de confirmer un abattement de la DCO de l'ordre de 95% conduisant à des valeurs inférieures à 15 mg/l. Après ajustement des conditions d'aération du BaM, un abattement de l'azote convenable a aussi été obtenu. Une synthèse de ces données est reportée dans le tableau ci-dessous.

	MES (g/L)		DCO (mgO ₂ /L)		Azote total (mgN/L)	
	Entrée (EH)	Boue	Entrée (EH)	Sortie BaM (perméat)	Entrée (EH)	Sortie BaM (perméat)
Concentration	0,07 - 0,16	3,6 - 6,7	250 - 550	25 - 50	27 - 65	2,5 - 13
%élimination	-		83 - 94%		74 - 95%	

Du point de vue de **l'élimination des micropolluants**, quelques molécules traceurs, dont certaines reconnues réfractaires en traitement conventionnels, ont été suivies (Carbamazépine, Diclofenac, Oxazepam, Sulfaméthoxazole, Triclosan et Triclocarban). Une synthèse des éliminations obtenues est présentée dans le tableau ci-dessous.

	Carbamazépine	Diclofenac	Oxazepam	Sulfaméthoxazole	Triclosan	Triclocarban
Concentration entrée BaM (EH)	100 ng/L – 1 µg/L	100 ng/L – 1 µg/L	500 ng/L – 2,5 µg/L	300 ng/L – 35 µg/L	20 ng/L – 70 ng/L	< 6 ng/L
Concentration sortie BaM (perméat)	100 ng/L – 1 µg/L	100 ng/L – 1 µg/L	2 µg/L – 6 µg/L	200 ng/L – 15 µg/L	< LQ	< LQ
Concentration sortie CAG	< LD	< LD	< LD	< LD	< LD	< LD

Si l'élimination des molécules par le BaM reste partielle, le couplage avec la colonne de charbon actif permet une élimination qui conduit les concentrations en dessous de la limite de détection.

Finalement, ce sont les tests biologiques d'effet qui vont permettre d'achever la description de l'efficacité de ce dispositif pour le traitement des effluents hospitaliers. Les effluents ont été testés sur des lignées cellulaires permettant d'évaluer les activités biologiques liées à la présence de perturbateurs endocriniens (activité œstrogénique), de dioxines et d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Les bio-essais utilisés sont basés sur l'expression de gènes rapporteurs ou endogènes contrôlés par des récepteurs nucléaires et permettent de quantifier la présence de ligands au sein des échantillons. Les analyses montrent que les rejets hospitaliers sont chargés en composés œstrogéno-mimétiques et HAP-like. Le bioréacteur à membrane seul permet d'éliminer jusqu'à 99% l'activité

œstrogénique et 98% l'activité HAP-like observée. L'association bioréacteur à membrane et charbon actif permet d'abaisser l'activité œstrogénique des eaux usées hospitalières en dessous des limites de détection du bio-essai employé. Il est, par contre, constaté qu'une légère activité HAP-like persiste malgré le traitement. Ces tests ont mis en évidence des sensibilités variables des organismes aux différents effets, indiquant toutes les précautions à prendre dans l'interprétation de ce type de données, tout en appréciant leur caractère global.

Une évaluation technico économique, passant par le calcul des OPEX et CAPEX, a été proposée, sur la base des éléments de fonctionnement collectés lors des campagnes d'essais, et permet de conclure à un coût de traitement de l'ordre de 1,5 euros par m³ dans les conditions suivantes :

- une installation dimensionnée pour le site du pôle de santé, soit 7200 m³ par an environ
- sans tenir compte du coût de traitement des boues en excès, ni du coût des interventions techniques pour surveillance et le nettoyage chimique
 - opérée dans les conditions opératoires favorables à la biodégradation d'effets biologiques, potentiellement dus à la présence de micropolluants d'origine pharmaceutiques ; c'est-à-dire avec un âge de boues de 35 jours et un temps de séjour hydraulique de 24h, avec une cinétique de colmatage conduisant à une dérive de pression transmembranaire de l'ordre de 0.05bar par mois.

Dans ce contexte, l'intérêt de ce type de traitement passera par la réutilisation de l'eau. En effet, il faut garder à l'esprit que l'eau ainsi traitée est apte à être rejetée dans le milieu naturel, ou à être réutilisée vers des usages d'irrigation par exemple. Son volume n'impactera alors plus celui des eaux à traiter à la station.

Bibliographie

Besse J.P., Mouret L., Tapie N., Corrales T., Lemenach K., Pardon P., Budzinski H., Jeandenand S. 2019. REMPAP – Livrable 2.3. - Les effluents du Pôle de Santé d'Arcachon : profil en médicaments, tensioactifs et biocides – Comparaison avec les effluents urbains.

Gonzalez P., Gardia-Parège C., Delafoulhouse M., Hourtané O., Budzinski H. 2018. REMPAP - Livrable 3. Évaluation, sur organismes aquatiques et lignées cellulaires, de l'écotoxicité des effluents du Pôle de Santé d'Arcachon et intérêt d'un pilote par bioréacteur à membrane couplé au charbon actif pour le traitement des rejets.

Quesada I., Gonzalez Y., Schetrite S., Budzinski H., Le Menach K., O. Lorain, N. Manier, S. Ait Aissa, P. Pandard, D. Abdelaziz, PANACÉE: évaluation du fonctionnement d'un bioréacteur à membranes immergées traitant des effluents hospitaliers d'oncologie, J. Water Sci., 28 (2015) 1-6.

Livrable SMS 4.2c: Performances opératoires des fonctionnements de référence et spécifique du bioréacteur à membrane.

Sommaire

Introduction	14
1. Généralités sur le processus d'épuration et l'intérêt de la technologie du bioréacteur à membrane (BaM) dans le cadre de REMPARG	15
2. Matériels et Méthodes	18
2.1. Un pilote BaM <i>in situ</i> pour le traitement des effluents d'un hôpital généraliste	18
2.2. Description et suivi du bioréacteur à membrane (BaM)	18
2.2.1. Caractéristiques du bioréacteur à membrane	19
2.2.2. Conditions opératoires du procédé, programmation et contrôle des cycles de fonctionnement	20
2.2.3. Suivi des paramètres physico-chimiques et performances épuratoires	22
2.2.4. Suivi des micropolluants	22
3. Résultats du fonctionnement du BaM : campagne n°1 (juin – août 2015)	24
3.1. Préambule	24
3.2. Résultats	24
4.2.1. Evolution de la pression transmembranaire (PTM)	24
4.2.2. Evolution des paramètres physico-chimiques (efficacité épuratoire)	25
3.3. Bilan sur les dysfonctionnements et les solutions envisagées	26
4. Résultats du fonctionnement du BaM : campagne n°2 (octobre – décembre 2015)	27
4.1. Préambule	27
4.2. Résultats	27
4.2.1. Conditions opératoires de fonctionnement	27
4.2.2. Evolution de la PTM	27
4.2.3. Evolution de la concentration en MES de la boue	28
4.2.4. Evolution des paramètres physico-chimiques (efficacité épuratoire)	29
5. Résultats du fonctionnement du BaM pour le traitement de l'effluent hospitalier du PSA lors de la campagne n°3 (janvier – août 2016) et couplage avec adsorption sur charbon actif	31
5.1. Récapitulatif des campagnes réalisées et présentation de la campagne 3	31
5.2. Campagne 3 (janvier-août 2016) : résultats de fonctionnement du BaM seul (performances hydrauliques et épuratoires)	32
5.2.1. Performances hydrauliques	32
5.2.2. Performances épuratoires	32
5.2.2.1. Evolution de la concentration et de la production de boue dans le bioréacteur ..	32
5.2.2.2. Evolution des paramètres physico-chimiques en entrée et en sortie du bioréacteur	35
5.2.2.3. Récapitulatif de performances de la dépollution macroscopique.	36
5.3. Tests d'adsorption du perméat sur charbon actif : tests en batch au laboratoire	37
5.3.1. Résumé du protocole expérimental	37
5.3.2. Résultats : concentrations en micropolluants à l'équilibre après adsorption	37
5.4. Ajout d'une colonne de charbon actif en grain (CAG) sur la file perméat	37
5.4.1. Caractéristiques du dispositif	38
5.4.2. Amélioration des performances épuratoires (macropollution)	39
6. Résultats d'élimination des micropolluants	40
6.1. Campagne 2 (BaM seul) : octobre – décembre 2015	40

6.1.1. Résidus de médicaments (quatre traceurs).....	40
6.1.2. Biocides : triclosan et triclocarban.....	41
6.2. Campagne 3 : janvier – août 2016	41
6.2.1. BaM seul	41
6.2.1.1. Résidus de médicaments (quatre traceurs).....	41
6.2.1.2. Biocides : triclosan et triclocarban	43
6.2.2. BaM et colonne de CAG	43
6.2.2.1. Résidus de médicaments (quatre traceurs).....	43
6.2.2.2. Biocides : triclosan et triclocarban	45
6.3. Bilan des concentrations en micropolluants mesurées lors des différentes campagnes 46	
7. Evaluation technico-économique du Bioréacteur à membrane pour le traitement des effluents du Pôle de santé	49
7.1 Eléments du CAPEX (investissement)	50
7.2 Eléments de l'OPEX (exploitation)	50
7.3 Synthèse.....	52
8. CONCLUSION GENERALE.....	53
Références bibliographiques	55

Liste des figures

Figure 1 : Schéma du bioréacteur à membranes selon le concept de la gamme IMMEM™ de la société Polymem (source : site web de polymem)	16
Figure 2 : Plan de situation du Pôle de Santé et de la station d'épuration avec le pilote BaM installé sur le site (commune de La Teste de Buch) (vue google maps).....	18
Figure 3 : Photographies du BaM vue de face (a), de la disposition des cuves et du container contenant le BaM à la STEP de La Teste (b) et des modules membranaires (c).....	19
Figure 4 : Schéma de principe du BaM (Polymem)	19
Figure 5 : Schéma de principe du BaM avec le circuit des boues et du perméat lors des cycles	20
Figure 6 : Schéma du principe de fonctionnement du pilote BaM.....	22
Figure 7 : Evolution du débit de production du perméat et de la PTM en fonction du temps (campagne 1).....	24
Figure 8 : Evolution des concentrations en DCO, azote, ammonium et nitrates dans le perméat au cours du temps (campagne 1).....	25
Figure 9 : Evolution de la PTM en fonction du temps (campagne 2)	28
Figure 10 : Graphiques d'évolution de la concentration en MES de l'effluent hospitalier (a) et de la boue (b) et de la production de biomasse cumulée (c) (campagne 2).....	29
Figure 11 : Graphiques d'évolution des concentrations et des abattements en DCO (a), azote total (b), ions ammonium (c) et nitrates (d) en entrée (eau brute, effluent hospitalier prétraité) et en sortie (perméat) du BaM (campagne 2)	30
Figure 12 : Chronologie du fonctionnement du BaM pendant la campagne n°3	31
Figure 13 : Evolution de la PTM au cours du temps lors de la campagne 3 (janvier à août 2016)	32
Figure 14 : Evolution en fonction du temps de la concentration en MES de la boue dans le bioréacteur (a), de la concentration en MES dans l'effluent hospitalier alimentant le BaM (b) et de la charge massique (c)	33
Figure 15 : Production de biomasse cumulée (en considérant différents pourcentages de la concentration en MES en entrée non biodégradable).....	34
Figure 16 : Evolution des concentrations et des abattements en DCO (a), azote total (b), ions ammonium (c) et nitrates (d) en entrée et en sortie du BaM	36
Figure 17 : Concentrations en micropolluants à l'équilibre dans le perméat après adsorption sur des concentrations croissantes en CAG	38
Figure 18 : Dispositif de post-traitement du perméat du BaM par adsorption sur colonne de charbon actif en grain.....	38
Figure 19 : Concentrations en médicaments en entrée et en sortie du BaM (phase dissoute, campagne octobre-décembre 2015)	40
Figure 20 : Concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et sortie du BaM (phase dissoute, campagne octobre-décembre 2015)	41
Figure 21 : Concentrations en médicaments en entrée et en sortie du BaM (phase dissoute, mars- juin 2016).....	42
Figure 22 : Concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et en sortie du BaM (phase dissoute, mars- juin 2016).....	43
Figure 23 : Concentrations en médicaments en entrée et sortie du BaM et en sortie de colonne de charbon (phase dissoute, juillet- août 2016)	44
Figure 24 : Concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et sortie du BaM et en sortie de colonne de charbon (phase dissoute, juillet- août 2016)	45
Figure 25: Capex du BaM traitant les effluents du Pôle de santé	50
Figure 26 : OPEX membrane de REMPARG	51
Figure 27 : Opex membrane Neophil	51
Figure 28 : Prix de revient et comparaison des membranes.....	52

Liste des tableaux

Tableau 1 : Principaux avantages des bioréacteurs à membranes par rapport aux boues activées ...	17
Tableau 2 : Exemple de valeurs calculées et enregistrées dans l'automate du BaM.....	21
Tableau 3 : Conditions opératoires de fonctionnement du BaM (juin-août 2015).....	21
Tableau 4 : Récapitulatif des campagnes de fonctionnement du BaM réalisées	23
Tableau 5 : Paramètres physico-chimiques de l'effluent hospitalier en entrée du BaM (23/06/15).....	25
Tableau 7 Conditions opératoires de fonctionnement (campagne 2)	27
Tableau 8 : Valeur de la pente de chaque palier de production de boue identifié sur les courbes de production de boue cumulée pour chacun des apports en MES de l'eau d'entrée considérés	35
Tableau 9 : Performances épuratoires (physico-chimie) du BaM pendant la campagne 3	36
Tableau 10 : Concentrations moyennes en DCO et azote en entrée et en sortie du BaM et en sortie de la colonne de charbon	39
Tableau 11 : Récapitulatif des concentrations en médicaments en entrée et en sortie du BaM et du CAG	46
Tableau 12 : Récapitulatif des concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et en sortie du BaM et du CAG	46
Tableau 13 : Rendements d'élimination des quatre traceurs médicaments pendant les deux campagnes du BaM	46
Tableau 14 : Rendements d'élimination des deux biocides pendant les campagnes du BaM	47
Tableau 15 Eléments de dimensionnement et évaluation technico-économique du procédé BaM	49

Introduction

Les stations d'épuration sont le réceptacle d'une très grande diversité d'eaux usées à traiter. Elles peuvent être issues d'activités domestiques, industrielles ou artisanales et d'activités de soins. Ces effluents contiennent de nombreuses substances chimiques, dont certaines sont qualifiées de « micropolluants », car présentes à de très faibles concentrations, de l'ordre du nanogramme au microgramme par litre. Les micropolluants sont des molécules minérales ou organiques issues des industries chimiques, pharmaceutiques ou de l'agriculture, qui peuvent, au-delà d'un certain seuil, avoir des impacts négatifs sur les écosystèmes et l'environnement. Or, du fait de ces activités humaines, les micropolluants se retrouvent dispersés dans les milieux aquatiques et, plus généralement, dans les différents compartiments de l'environnement (Kümmerer, 2001). En outre, même à des concentrations très faibles, certaines substances sont susceptibles de perturber assez fortement les écosystèmes, par exemple en provoquant des effets de types perturbateur endocrinien (dérèglement du système hormonal), ou, pour les antibiotiques, de jouer un rôle majeur dans la dissémination de l'antibiorésistance (Stalder et al., 2012). La maîtrise du rejet des micropolluants dans l'environnement est devenue un enjeu majeur de préservation des ressources et de santé publique.

Dans le contexte du projet REMPARG (REseau MicroPolluants du bassin d'ARcachon), qui a pour buts de tracer les micropolluants dans les eaux naturelles, pluviales et usées et de réduire leur empreinte en proposant des traitements adéquats, le module « traitement », dans lequel s'inscrit ce présent rapport, s'intéresse tout particulièrement aux eaux usées hospitalières générées par le Pôle de Santé d'Arcachon situé sur la commune de La Teste-de-Buch. Le SIBA (Syndicat Intercommunal du Bassin d'Arcachon), pilote du projet REMPARG, a souhaité, au moment de la construction du Pôle de Santé, isoler les rejets d'eaux usées de ce centre pour les amener directement à la station d'épuration sans mélange, *via* la réalisation d'un poste de pompage dédié.

Cette particularité va permettre d'agir à la source par la mise en œuvre, par l'équipe du LGC, d'un pilote de traitement de type bioréacteur à membrane (BaM). Dans REMPARG, cette étude est la suite logique des travaux menés par le LGC sur l'utilisation d'un pilote BaM pour le traitement des effluents d'un hôpital, centre anti-cancéreux (ANR CD2I, Panacée, impliquant les partenaires EPOC et LGC, ainsi que Polymem sous-traitant fournisseur du pilote BaM). Les phases de mises au point ayant été réalisées lors de ce précédent projet (et en particulier l'évaluation de l'impact des rejets hospitaliers sur le choix des conditions opératoires pour un fonctionnement adapté du procédé). Il sera possible dans REMPARG d'investiguer plus avant l'évaluation de l'efficacité et l'intérêt technico-économique de ce type de traitement pour un centre hospitalier généraliste pour conduire à la réduction de la toxicité des rejets.

1. Généralités sur le processus d'épuration et l'intérêt de la technologie du bioréacteur à membrane (BaM) dans le cadre de REMPLAR

Les Eaux Résiduaires Urbaines (ERU) sont des eaux usées de provenances diverses, telles que l'activité domestique, l'activité industrielle, l'activité hospitalière ainsi que les précipitations dans le cas des réseaux unitaires (par opposition aux réseaux de collecte séparatifs). Dans les ERU, différentes formes de pollutions sont identifiées et doivent être traitées dans les stations d'épuration. On distingue plusieurs formes de pollution : les matières carbonées, azotées et phosphorées, ainsi que les pollutions liées aux micropolluants minéraux et organiques. En effet, les activités domestiques, industrielles, agricoles ou médicales entraînent le rejet dans les eaux usées de nombreuses substances chimiques vers les stations d'épuration. Ces substances sont rejetées pour la plupart à de faibles concentrations, d'où le terme de « micropolluants » (concentrations de l'ordre du ng/L au µg/L). Les micropolluants sont ainsi définis comme des molécules minérales ou organiques, issues de l'agriculture, de la chimie ou de l'industrie, qui peuvent avoir, au-delà d'un certain seuil, des impacts négatifs sur les écosystèmes et l'environnement. En outre, on distingue les polluants réglementés et, par opposition, les polluants émergents (non réglementés en France à ce jour).

Généralement, les effluents hospitaliers sont collectés au niveau des stations d'épuration où les résidus de l'activité hospitalière sont traités après mélange avec les eaux usées domestiques urbaines. Les effluents issus d'activités de soins constituent alors pour les systèmes de traitement collectifs une source d'introduction ponctuelle de composés chimiques spécifiquement utilisés dans les hôpitaux et qui présentent des risques écotoxiques pour l'environnement (en particulier les composés cytostatiques pour le traitement des cancers) (Escher *et al.*, 2011). Dans la plupart des études concernant la caractérisation des effluents hospitaliers, les paramètres physico-chimiques sont comparables à ceux d'une eau usée urbaine peu chargée. Cependant, les paramètres physico-chimiques globaux ne constituent pas des éléments tangibles permettant de définir la « toxicité » potentielle de ces effluents et la conséquence de leur raccordement à des stations d'épuration urbaines. En effet, les effluents issus de l'activité hospitalière sont la source d'une pollution médicamenteuse et microbiologique (espèces antibio-résistantes par exemple). Parmi les molécules chimiques rejetées dans les effluents hospitaliers, on retrouve bien évidemment les antibiotiques. Dans les établissements de santé français, la consommation moyenne en antibiotiques d'un patient hospitalisé est de l'ordre de 10 fois supérieure à la consommation moyenne en ville. Or, la fraction non métabolisée des antibiotiques consommés est excrétée via l'urine et les fèces et aboutit dans les eaux usées (Passerat *et al.*, 2010).

En France, les stations d'épuration les plus répandues utilisent un **procédé de traitement biologique conventionnel par boues activées** (CAS : Conventional Activated Sludge) pour traiter la pollution organique dans les eaux résiduaires urbaines. Ce type de traitement comprend :

- un bassin d'aération contenant les boues activées : la biomasse épuratrice, sous forme d'agrégats (flocs de boues), est mise en contact avec l'eau à traiter. Ces agrégats biologiques sont composés d'une communauté diversifiée de micro-organismes, de matière organique non vivante, particulièrement les polymères extracellulaires (principalement sucres et protéines) et d'une fraction inorganique. Les microorganismes dégradent la matière organique dissoute ou en suspension dans l'eau.
- une étape de décantation permettant la séparation des microorganismes de l'eau épurée. Les boues sont également extraites du bassin de décantation (ou clarificateur) pour être traitées dans une file spécifique et une partie est renvoyée dans le bassin biologique pour maintenir une concentration donnée.

L'efficacité de l'étape de clarification est très dépendante de la capacité à décanter des flocs de boues. L'apparition de microorganismes filamenteux conduit par exemple au foisonnement de la boue et réduit la capacité à concentrer les flocs de boue en fond de décanteur.

Ces stations d'épuration conventionnelles mettant en œuvre des traitements biologiques ne sont pas en mesure d'éliminer efficacement les micropolluants dont les résidus de médicaments

(De Wever *et al.*, 2007 ; Steger-Hartmann *et al.*, 1997). En effet, de récentes études menées lors des projets AMPERES (2006-2009) et ARMISTIQU (2010-2014) ont montré qu'au cours du traitement biologique dans les stations conventionnelles, une partie des micropolluants est susceptible d'être retrouvée dans la boue purgée. Globalement, les micropolluants sont éliminés des eaux à plus de 70%, mais les deux tiers de ces substances sont transférés aux boues, le solde étant transformé naturellement par biodégradation.

Pour le **procédé de traitement à boues activées sous aération prolongée**, il est mis par exemple en évidence qu'environ 50% des substances sont éliminées à plus de 70%. Certaines substances sont principalement éliminées par biodégradation (triclosan, hormones estrogéniques, analgésiques) mais la plupart le sont plutôt par adsorption sur la boue (en particulier les PBDEs, HAPs ou métaux comme Hg, Fe, Cu, Cr, Zn, Cd, Pb). Néanmoins, certaines substances ne sont éliminées qu'à moins de 30%, c'est-à-dire que le traitement biologique s'est avéré quasiment inefficace quant à leur élimination. Il s'agit des composés suivants : pesticides polaires (glyphosate, AMPA (produit de dégradation du glyphosate), diuron), quelques substances pharmaceutiques (carbamazépine, diclofénac, propranolol) et des carboxylates d'alkylphénols, ces derniers présentant des rendements négatifs car ils sont produits par l'oxydation biologique des alkylphénols. Les études concluent également que 15% des substances prioritaires, 30% des molécules organiques et 90% des substances pharmaceutiques se retrouvent dans les rejets en sortie de stations d'épuration conventionnelles à des concentrations supérieures à 100 ng/L en raison de leurs propriétés physicochimiques et de leur concentration élevée en entrée de stations d'épuration.

Il existe cependant d'autres types de procédés de traitement des eaux usées, comme **les bioréacteurs à membrane (BaM)**. Un BaM est une installation d'épuration en continu qui combine une dégradation biologique dans le bioréacteur et une séparation physique de l'eau et de la biomasse dans la membrane (Figure 1). Le bioréacteur est un réacteur biologique au sein duquel se développe une biomasse qui dégrade la pollution dissoute de l'effluent.

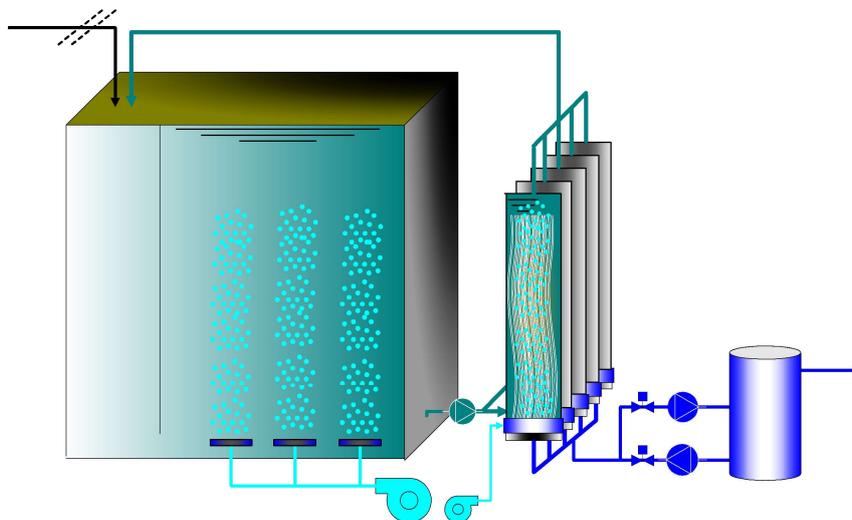


Figure 1 : Schéma du bioréacteur à membranes selon le concept de la gamme IMMEM™ de la société Polymem (source : site web de polymem)

Le BaM s'avère être un procédé de traitement des eaux efficace avec de nombreux avantages par rapport à un procédé de traitement conventionnel par boues activées (Tableau 1). Les BaM ont, en particulier, l'avantage d'être modulaires : il est possible d'augmenter ou de réduire la surface membranaire mise en jeu en fonction des besoins en flux à traiter.

Comme tout procédé à membrane, le BaM présente l'inconvénient de devoir pallier au phénomène inhérent de colmatage des membranes. Pour se faire, une insufflation d'air est imposée au pied des modules membranaires. Ce poste est, en général, à l'origine de la moitié de la dépense énergétique de ces procédés. Un autre inconvénient des BaM est la maintenance requise par les membranes qui nécessite un niveau de technicité particulier et des manipulations délicates (produits détergents). Cela conduit à la mise sur le marché récente par Polymem d'une nouvelle

membrane « autonettoyante » qui a été testée dans le cadre du projet SMS et qui sera considérée dans l'évaluation technico-économique de ce projet REMPLAR.

Tableau 1 : Principaux avantages des bioréacteurs à membranes par rapport aux boues activées

	Caractéristiques	Avantages
Installation	Compacité	Modularité Adaptabilité pour l'amélioration d'installations existantes
Exploitation	Fiabilité	Excellente qualité de l'eau traitée malgré des concentrations en polluants élevées en entrée et des à-coups de charge
Procédé	Qualité de l'eau	Meilleure élimination de : DCO, DBO ₅ , Azote et Phosphore Séparation quasi-totale liquide/biomasse (bactéries) Possibilité de recyclage de l'eau
	Biomasse	Rétention totale de la biomasse Âges de boues élevés et découplés de temps de séjour hydraulique Capacité à traiter des composés récalcitrants (phénols...) Faibles production de biomasse Forte concentration de biomasse dans le réacteur (habituellement 8 à 15 g.L ⁻¹) Résistance aux à-coups de charges

Le bioréacteur à membranes a donc fait son apparition depuis quelques années. Ce **procédé consiste à substituer le décanteur par une membrane**. Elle assure la rétention de la totalité de la biomasse, conduisant à l'amélioration des performances du traitement par un choix de conditions opératoires adaptées, en particulier, un long temps de séjour des boues (âge de boue). Le BaM, de par la souplesse de son mode opératoire (âge de la boue, temps de séjour hydraulique, productivité...), permet une élimination significative des molécules médicamenteuses et donc apparaît être une technologie de premier choix pour l'élimination des micropolluants (Bernhard *et al.*, 2006 ; Delgado *et al.*, 2010 ; Delgado *et al.*, 2011).

Néanmoins, dans le cadre du projet REMPLAR et suite aux précédents travaux menés dans le cadre de l'ANR Panacée par le LGC, un couplage du bioréacteur avec du charbon actif susceptible de piéger les polluants récalcitrants est envisagé afin d'améliorer encore l'efficacité du traitement. En effet, le BaM produisant une eau de qualité régulière et avec des teneurs en macropolluants bien en deca des normes de rejet, cette eau paraît bien adaptée pour l'alimentation d'un poste d'affinage au charbon actif dont la gestion sera alors facilitée par les faibles teneurs en matières colloïdales en particulier, évitant les problèmes de saturation du charbon.

Pour mémoire des résultats de l'ANR Panacée se dégagent les conclusions essentielles suivantes (Quesada *et al.*, 2015) : du point de vue des performances hydrauliques, les longs temps de séjours appliqués, des boues ou hydraulique, conduisent à des ouvrages de génie civil important mais les faibles flux appliqués aux membranes, conjointement à une filtration séquentielle, sans rétrolavage, et avec de simples lavages à l'eau chaude ont conduit à une durabilité d'exploitation compétitive du point de vue énergétique. Sur le plan de l'élimination des micropolluants, élimination observée sous l'angle des concentrations en molécules dans le perméat, les taux d'élimination des 56 molécules visées sont disparates, de 100 à 0% d'élimination, mais conformes à ceux retrouvés dans la littérature pour des procédés à boues activées. Le résultat remarquable porte sur l'élimination de la toxicité, appréciée par divers tests d'éco et de géno-toxicité : un abattement notable d'effets évalués est mis en évidence. De ce fait, même si le traitement n'abat pas les molécules choisies, il est néanmoins à l'origine de l'abattement d'effets toxiques, qui ne sont probablement pas dus aux molécules qui avaient été visées, mais à d'autres. Ces abattements d'effets toxiques ne sont pas systématiquement retrouvés en sortie de station d'épuration. Ce résultat est confirmé dans le projet SMS (BaM conditions opératoires similaires sur eau domestique), ce qui apporte du crédit à l'utilisation de BaM pour l'élimination de micropolluants.

2. Matériels et Méthodes

2.1. Un pilote BaM *in situ* pour le traitement des effluents d'un hôpital généraliste

Le pôle de santé est un hôpital généraliste de 390 lits construit en 2013 sur la commune de La Teste-de-Buch (Figure 2). Des interrogations ont été soulevées par le SIBA quant à l'impact des micropolluants rejetés par l'hôpital et à leur toxicité potentielle. Au moment de la construction du Pôle de Santé, le SIBA a alors souhaité isoler les effluents de ce centre pour les amener directement à la station d'épuration sans mélange avec les eaux usées, via la réalisation d'un poste de pompage dédié. Cette particularité permet d'agir à la source par la mise en place à la station d'épuration de La Teste, par l'équipe du LGC, d'un pilote de traitement de type bioréacteur à membrane (BaM) pour traiter les effluents hospitaliers (Figure 2). Dans cette phase d'étude, 400L par jour environ seront traités, ce qui ne constitue pas la totalité des effluents (environ 80 m³/jour).



Figure 2 : Plan de situation du Pôle de Santé et de la station d'épuration avec le pilote BaM installé sur le site (commune de La Teste de Buch) (vue google maps).

2.2. Description et suivi du bioréacteur à membrane (BaM)

Le 16 avril 2015 le pilote a été acheminé dans un container sur la station d'épuration de La Teste de Buch et installé à proximité d'une cuve recevant les effluents hospitaliers du pôle de santé (Figure 3). Le pilote utilisé pour l'étude est un bioréacteur à membrane immergée externe, dont le schéma détaillé est présenté sur la Figure 4.

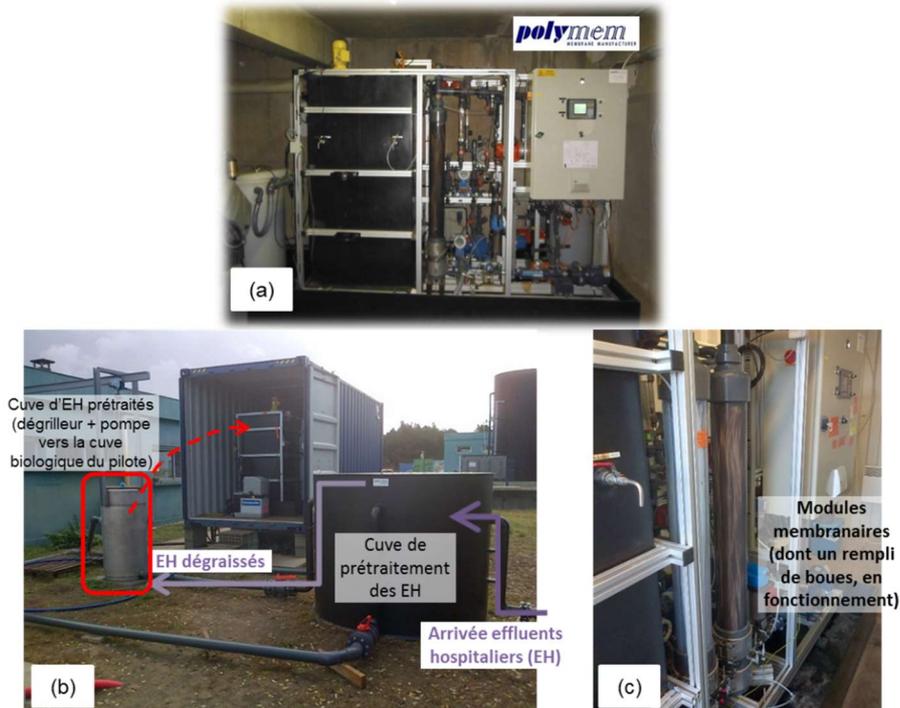


Figure 3 : Photographies du BaM vue de face (a), de la disposition des cuves et du container contenant le BaM à la STEP de La Teste (b) et des modules membranaires (c)

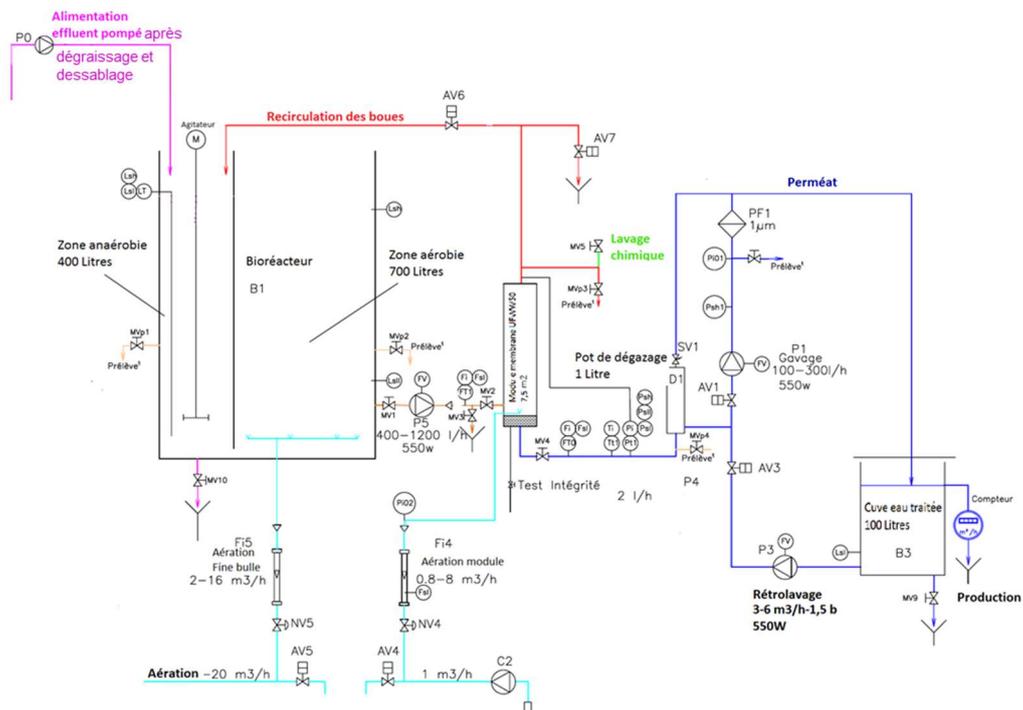


Figure 4 : Schéma de principe du BaM (Polymem)

2.2.1. Caractéristiques du bioréacteur à membrane

Les effluents hospitaliers sont pompés dans une cuve en inox contenant un dégrilleur et envoyés dans la cuve biologique du bioréacteur B1 (Figure 4) d'une capacité maximale de 1100L contenant les boues activées. Afin d'assurer les processus de nitrification et dénitrification inhérents au procédé de traitement conventionnel par boues activées, la cuve biologique est séparée en deux

zones : une zone anoxique (capacité maximale de 400L) et une zone aérobie (capacité maximale de 700L) comprenant un système d'aération pour apporter l'oxygène aux microorganismes.

La liqueur mixte (mélange des boues activées et des effluents) est ensuite entraînée en continu vers un module d'ultrafiltration UFWW50 de surface membranaire de 8m² à fibres creuses en polysulfone de taille de pores 0,2 µm, de la gamme IMMEM. Cette filtration est semi-frontale externe/intérieure : les boues restent à l'extérieur alors que l'eau est aspirée à l'intérieur des fibres. Durant cette opération, un flux d'air est envoyé par le bas du module de filtration pour éviter le colmatage des membranes par les matières en suspension, le colmatage augmentant la pression transmembranaire et diminuant le flux. L'eau traitée par cette filtration est appelée perméat. Le perméat est acheminé vers un pot de dégazage et un post-filtre afin d'éliminer l'air ayant pu traverser les membranes et les derniers résidus puis est récupéré dans une cuve.

Un entretien régulier du module membranaire est nécessaire, du fait, d'une part, d'un colmatage « mécaniquement réversible », qui peut être éliminé par un flux de bulles d'air homogène ou par rétrolavage à l'eau, et d'autre part, d'un colmatage « mécaniquement irréversible » qui peut nécessiter un lavage chimique. Dans le cadre de cette étude, aucun lavage chimique n'a été nécessaire sur la durée de l'expérimentation.

2.2.2. Conditions opératoires du procédé, programmation et contrôle des cycles de fonctionnement

Le procédé est séquencé en trois étapes : la production, la relaxation et le rétrolavage (Figure 5).

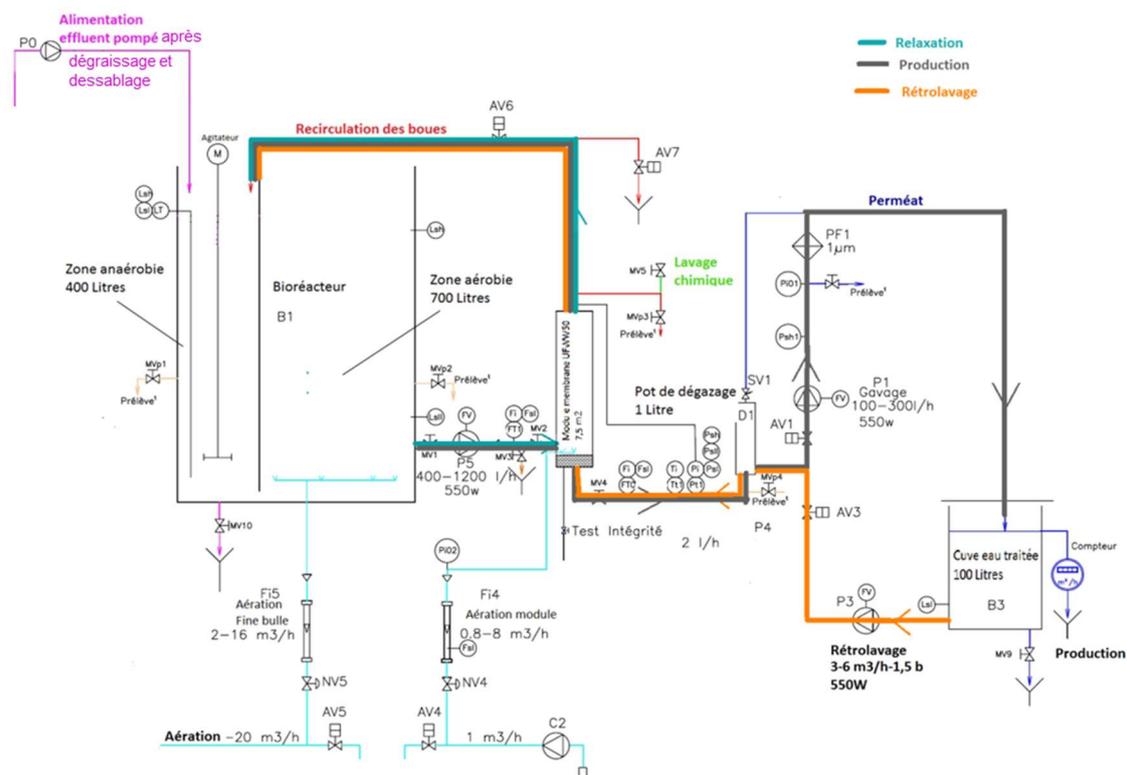


Figure 5 : Schéma de principe du BaM avec le circuit des boues et du perméat lors des cycles

Durant la phase de « production » d'une durée de 3 minutes, la filtration membranaire de la boue dans le module sous aération s'effectue et le perméat est produit : le débit de production s'affiche et la PTM augmente (en valeur absolue).

Ensuite, une phase de « relaxation » de 3 minutes a lieu : les boues sont recirculées du module de filtration vers la cuve biologique du bioréacteur.

A la fin de la relaxation, un « rétrolavage » de 5 secondes est réalisé durant lequel une petite quantité de perméat est recirculé dans le module à contre-courant.

Lors de toutes ces étapes, des cycles d'aération « grosses bulles » autour du module membranaire sont programmés (maîtrise du colmatage).

Une étape supplémentaire de « purge » des boues est également programmée (fréquence et durée) en fonction de l'âge de boues souhaité (temps de séjour des boues).

Le cycle du BaM peut donc se résumer selon l'équation suivante :

$$RLX_1.t_{x1} + F.t_f + RLX_2.t_{x2} + RL.t_{RL}$$

avec :

- RLX_1 : étape de purge des boues associée au temps t_{x1}
- F : étape de filtration associée au temps t_f
- RLX_2 : étape de relaxation associée au temps t_{x2}
- RL : étape de rétrolavage associée au temps t_{RL}

Le pilote est contrôlé par un automate « UNITRONICS Vision 280 » installé dans l'armoire électrique. Il permet de contrôler (valeurs seuils d'alarmes et de défauts) et d'enregistrer tous les paramètres de fonctionnement (débit de recirculation et production, température, pression transmembranaire, durée de chaque cycle, volume de la cuve biologique...).

Les Tableau 2 et 3 récapitulent les différentes valeurs calculées et appliquées à l'automate pour un temps de séjour hydraulique de 24h et un âge de boues de 40 jours.

Tableau 2 : Exemple de valeurs calculées et enregistrées dans l'automate du BaM

Paramètres	Valeurs	Alarme / Défaut
Débit de recirculation	235 L/h	
Débit de production	33 L/h (instantané)	
Fréquence purge boue	12 h	
Durée purge boue	1 min 36 s	
Temps de séjour hydraulique	24 h	
Température	5 à 35°C	
Pression transmembranaire		-0,25 bar / -0,5 bar
Volume cuve bioréacteur	390 – 410 L	350 L

Tableau 3 : Conditions opératoires de fonctionnement du BaM (juin-août 2015)

Paramètres	Valeurs
Durée de la phase de filtration	3 min
Durée de phase de relaxation	3 min
Temps de séjour hydraulique (TSH)	24h
Age de boues (AB)	40 jours
Volume cuve bioréacteur	400 L
Débit de recirculation des boues (Qrecirc)	235 L/h
Débit de production du perméat (phase de filtration, Qprod)	33 L/h instantané 16 L/h moyen
Fréquence de la purge boue	12 h
Durée purge boue	1 min 36 s

L'étude engagée dans REMPLAR avec le BaM fait suite à celle menée dans l'ANR PANACEE (sur les effluents de l'hôpital Purpan à Toulouse) qui a permis d'optimiser les paramètres opératoires de fonctionnement du bioréacteur : temps de séjour hydraulique (TSH), âge de boue (AB), débit de recirculation des boues, débit de filtration, phases d'aération et d'anoxie, évolution de la pression transmembranaire (PTM), ainsi que le bon fonctionnement des cycles de filtration pilotés par l'automate.

Le BaM étant ici soumis à un nouvel agencement et traitant des effluents de qualité différente (à caractériser), ces paramètres sont donc à ajuster au cours des différentes campagnes de traitement réalisées. Les valeurs indiquées tableau 3 sont les valeurs de départ. Les ajustements seront indiqués au fur et à mesure des expérimentations s'il y a lieu.

Un récapitulatif des différentes campagnes de fonctionnement du BaM réalisées d'avril 2015 à fin 2016 est présenté dans le Tableau 4 .

2.2.3. Suivi des paramètres physico-chimiques et performances épuratoires

Pour assurer un fonctionnement optimal, le suivi du pilote passe par la détermination des paramètres épuratoires classiques : pH, conductivité, DCO, Nt, NO₃⁻, NO₂⁻, NH₄⁺ de l'eau d'entrée du pilote (effluent hospitalier) et de l'eau traitée (perméat). La concentration en MES des boues ainsi que la production de boues sont également déterminées.

La Figure 6 schématise les différents points de prélèvement.

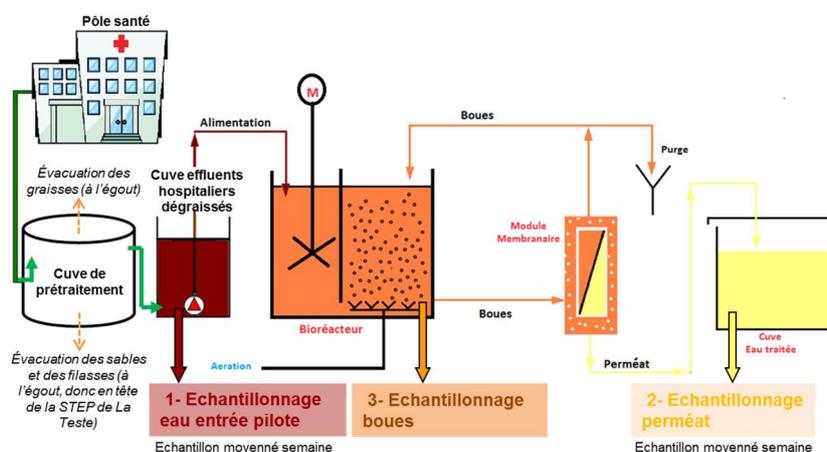


Figure 6 : Schéma du principe de fonctionnement du pilote BaM

Ces analyses sont réalisées sur les échantillons d'eaux et de boues échantillonnés de la manière suivante :

- eau brute (effluent hospitalier, entrée pilote) et perméat (sortie pilote) : moyenné sur la semaine (préleveur automatique ISCO réfrigéré en entrée et électrovanne temporisée reliée à une glacière électrique en sortie)
- boue : ponctuel en fin de chaque semaine d'échantillonnage des eaux

Les méthodologies classiques sont adoptées, micro méthode Hach pour le DCO et les formes azotée. Les MES sont évaluées par pesée des poids secs sur des échantillons de 50ML. Les prélèvements sont récapitulés dans le Tableau 4 . Ces paramètres ont conduit à l'analyse de 3 prélèvements sur 54 semaines, pour 7 paramètres plus 1 paramètre sur 2 prélèvements soit échantillons, soit 1242 points analytiques générés pour des paramètres physicochimiques.

2.2.4. Suivi des micropolluants

L'objectif principal de l'étude étant de déterminer l'efficacité du traitement par le BaM sur l'élimination des micropolluants générés par les effluents du pôle de santé, une liste de molécules traceurs connues pour être réfractaires au traitement biologique conventionnel a été déterminée. Il s'agit de quatre médicaments : carbamazépine (anti-épileptique), diclofénac (anti-inflammatoire non stéroïdien), oxazépam (anxiolytique), sulfaméthoxazole (antibiotique) ; et de deux biocides : triclosan et triclocarban.

Les analyses des molécules suivies sont effectuées au LPTC de Bordeaux et les méthodologies explicitées dans le livrable 2.3. Ces analyses ont nécessité le traitement de 27 échantillons, soit la génération de $2 \times 27 = 54$ analyses (entrée et perméat) + les 6 échantillons issus du traitement au charbon actif.

Tableau 4 : Récapitulatif des campagnes de fonctionnement du BaM réalisées

Conditions	Campagne 1 (mise en route)	Campagne 2	Campagne 3	Campagne 3 suite : ajout colonne de charbon actif (CAG) sur la file perméat
Date campagne – Durée	du 16/06/15 au 05/08/15 – 50j – 9 semaines	Du 06/10/15 au 16/12/15 – 70j 11 semaines	Du 13/01/16 au 02/08/16 – 202j 30 semaines	Du 11/07/16 au 02/08/16 – 23j 4 semaines
Nombre d'âges de boue (AB)	1 AB + 10j	3 AB + ½	5 AB	
Durée d'un AB	40 jours	20 jours	40 jours	
TSH (temps de séjour hydraulique)	24h			
Débit recirculation (Boue)	235 L/h			
Débit de production (perméat)	16 L/h (moyen)			Après CAG : 9-10 L/h
Volume bioréacteur	400 L			
Cycle nitrification - dénitrification	Oui (3h sans aération, 40min avec aération)		Oui (1h30 sans aération, 20min avec aération)	
Prétraitement de l'effluent	Non	Oui	Oui	Oui
Echantillonnage micropolluants (semaines)	Non	S44 à S50 (7)	S11 à S19, puis S20 à S25 (14)	S28-a, S28-b, S29-a, S29-b, S30-a et S30- b (6)

3. Résultats du fonctionnement du BaM : campagne n°1 (juin – août 2015)

3.1. Préambule

Mi-avril 2015 le pilote a été acheminé à la station d'épuration de La Teste-de-Buch et placé à proximité d'une cuve en inox recevant les effluents du pôle de santé. Après divers tests préalables (hydrauliques, électriques, mécaniques...) la première campagne de fonctionnement du BaM a débuté le 16 juin 2015. Le bioréacteur a étéensemencé avec 600L de boues provenant de la station d'épuration de de Cazaux

3.2. Résultats

4.2.1. Evolution de la pression transmembranaire (PTM)

Les graphiques de la Figure 7 représentent les évolutions du débit de production de perméat et de la pression transmembranaire en fonction du temps avec des notifications lors des opérations de lavage du module ou d'apparition de défauts de fonctionnement.

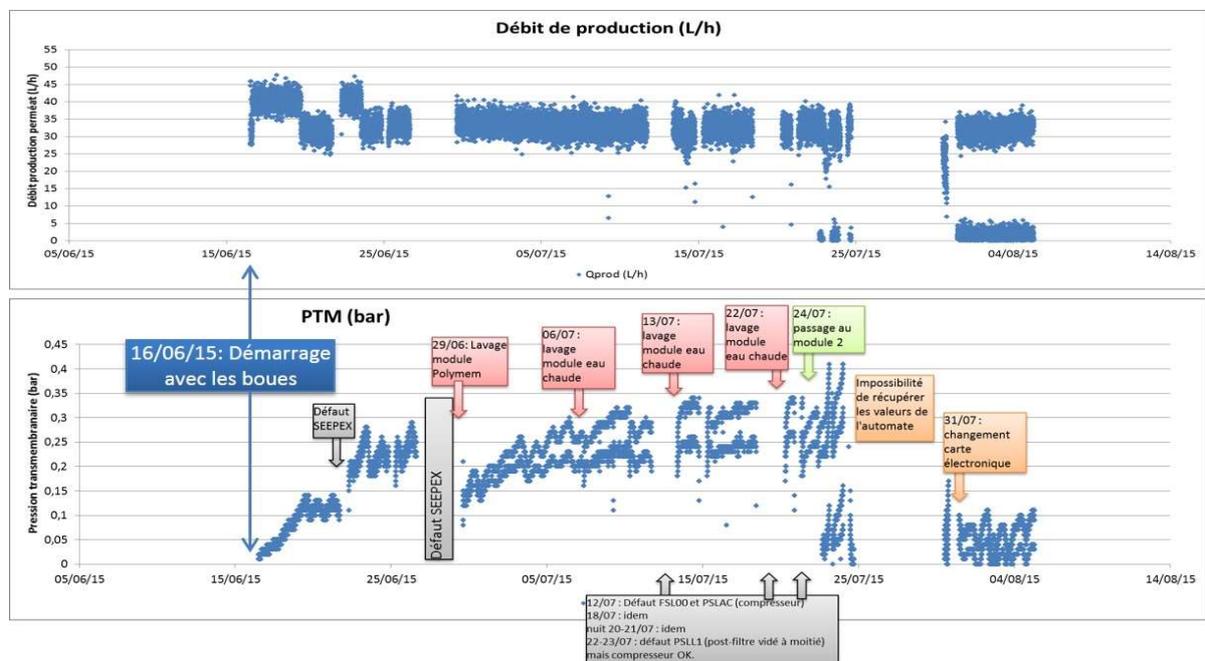


Figure 7 : Evolution du débit de production du perméat et de la PTM en fonction du temps (campagne 1)

La Figure 7 permet de constater une augmentation très rapide la PTM dans le module dès la mise en route du pilote. Les lavages réguliers à l'eau chaude ne suffisent pas à éliminer la boue qui colmate les membranes et à faire baisser la PTM. Ceci est notamment lié à une aération non homogène du module du fait d'un manque de tiges d'aération en bas du carter du module. Ce point a été pris en considération et corrigé pour les campagnes suivantes. Cette phase initiale et ce dysfonctionnement pointent l'importance de l'homogénéité de cette aération nécessaire à la limitation du colmatage.

D'autre part, de nombreux défauts de pression et de débits sont apparus régulièrement sur l'automate. Une des causes de ce problème est l'arrêt du compresseur alimentant les électrovannes contrôlant les pompes du fait de la présence d'une sécurité thermique entraînant sa disjonction lors d'un fonctionnement trop fréquent (capacité volumique d'air trop faible) et à la température très élevée dans le container. De même, un nouveau compresseur a été mis en place à la fin de la campagne.

4.2.2. Evolution des paramètres physico-chimiques (efficacité épuratoire)

Lors de cette campagne, des premières analyses physico-chimiques ont été réalisées sur un prélèvement ponctuel de l'effluent hospitalier en entrée du pilote. Les résultats sont présentés dans le Tableau 5. Le perméat en sortie du pilote a également été caractérisé, d'abord sur des prélèvements ponctuels, puis sur des échantillons moyennés sur plusieurs jours. La Figure 8 présente les graphiques d'évolution des concentrations en DCO, azote total, nitrates et ions ammonium du perméat en fonction du temps.

Tableau 5 : Paramètres physico-chimiques de l'effluent hospitalier en entrée du BaM (23/06/15)

Eau brute (effluent hospitalier) dégrillée : prélèvement ponctuel le 23/06/2015					
MES (mg/L)	DCO (mgO ₂ /L)	Nt (mgN/L)	NH ₄ ⁺ (mgNH ₄ ⁺ /L)	NO ₃ ⁻ (mgN-NO ₃ ⁻ /L)	pH
132	483	55	53,6	0,344	7,58

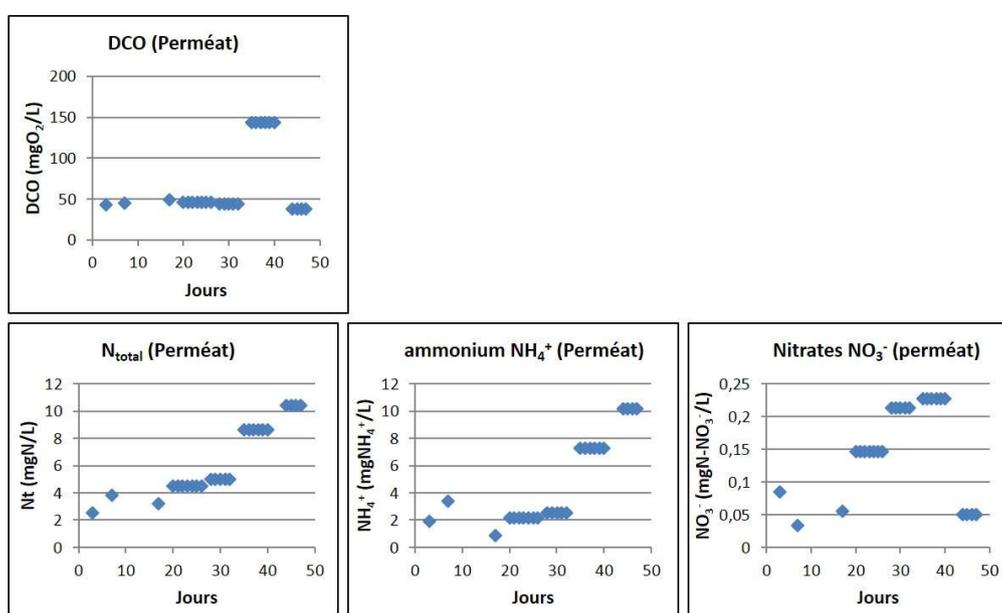


Figure 8 : Evolution des concentrations en DCO, azote, ammonium et nitrates dans le perméat au cours du temps (campagne 1)

La concentration en **DCO** de l'effluent en entrée du pilote est de 483 mgO₂/L tandis qu'elle ne dépasse pas 50 mgO₂/L dans le perméat en sortie, ce qui donne **un abattement de 90%**.

En ce qui concerne **l'azote total**, l'abattement compris **entre 80% et 91%** sur toute la durée de la campagne de traitement.

Cependant, il est à noter qu'entre le 35^{ème} et le 40^{ème} jour de fonctionnement la DCO dans le perméat est montée à 150 mg/L. A cette même période, les effluents du pôle de santé arrivant à la station étaient colorés en violet, phénomène correspondant à un déversement accidentel dans les eaux usées d'une grande quantité de fuchsine, un colorant violet servant à la coloration de Gram des bactéries et utilisé par le laboratoire d'analyses bactériologiques du pôle de santé.

De plus, à partir du jour 35, les concentrations en ions ammonium et nitrates ont augmenté, signifiant une baisse de l'efficacité des étapes de nitrification et de dénitrification du traitement biologique dans le bioréacteur. Ce phénomène est corrélé avec les fréquents arrêts du pilote causés par des défauts de fonctionnement durant lesquels l'efficacité de filtration par les membranes n'était pas optimale et l'alimentation en eau brute n'était pas assurée (l'arrivée de l'eau brute étant également freinée par un encrassement important de la crépine de sécurité située après le dégrilleur sur le tuyau d'arrivée de l'eau brute plongeant dans la cuve biologique du bioréacteur).

3.3. Bilan sur les dysfonctionnements et les solutions envisagées

Tous les problèmes de fonctionnement évoqués dans le paragraphe précédent ont donc soulevé de nombreuses questions, d'une part, concernant le fonctionnement de l'automate (problèmes d'affichages électroniques liés à la forte température dans le container), et d'autre part, concernant le dispositif de dégrillage dans la cuve en inox contenant la pompe d'alimentation du pilote en effluents hospitaliers, ceux-ci étant très colmatant (présence important de dépôts graisseux et de fillasses).

Une intervention de la société Polymem (concepteur du BaM) sur site le 29/07/2015 a été nécessaire afin de procéder à un nettoyage du module en sortant les membranes du carter, et de faire un point sur les différents dysfonctionnements et problèmes rencontrés.

Ainsi, outre le changement nécessaire de la carte électronique de l'automate, il a été décidé d'installer, avec l'aide de Eloa (exploitant de la station d'épuration de La Teste de Buch), une cuve de prétraitement (traitement primaire) de l'effluent hospitalier (dégraissage, décantation et élimination des fillasses) en amont du pilote.

4. Résultats du fonctionnement du BaM : campagne n°2 (octobre – décembre 2015)

4.1. Préambule

Le 06 octobre 2015 a débuté la deuxième campagne de fonctionnement du BaM avec les boues et les effluents hospitaliers (prétraité grâce à la cuve de dégraissage et d'élimination des filasses). De même que pour la précédente campagne, les boues activées qui ont servi à l'inoculation du bioréacteur proviennent de la station d'épuration de de Cazaux, elles ont été acheminées et versées grâce à un camion hydrocureur.

4.2. Résultats

4.2.1. Conditions opératoires de fonctionnement

La campagne réalisée ici s'est faite avec **un âge de boues plus court, de 20 jours**, afin de juger de l'efficacité du traitement en termes d'élimination des micropolluants en fonctionnant avec un âge de boues plus faible que celui optimisé lors des précédents travaux de PANACEE, ce qui permettrait de réduire le Génie civil de l'installation.

Les conditions opératoires de fonctionnement du BaM pour cette deuxième campagne sont récapitulées dans le Tableau 6 **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**

Tableau 6 Conditions opératoires de fonctionnement (campagne 2)

Paramètres	Valeurs
Durée de la phase de filtration	3 min
Durée de phase de relaxation	3 min
Temps de séjour hydraulique (TSH)	24h
Age de boues (AB)	20 jours
Volume cuve bioréacteur	400 L
Débit de recirculation des boues (Qrecirc)	235 L/h
Débit de production du perméat (phase de filtration, Qprod)	33 L/h instantané 16 L/h moyen
Fréquence de la purge boue	12 h
Durée purge boue	2 min 33 s

4.2.2. Evolution de la PTM

Pendant la phase de production du perméat, la pression transmembranaire augmente pendant le cycle pour assurer la filtration par les membranes, puis diminue lors de la phase de relaxation. Le graphique de la Figure 9 représente l'évolution de la PTM (uniquement les valeurs enregistrées pendant les phases de production) au cours du temps.

Le module ayant été nettoyé, les tiges d'aération en bas du module fournissant une aération homogène autour des fibres, le colmatage des membranes était alors très faible, la PTM a ainsi augmenté de façon lente et progressive, ne dépassant pas 0,2 bar contrairement à la précédente campagne.

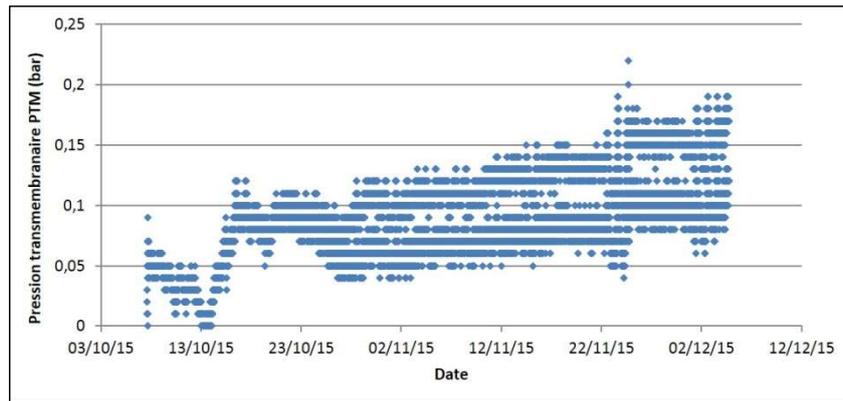


Figure 9 : Evolution de la PTM en fonction du temps (campagne 2)

4.2.3. Evolution de la concentration en MES de la boue

Au cours de cette campagne, des mesures régulières de la concentration en MES des boues ont été réalisées. Nous cherchons à caractériser le développement des microorganismes par la quantification de la biomasse qui se développe, au travers du paramètre MES, matières en suspension. Pour se faire, il faut dissocier la croissance des microorganismes de l'apport de MES non biodégradables par l'eau à traiter. Puis, nous calculons cette production cumulée de biomasse, qui suit une droite en fonction du temps en régime stationnaire.

La production de biomasse sur un intervalle de temps Δt a également été calculée, selon deux hypothèses :

- Si les MES apportées par l'eau d'entrée sont non biodégradables :

$$P_{\text{boue}} = (V_{\text{cuve}} \times \Delta[\text{MES}]_{\text{boue}}) + (Q_{\text{purge}} \times [\text{MES}]_{\text{boue}} \times \Delta t) - (Q_{\text{entrée}} \times [\text{MES}]_{\text{entrée}} \times \Delta t)$$
- Si les MES apportées par l'eau d'entrée sont biodégradées :

$$P_{\text{boue}} = (V_{\text{cuve}} \times \Delta[\text{MES}]_{\text{boue}}) + (Q_{\text{purge}} \times [\text{MES}]_{\text{boue}} \times \Delta t)$$

Puis la production de biomasse cumulée est calculée en faisant la somme de la production de biomasse instantanée : $P_{\text{boue cumulée}} = \sum_{\text{jour}=1}^i P_{\text{boue}}$

avec : P_{boue} : production de biomasse instantanée pour un intervalle de temps Δt (g)

$P_{\text{boue cumulée}}$: production de biomasse cumulée (g)

$[\text{MES}]_{\text{boue}}$: concentration en MES de la boue (g/L)

Δt : facteur d'intervalle de temps entre deux mesures

Q_{purge} : débit de purge des boues (L/j)

$Q_{\text{entrée}}$: débit d'alimentation en eau brute (L/j)

$[\text{MES}]_{\text{entrée}}$: concentration en MES de l'eau brute alimentant le pilote (g/L)

$\text{DCO}_{\text{entrée}}$: concentration en DCO de l'eau brute en entrée du pilote (g/L)

$\text{DCO}_{\text{perméat}}$: concentration en DCO du perméat en sortie du pilote (g/L)

Les concentrations en MES de l'effluent hospitalier et de la boue et les courbes de production de biomasse sont présentées sur la Figure 10.

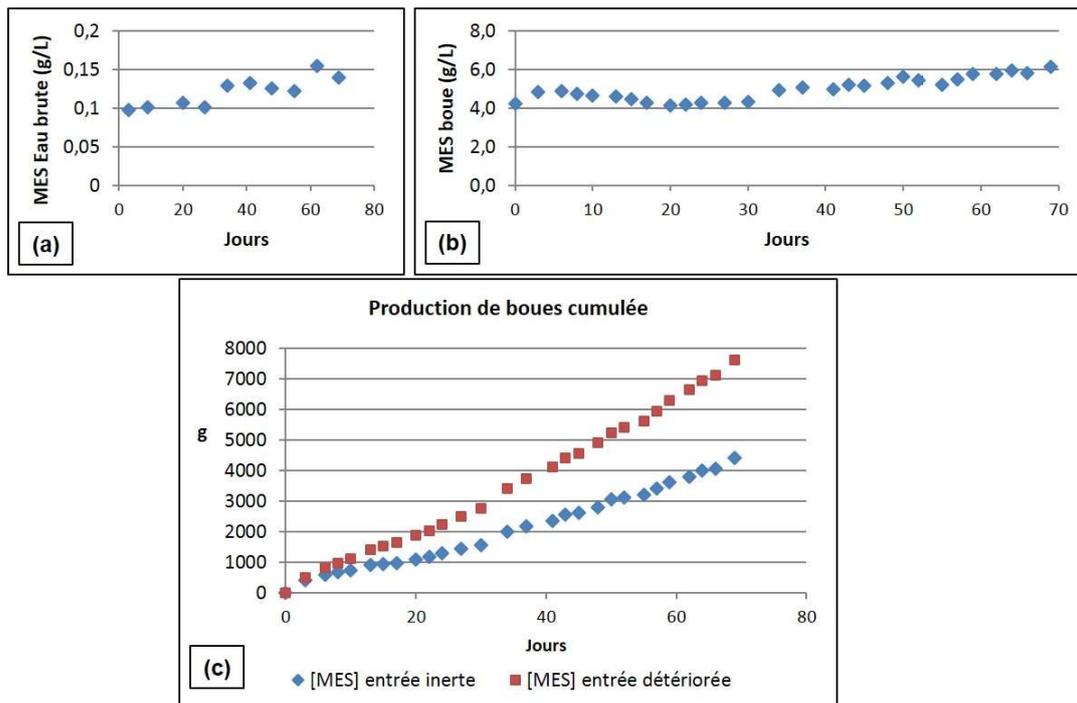


Figure 10 : Graphiques d'évolution de la concentration en MES de l'effluent hospitalier (a) et de la boue (b) et de la production de biomasse cumulée (c) (campagne 2)

L'eau brute (l'effluent hospitalier prétraité) alimentant la cuve biologique du bioréacteur a une concentration en MES comprise entre 100 et 150 mg/L (Figure 10-a).

La concentration en MES des boues du bioréacteur (Figure 10-b) est comprise entre 4 et 6 g/L durant les 70 jours de la campagne de traitement, ce qui est cohérent pour un procédé de traitement par bioréacteur à membranes, et au vue de la charge à traiter.

Par ailleurs, la production de biomasse cumulée (Figure 10-c) est en croissance continue, avec linéarité à partir du 30^{ème} jour environ soit 1,5 âge de boues après le démarrage, indiquant la stabilité du système jusqu'à la fin de l'expérimentation à 70 jours, soit 1,3 âge de boues supplémentaire.

4.2.4. Evolution des paramètres physico-chimiques (efficacité épuratoire)

Le suivi de l'abattement des concentrations en DCO et en azote par des bilans entrée/sortie des effluents du pilote traduit **l'efficacité du traitement en matière d'élimination de la pollution carbonée et azotée inhérente à l'épuration des eaux usées**. Les résultats sont présentés sur les graphiques de la Figure 11.

Après 30 jours de fonctionnement (durée équivalente à un âge de boue et demi) **l'abattement de la DCO, de l'azote total et de l'ammonium** était très bon (**près de 90%**). Cependant, à partir du 20^{ème} jour, la concentration en nitrates en sortie dans le perméat a commencé à augmenter tandis que l'ammonium était bien éliminé. Cela signifie que l'étape de nitrification (élimination de NH₄⁺) en phase aérobie est correctement réalisée et que la qualité de la boue en termes de présence de bactéries nitrifiantes est bonne, mais que l'élimination des nitrates lors de la nitrification en phase d'anoxie n'est plus efficace à partir de cette date.

Afin de résoudre ce problème pour la prochaine campagne de fonctionnement, il a été décidé de modifier les paramètres d'aération de la boue afin d'avoir un découpage plus marqué des phases d'anoxie et d'aérobie : 1h30 de non aération suivi de 20 min d'aération (au lieu de 3h sans aération suivi de 40min d'aération pour cette campagne 2).

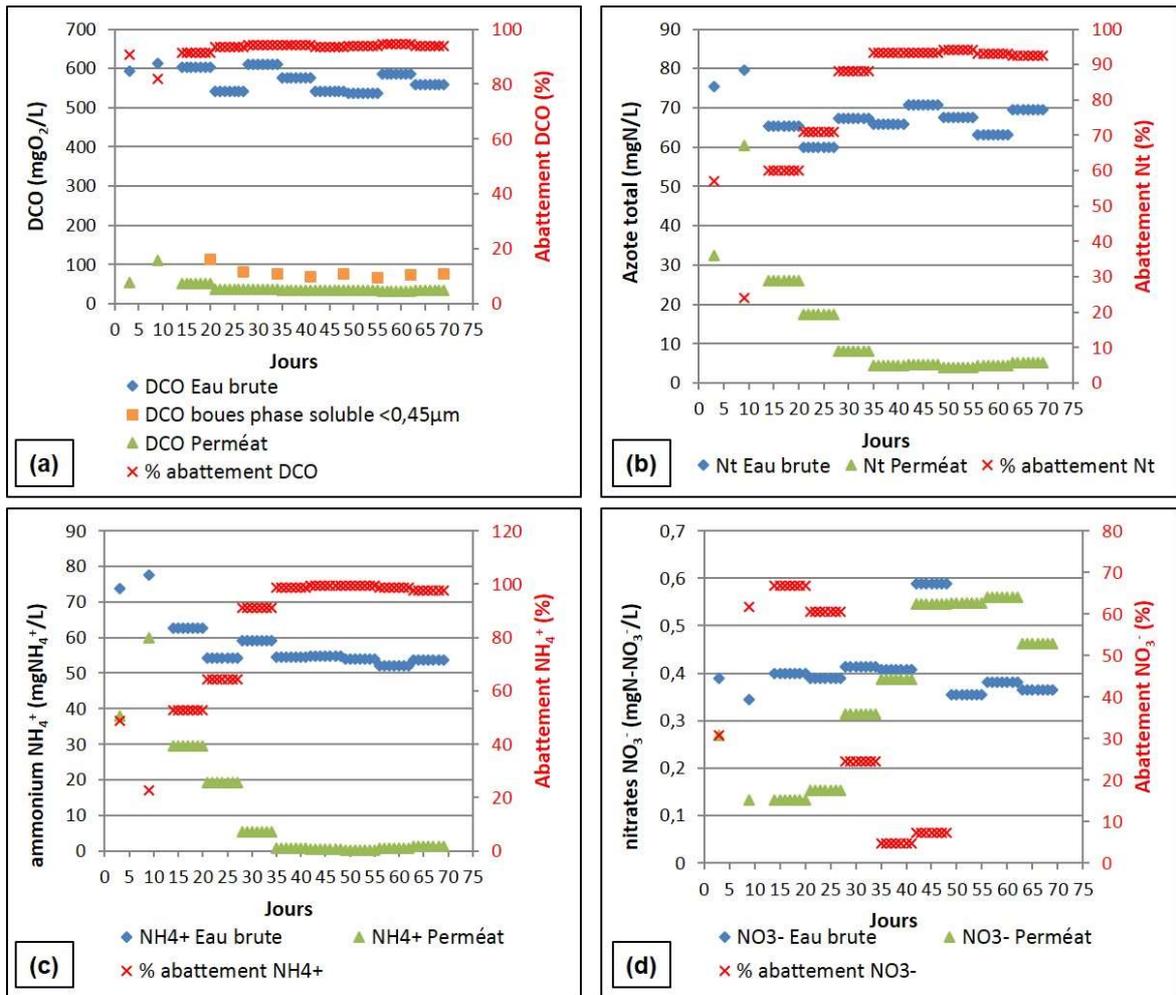


Figure 11 : Graphiques d'évolution des concentrations et des abatements en DCO (a), azote total (b), ions ammonium (c) et nitrates (d) en entrée (eau brute, effluent hospitalier prétraité) et en sortie (perméat) du BaM (campagne 2)

5. Résultats du fonctionnement du BaM pour le traitement de l'effluent hospitalier du PSA lors de la campagne n°3 (janvier – août 2016) et couplage avec adsorption sur charbon actif

5.1. Récapitulatif des campagnes réalisées et présentation de la campagne 3

La Figure 12 donne un aperçu daté du fonctionnement de la campagne n°3, ainsi que du suivi écotoxicologique mené sur cette campagne.

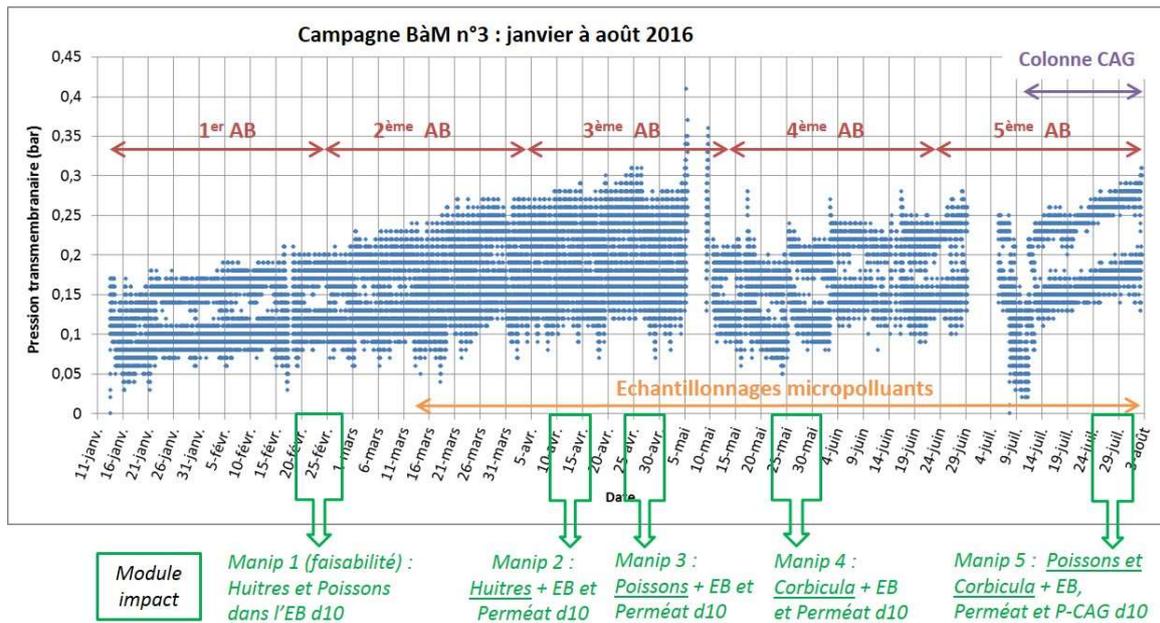


Figure 12 : Chronologie du fonctionnement du BaM pendant la campagne n°3
AB= âge de boues

En janvier 2016, une troisième campagne a été mise en route, pour un fonctionnement du BaM avec un TSH de 24h et un âge de boue de 40 jours. De la même manière que pour les campagnes précédentes, les suivis hydraulique et physico-chimique des performances du BaM ont été réalisés. Mi-mars, après une durée équivalente à un âge de boue et demi, l'échantillonnage spécifique pour la détection des micropolluants en entrée, en sortie et dans la boue du pilote, a débuté.

Lors de cette campagne, une colonne de charbon actif en grain (CAG) a été installée dans le circuit de la file perméat en post-traitement afin d'améliorer les performances de traitement du BaM et d'évaluer l'élimination des micropolluants en sortie ainsi que la réduction de la toxicité potentielle de l'effluent.

Parallèlement au fonctionnement du BaM, des bioessais sur des poissons (*Danio rerio*) et des bivalves (huîtres *Crassostrea gigas*, corbicules *Corbicula fluminea*), avec mesures de marqueurs biochimiques et génétiques, ont été réalisés afin de déterminer la toxicité des effluents du Pôle de Santé et l'efficacité du BaM et du charbon sur sa réduction (Figure 12 et livrable 3 du « Module Impact »).

5.2. Campagne 3 (janvier-août 2016) : résultats de fonctionnement du BaM seul (performances hydrauliques et épuratoires)

5.2.1. Performances hydrauliques

Pendant la phase de production du perméat, la pression transmembranaire (PTM) assure la filtration par les membranes dans le module. La Figure 13 représente l'évolution de la PTM au cours du temps (janvier à août 2016). La PTM a augmenté de 0,05 bar en deux mois sans aucun lavage du module membranaire. Des lavages hebdomadaires à l'eau chaude ont ensuite suffi à limiter le colmatage dans les membranes et à pallier l'augmentation de PTM (du 15 mars au 25 avril) jusqu'à un démontage complet du module et un rinçage des fibres au jet d'eau pour enlever la boue résiduelle (le 10 mai). Aucun lavage chimique n'a été réalisé, ce qui prouve l'efficacité du procédé, la qualité de filtration de la boue, et qui justifie le choix d'un flux de perméation nominal faible (4 L/h.m²).

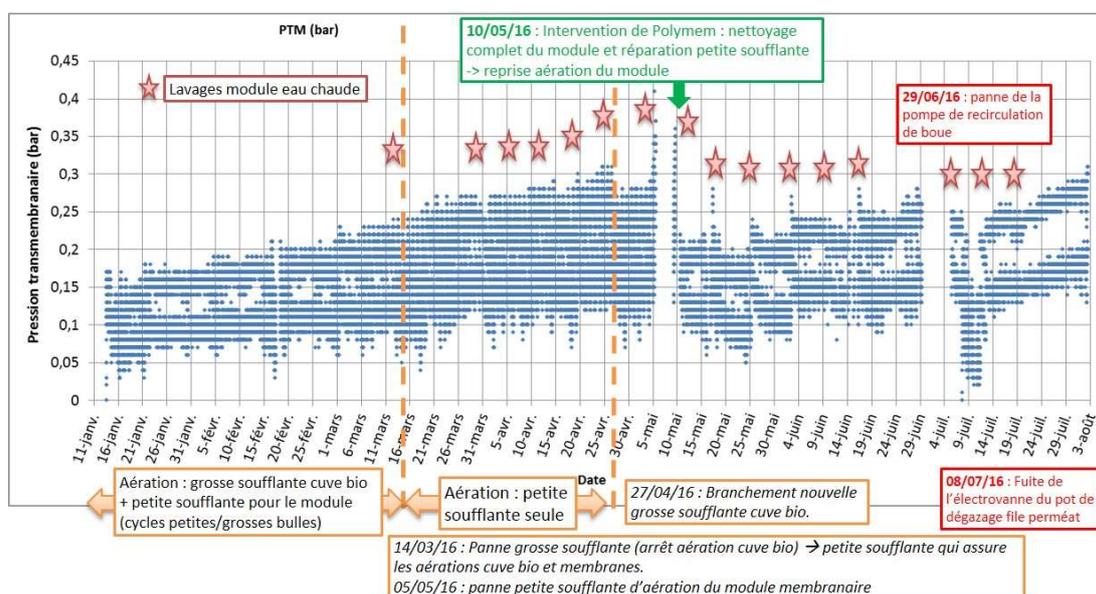


Figure 13 : Evolution de la PTM au cours du temps lors de la campagne 3 (janvier à août 2016)

5.2.2. Performances épuratoires

5.2.2.1. Evolution de la concentration et de la production de boue dans le bioréacteur

Au cours de cette campagne, des mesures régulières de la concentration en MES de l'eau d'entrée dans le pilote (effluent hospitalier) et de la boue dans le bioréacteur ont été réalisées. La charge massique estimée entrante dans le bioréacteur ainsi que la production de biomasse au cours du temps ont été calculées. Les graphiques d'évolution sont présentés sur la Figure 14 et la Figure 15.

La charge massique C_m (en kg DBO₅/kg MVS/j) a été calculée selon l'équation suivante :

$$C_m = \frac{\text{alimentation}}{\text{boue}} = \frac{\text{kg DBO}_5 \text{ estimée /j}}{\text{kg MVS boue}}$$

avec : DBO₅ estimée = DCO_{entrée}/3

La production de biomasse au cours du temps a également été calculée, selon plusieurs hypothèses, adoptant la même logique que pour la campagne précédente :

- Si les MES apportées par l'eau d'entrée sont inertes (cas le plus défavorable) :

$$P_{\text{boue}} = (V_{\text{cuve}} \times \Delta[\text{MES}]_{\text{boue}}) + (Q_{\text{purge}} \times [\text{MES}]_{\text{boue}} \times \Delta t) - (Q_{\text{entrée}} \times [\text{MES}]_{\text{entrée}} \times \Delta t)$$
- Si les MES apportées par l'eau d'entrée sont détériorées (cas le plus favorable) :

$$P_{\text{boue}} = (V_{\text{cuve}} \times \Delta[\text{MES}]_{\text{boue}}) + (Q_{\text{purge}} \times [\text{MES}]_{\text{boue}} \times \Delta t)$$
- Si les MES apportées par l'eau d'entrée sont inertes à 80% par exemple :

$$P_{\text{boue}} = (V_{\text{cuve}} \times \Delta[\text{MES}]_{\text{boue}}) + (Q_{\text{purge}} \times [\text{MES}]_{\text{boue}} \times \Delta t) - 0.08 \times (Q_{\text{entrée}} \times [\text{MES}]_{\text{entrée}} \times \Delta t)$$

Puis la production de biomasse cumulée est calculée en faisant la somme de la production de biomasse instantanée : $P_{\text{boue cumulée}} = \sum_{\text{jour}=1}^i P_{\text{boue}}$

avec : P_{boue} : production de biomasse instantanée pour un intervalle de temps Δt (g)

$P_{\text{boue cumulée}}$: production de biomasse cumulée (g)

$[\text{MES}]_{\text{boue}}$: concentration en MES de la boue (g/L)

Δt : facteur d'intervalle de temps entre deux mesures

Q_{purge} : débit de purge des boues (L/j)

$Q_{\text{entrée}}$: débit d'alimentation en eau brute (L/j)

$[\text{MES}]_{\text{entrée}}$: concentration en MES de l'eau brute alimentant le pilote (g/L)

$\text{DCO}_{\text{entrée}}$: concentration en DCO de l'eau brute en entrée du pilote (g/L)

$\text{DCO}_{\text{perméat}}$: concentration en DCO du perméat en sortie du pilote (g/L)

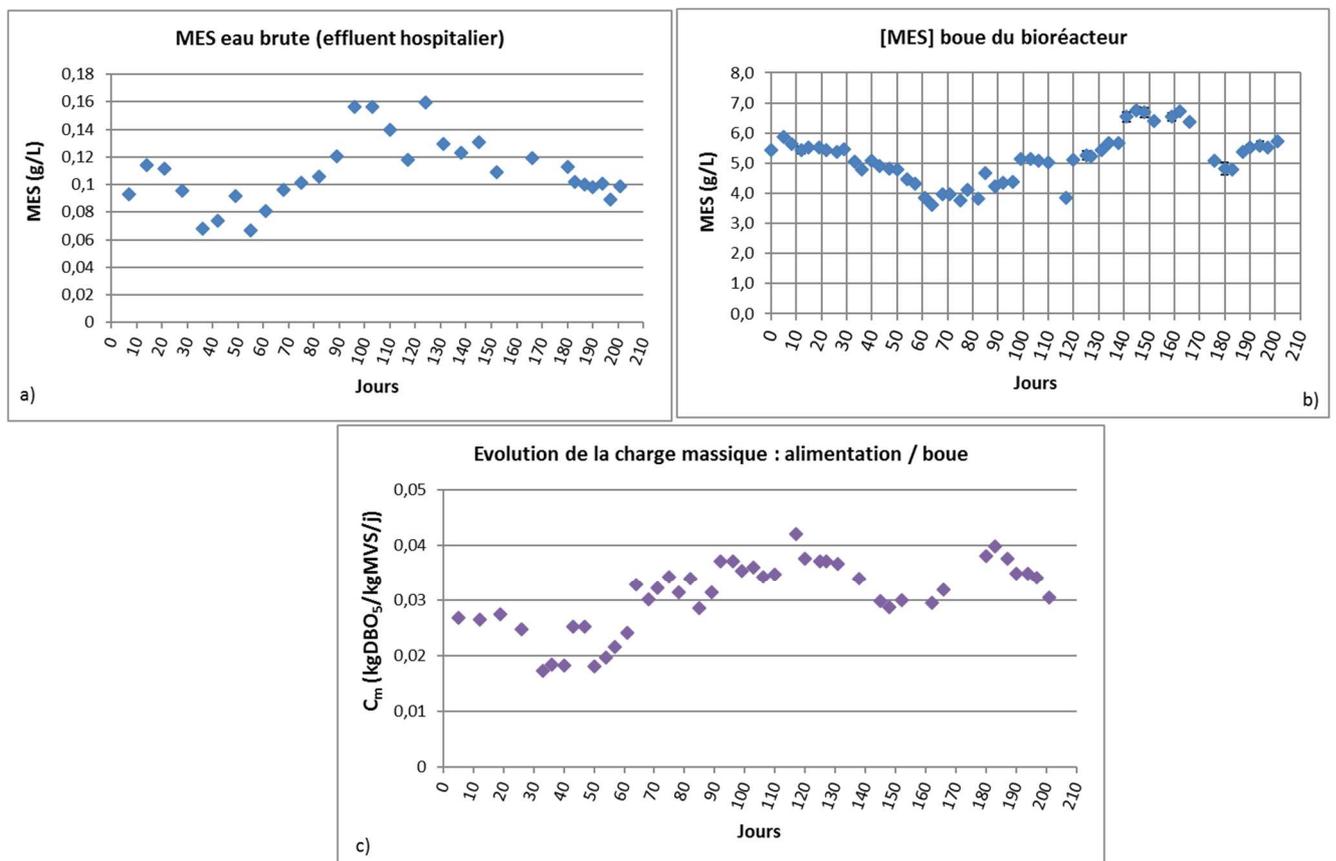


Figure 14 : Evolution en fonction du temps de la concentration en MES de la boue dans le bioréacteur (a), de la concentration en MES dans l'effluent hospitalier alimentant le BaM (b) et de la charge massique (c)

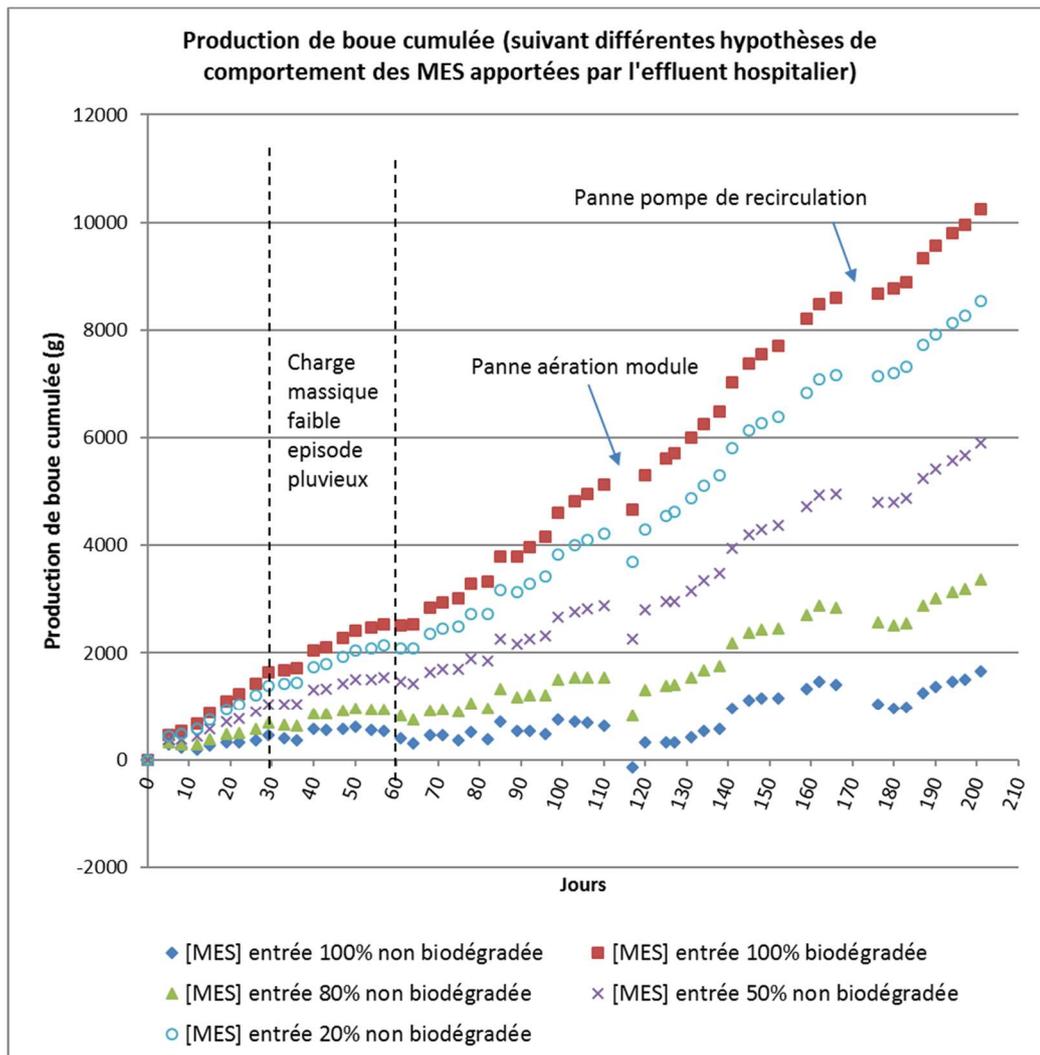


Figure 15 : Production de biomasse cumulée (en considérant différents pourcentages de la concentration en MES en entrée non biodégradable)

L'eau d'entrée (effluent hospitalier prétraité) alimentant la cuve biologique du bioréacteur a une concentration en MES comprise entre 70 et 160 mg/L (Figure 14-a).

La concentration en MES de la boue du bioréacteur évolue entre 3,5 et 7 g/L durant cette campagne de fonctionnement du pilote (Figure 14-b), ce qui est cohérent pour un procédé de traitement par bioréacteur à membranes.

Par ailleurs, nous avons pu observer au début de la campagne (entre le 30^e et le 60^e jour environ) une diminution de la charge apportée par l'effluent hospitalier alimentant le pilote (Figure 14-c). Ce phénomène correspond aux dates d'un épisode pluvieux assez intense en février-mars, durant lequel ont par ailleurs été identifiées en amont des entrées d'eau de pluie parasites dans le réseau.

En ce qui concerne la production de boue cumulée (Figure 15), plusieurs scénarios ont été représentés en considérant différentes contributions de la concentration en MES de l'eau d'entrée (inerte à 100%, 80%, 50%, 20% et 0% soit 100% détériorée).

Sur ces courbes, il peut être identifié plusieurs « paliers » de niveau de production de boue avec des pentes différentes selon la période, ce qui peut traduire la performance de la croissance de la boue en fonction du temps et selon le fonctionnement du pilote (avec les différentes pannes ayant pu avoir un impact sur la production). Ainsi, différentes « périodes » ont pu être identifiées : les pentes des droites de chacun des « paliers » de production ont été calculées et sont reportées dans le Tableau 7. Ces valeurs sont des vitesses de production de boues, et rendent compte de la

dynamique du système. Ainsi des valeurs faibles ou négatives reflètent un ralentissement de l'activité biologique ou une perte de biomasse active. Au contraire les valeurs les plus élevées indiquent une activité redoublée. Bien entendu sur chaque colonne, on va observer une croissance de ces valeurs avec la proportion de MES biodégradables croissante (lecture vers le bas).

Tableau 7 : Valeur de la pente de chaque palier de production de boue identifié sur les courbes de production de boue cumulée pour chacun des apports en MES de l'eau d'entrée considérés

Courbe P _{boue} (pente du palier)	« Palier 1 » J0-J29	« Palier 2 » J40-J64	« Palier 3 » J68-J110	« Palier 4 » J120-J152	« Palier 5 » J159-J183	« Palier 6 » J187-J201
[MES] _{entrée} 100% inerte	8	-10	8	33	-22	26
[MES] _{entrée} 80% inerte	16	-3	18	43	-13	34
[MES] _{entrée} 50% inerte	29	6	33	56	0,2	45
[MES] _{entrée} 20% inerte	41	15	48	72	13	56
[MES] _{entrée} détériorée	50	22	58	82	22	64

Quelle que soit l'hypothèse concernant le pourcentage de MES inerte dans l'eau d'entrée du pilote pris en compte pour le calcul de production de boue, on observe une baisse de la production de boue entre les jours J40 et J64 (pente de la courbe de production plus faible voire négative) puis une reprise de la production (pente de la courbe qui ré-augmente) puis à nouveau une baisse de production entre J159 et J183 et une reprise de la production pendant les 15 derniers jours de fonctionnement du pilote. Ces résultats concordent avec les événements observés et décrits sur la Figure 15, induisant une baisse de la disponibilité de nutriments.

Globalement, on vérifie ici que les conditions opératoires « subies » qui sont la nature de l'effluent et sa variabilité, n'ont pas conduit à un épuisement de l'activité biologique, voire à un lessivage qui aurait pu être rédhibitoire, puisque quelles que soient les hypothèses, la dernière période indique une activité biologique installée.

[6.2.2.2. Evolution des paramètres physico-chimiques en entrée et en sortie du bioréacteur](#)

Le suivi de l'abattement des concentrations en DCO et en azote par des bilans entrée/sortie des effluents du pilote traduit l'efficacité du traitement en matière d'élimination de la pollution carbonée et azotée inhérente à l'épuration des eaux usées. Les résultats sont présentés sur les graphiques de la Figure 16.

Pendant cette campagne de fonctionnement, la concentration en DCO (Figure 16-a) de l'eau d'entrée du BaM (effluent hospitalier prétraité) était comprise entre 250 et 550 mgO₂/L et celle de l'eau traitée (perméat) était comprise entre 25 et 50 mgO₂/L. En ce qui concerne l'azote total (Figure 16-b), la concentration en entrée du BaM était comprise entre 27 et 65 mgN/L et en sortie entre 2,5 et 13 mgN/L. La concentration en ions ammonium (Figure 16-c) dans l'eau d'entrée a évolué autour de valeurs comprises entre 25 et 60 mgN-NH₄/L et en sortie inférieures à 0,1 voire 0,04 mgN-NH₄/L. **L'abattement des concentrations en DCO et en azote était bon, compris entre 75 et 95%.**

Cependant, après un mois de fonctionnement, les performances de nitrification et dénitrification n'était plus optimales car la concentration en nitrates dans le perméat a augmenté d'un facteur 10. Cette variation de concentration correspond au moment où les apports en carbone et en azote par l'effluent hospitalier ont diminué, modifiant la charge massique entrant dans le bioréacteur et donc les performances de la biomasse épuratoire. **Au bout d'un mois après cet épisode, les performances du traitement sont redevenues optimales, avec le retour à une qualité d'effluent moins hiératique, sans intervention particulière.**

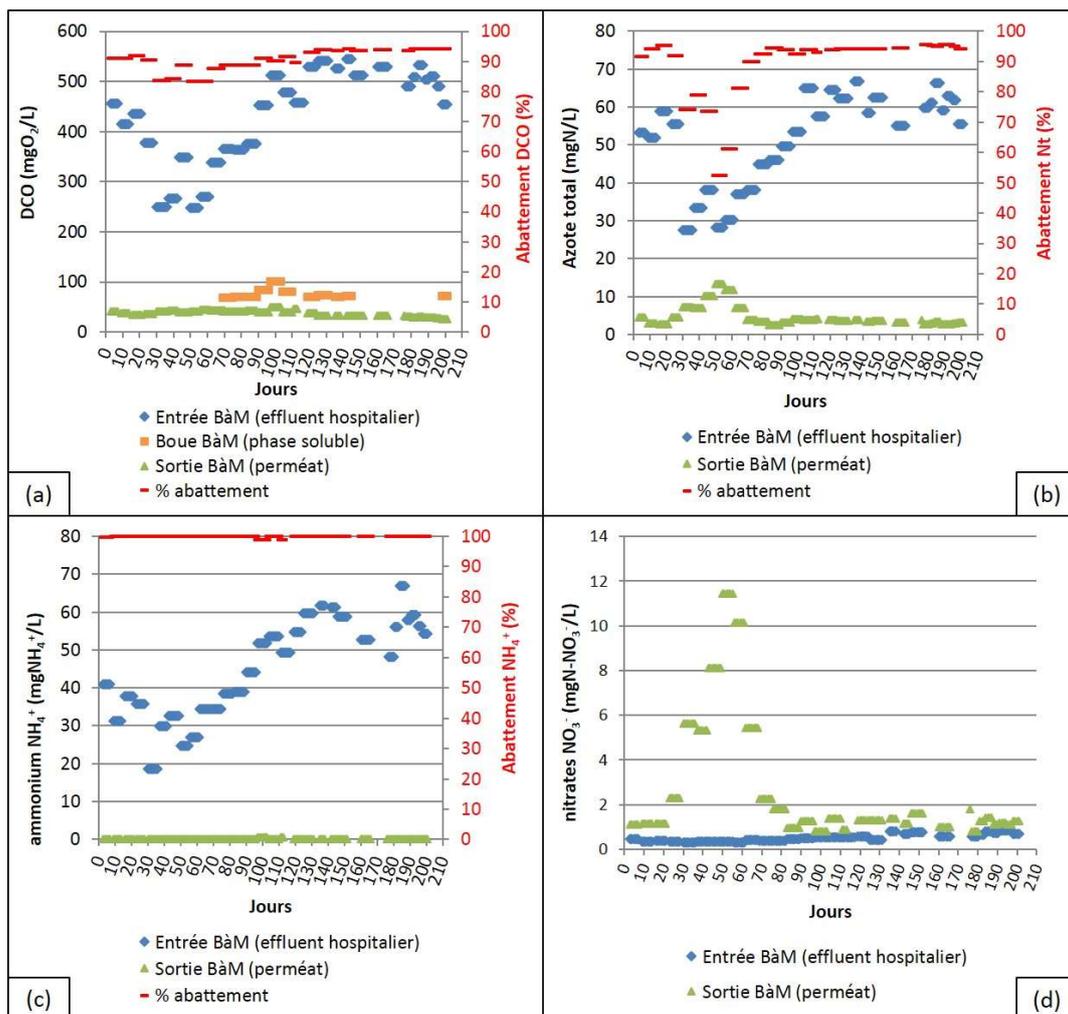


Figure 16 : Evolution des concentrations et des abatements en DCO (a), azote total (b), ions ammonium (c) et nitrates (d) en entrée et en sortie du BaM

5.2.2.3. Récapitulatif de performances de la dépollution macroscopique.

Pour résumer, le Tableau 8 récapitule les concentrations moyennes des paramètres physico-chimiques mesurés et les performances épuratoires du BaM pendant la campagne 3. La concentration en MES de la boue a évolué vers une stabilité autour de 4 à 5 g/L. Cette concentration est faible pour un BaM, mais bien en corrélation avec la très faible charge massique à traiter (comprise entre 0,02 et 0,04 kgDBO_{5estimée}/kgMVS/j). Par rapport aux précédentes campagnes, les réglages de l'aération de la boue dans le bioréacteur afin d'assurer la nitrification et dénitrification ont été adaptés de manière à avoir des durées de non aération moins longues (cycles de 1h30 sans aération et 20 minutes avec aération). Les paramètres de fonctionnement du BaM définis pour cette campagne de traitement permettent également d'obtenir de bons abatements de la DCO et de l'azote total rendant l'eau apte à un rejet dans l'environnement.

Tableau 8 : Performances épuratoires (physico-chimie) du BaM pendant la campagne 3

	MES (g/L)		DCO (mgO ₂ /L)		Azote total (mgN/L)	
	Entrée (EH)	Boue	Entrée (EH)	Sortie BaM (perméat)	Entrée (EH)	Sortie BaM (perméat)
Concentration	0,07 - 0,16	3,6 - 6,7	250 - 550	25 - 50	27 - 65	2,5 - 13
%élimination	-		83 - 94%		74 - 95%	

5.3. Tests d'adsorption du perméat sur charbon actif : tests en batch au laboratoire

Ces tests ont été réalisés en amont de la mise en œuvre de la colonne de charbon sur le pilote BaM. Ils ont été effectués au LGC à Toulouse.

5.3.1. Résumé du protocole expérimental

Le perméat testé est le perméat du BaM récupéré du 31/07/15 au 04/08/15 (lors de la 1^{ère} campagne de traitement des effluents du pôle de santé) et congelé.

Le charbon actif en grain (CAG) a été fourni par POLYMEM, il s'agit du Chemviron F400.

Les concentrations en CAG choisies sont : 0 ; 1 ; 5 ; 10 ; 50 ; 100 ; 250 ; 500 et 1000 mg/L. Deux temps de contact (agitation) pour la sorption ont été testés : 24h et 8 jours.

Les tests en batch ont été réalisés dans des bouteilles en verre à température ambiante sous agitation à 200 rpm.

Après 24h et 8 jours de temps de contact du perméat avec le charbon, chaque échantillon a été filtré sur filtre en fibre de verre de porosité 1,2 µm afin d'éliminer le charbon et récupérer le perméat pour l'analyse des micropolluants.

5.3.2. Résultats : concentrations en micropolluants à l'équilibre après adsorption

Les micropolluants choisis pour l'analyse sont quatre « traceurs de médicaments », considérés comme réfractaires au traitement par le BaM et détectés dans l'effluent hospitalier : la carbamazépine, le diclofénac, l'oxazépam et le sulfaméthoxazole.

Les analyses ont été réalisées au LPTC par LC/MS-MS.

Les concentrations mesurées dans le perméat avant adsorption sur charbon sont les suivantes :

- Carbamazépine : 405 ng/L
- Diclofénac : 607 ng/L
- Oxazépam : 3469 ng/L
- Sulfaméthoxazole : 2319 ng/L

Les courbes d'évolution des concentrations en carbamazépine, diclofénac, oxazépam et sulfaméthoxazole dans le perméat à l'équilibre (C_e en ng/L) après adsorption sur les différentes concentrations en charbon actif (CAG) pour un temps de contact de 24h et de 8 jours sont représentés sur les graphiques de la Figure 17. Ces temps de contact sont classiques dans des études de cautérisation de l'adsorption.

Les résultats ne montrent pas de différence significative entre les deux temps d'adsorption testés.

Le temps de contact est donc assez rapide pour l'adsorption.

On observe pour la carbamazépine, le diclofénac et l'oxazépam, un seuil important d'adsorption entre 10 et 50 mg/L. Pour le sulfaméthoxazole, le seuil d'adsorption est plutôt marqué entre 100 et 250 mg/L.

Pour les quatre composés, l'adsorption du perméat sur le charbon est efficace pour un temps de contact de 24h et pour une concentration en CAG de 50 mg/L à 250 mg/L.

5.4. Ajout d'une colonne de charbon actif en grain (CAG) sur la file perméat

En post-traitement du BaM sur la file perméat, une colonne de CAG a été ajoutée afin d'améliorer les performances du traitement, principalement pour l'élimination des micropolluants (résidus de médicaments et biocides) et la réduction de la toxicité potentielle de l'effluent hospitalier.

Après installation de la colonne, sa mise en eau avec le perméat du BaM a été réalisée le 11 juillet 2016 débutant ainsi le traitement.

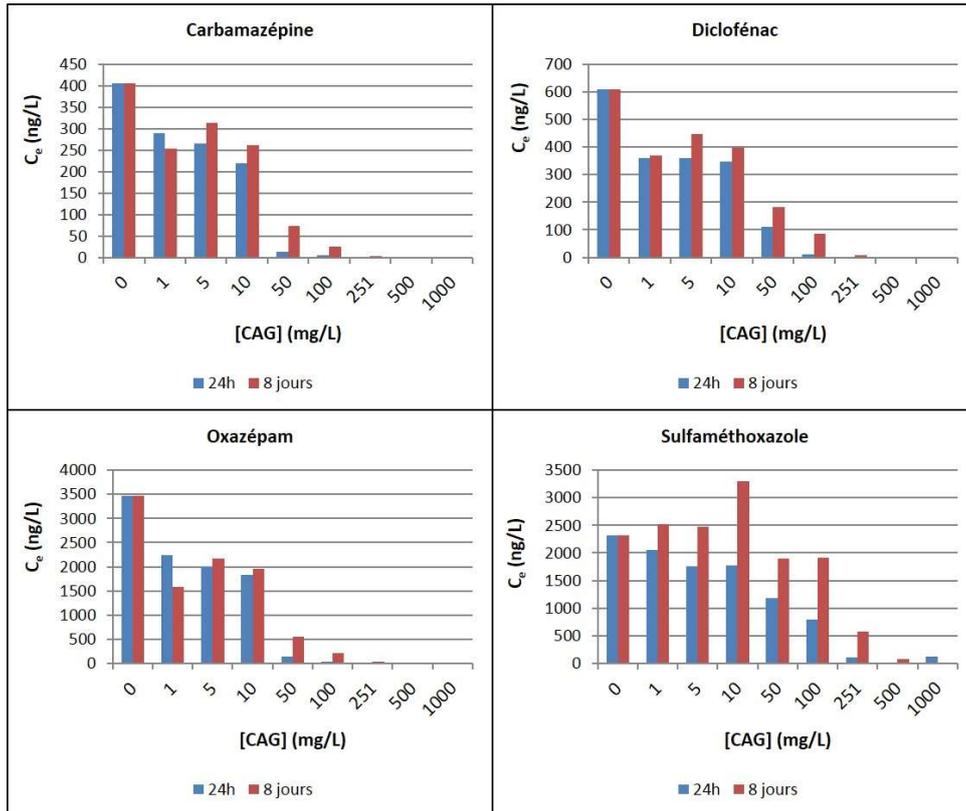


Figure 17 : Concentrations en micropolluants à l'équilibre dans le perméat après adsorption sur des concentrations croissantes en CAG

5.4.1. Caractéristiques du dispositif

La Figure 18 illustre le positionnement de la colonne de charbon actif et le système d'échantillonnage dans le container du pilote.

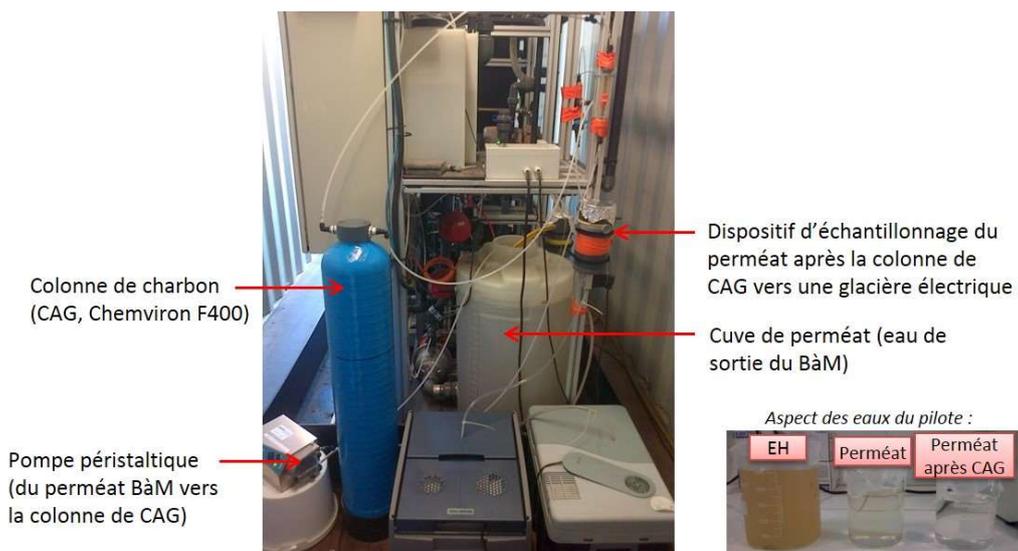


Figure 18 : Dispositif de post-traitement du perméat du BaM par adsorption sur colonne de charbon actif en grain

Le charbon utilisé est du charbon actif en grain de marque « CHEMVIRON F400 » qui a été fourni par la société POLYMEM. POLYMEM s'est également occupé du choix de la colonne.

Les caractéristiques de la colonne sont les suivantes : Bonbonne Eurotrol PV38 (modèle 8*44 ; 32,1 litre ; diamètre 207mm ; hauteur 1126mm ; largeur pied 214 mm).

Le débit moyen de production du perméat est de 16L/h. Avec ce débit dans la colonne, on aurait un temps de contact pour le lit vide de $32,1/16 = 2$ heures et pour un volume de CAG rempli aux 2/3 de la colonne de **40 minutes** (quatre fois la valeur typique, d'après la table 11-13 du Metcalf et Eddy).

Afin de ne pas vider entièrement la cuve de perméat (pour éviter une mise en défaut du pilote à cause de la poire de sécurité du niveau bas), le débit de prélèvement du perméat pour alimenter la colonne a été fixé à 10 L/h, ce qui donne **un temps de contact de l'ordre de l'heure** pour le lit de charbon rempli. On devrait donc être dans des conditions réalistes par rapport aux indications fournies par les essais labo.

Une pompe péristaltique à débit réglable permet l'alimentation de la colonne de charbon en perméat. En sortie de colonne, un dispositif d'échantillonnage a été installé, comme pour le perméat en sortie du BaM. Il est constitué d'un pot de récupération muni d'une électrovanne programmable à l'aide d'un boîtier de temporisation, le tout relié à une glacière électrique.

La colonne de charbon a fonctionné du 11 juillet au 03 août 2016. Le débit en entrée et en sortie de colonne s'est maintenu à 9-10 L/h.

5.4.2. Amélioration des performances épuratoires (macropollution)

Le Tableau 9 présente les concentrations moyennes en DCO et en azote total pour l'effluent d'entrée du BaM, le perméat en sortie de BaM et le perméat en sortie de colonne de charbon.

Les performances épuratoires en termes d'élimination du carbone et de l'azote étaient déjà bonnes avec le BaM seul et sont, sans surprise, encore améliorées avec la colonne de charbon.

Tableau 9 : Concentrations moyennes en DCO et azote en entrée et en sortie du BaM et en sortie de la colonne de charbon

	DCO (mgO ₂ /L)			Azote total (mgN/L)		
	Entrée	Sortie BaM	Sortie charbon	Entrée	Sortie BaM	Sortie charbon
Concentration	250 - 544	32 - 50	7 - 11	27 - 65	3 - 13	1,7 - 2,3
%élimination		83 - 94%	98%		74 - 95%	97%

6. Résultats d'élimination des micropolluants

Choix des micropolluants suivis :

Une liste de molécules traceurs connues pour être réfractaires au traitement biologique conventionnel (et au traitement par BaM seul) a été déterminée. Il s'agit de quatre médicaments : carbamazépine (anti-épileptique), diclofénac (anti-inflammatoire non stéroïdien), oxazépam (anxiolytique), sulfaméthoxazole (antibiotique) ; et de deux biocides : triclosan et triclocarban.

Les résultats présentés dans cette partie sont ceux obtenus sur la phase dissoute de l'effluent hospitalier en entrée du pilote et dans le perméat en sortie du pilote.

6.1. Campagne 2 (BaM seul) : octobre – décembre 2015

Lors de cette campagne, le BaM a fonctionné pendant 70 jours à un âge de boue de 20 jours et un temps de séjour hydraulique de 24h.

Les échantillonnages pour les analyses des micropolluants ont été réalisés chaque semaine (échantillon moyen) du 17/10/2015 au 14/12/2015 (semaines S44 à S50) sur l'eau d'entrée (effluent hospitalier) et l'eau de sortie (perméat) du pilote. (Tableau 4 paragraphe 2.2)

6.1.1. Résidus de médicaments (quatre traceurs)

Les concentrations en carbamazépine, diclofénac, oxazépam et sulfaméthoxazole dans les eaux (phase dissoute) d'entrée et de sortie du pilote BaM pendant la campagne d'octobre à décembre 2015 sont présentées sur la Figure 19.

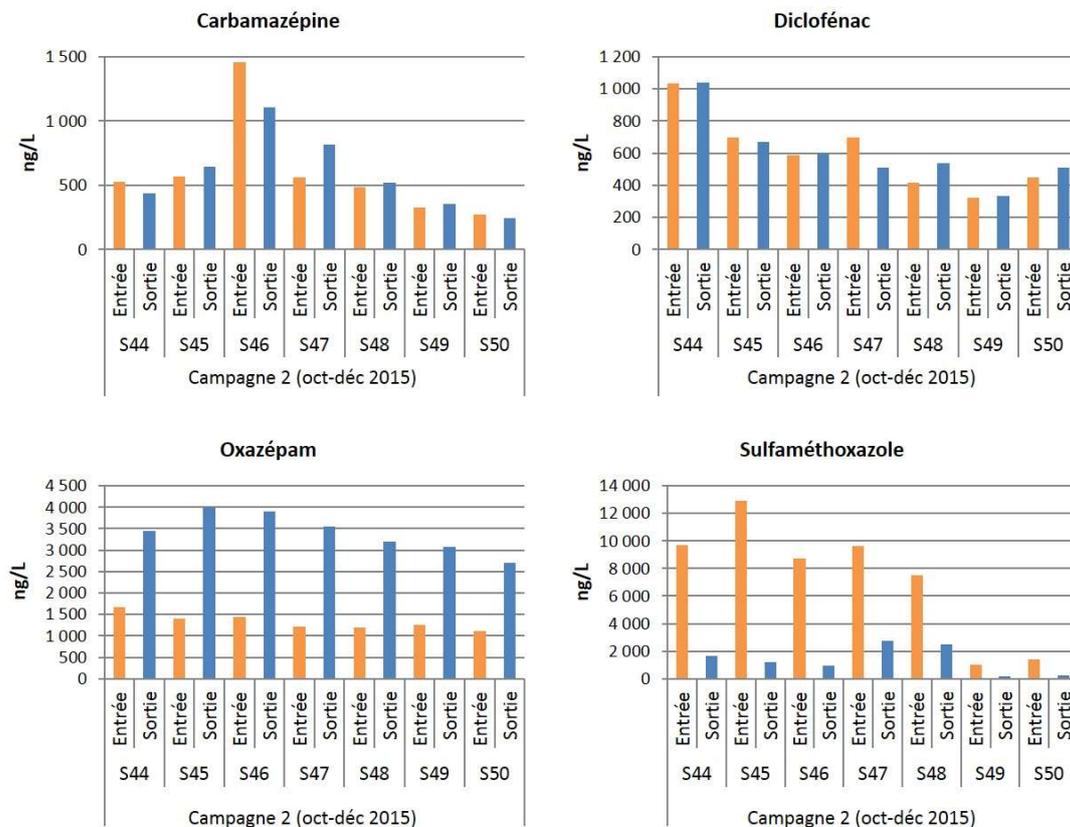


Figure 19 : Concentrations en médicaments en entrée et en sortie du BaM (phase dissoute, campagne octobre-décembre 2015)

La carbamazépine est présente à des concentrations de 300 ng/L à 1500 ng/L en entrée et 250 ng/L à 1100 ng/L en sortie du pilote.

Le diclofénac est présent de 300 ng/L à 1000 ng/L en entrée et en sortie.

L'oxazépam est présent de 1 à 1,7 µg/L en entrée et 2,5 à 4 µg/L en sortie.

Le sulfaméthoxazole est présent de 1 à 13 µg/L en entrée et 1 à 2 µg/L en sortie.

6.1.2. Biocides : triclosan et triclocarban

Les concentrations en triclosan et triclocarban dans les eaux (phase dissoute) d'entrée et de sortie du pilote BaM pendant la campagne d'octobre à décembre 2015 sont présentées sur la Figure 20.

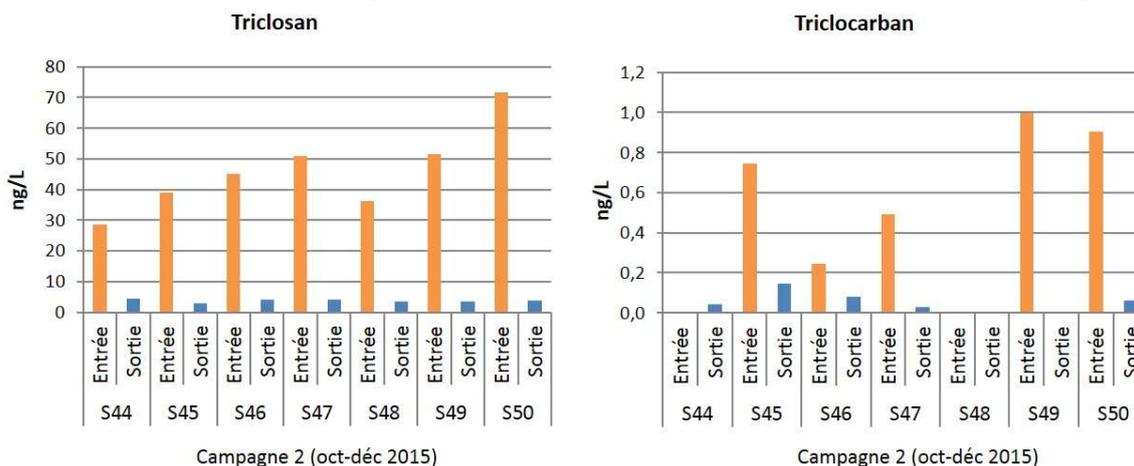


Figure 20 : Concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et sortie du BaM (phase dissoute, campagne octobre-décembre 2015)

Le triclosan est présent à des concentrations de 30 à 70 ng/L en entrée et 3 à 5 ng/L en sortie.

Le triclocarban a été détecté à des concentrations inférieures à 1 ng/L en entrée et inférieures à la limite de quantification (0,1 ng/L) en sortie du pilote.

6.2. Campagne 3 : janvier – août 2016

Lors de cette campagne, le BaM a fonctionné pendant 200 jours à un âge de boue de 40 jours et un temps de séjour hydraulique de 24h.

Comme décrit au paragraphe 4.1, le BaM a fonctionné seul de janvier à juin 2016, puis une colonne de charbon actif a été ajoutée en post-traitement du perméat de juillet à août 2016.

Les échantillonnages pour les analyses des micropolluants ont été réalisés chaque semaine (échantillon moyen) :

- du 14/03/2016 au 27/06/2016 (semaines S11 à S25) sur l'eau d'entrée (effluent hospitalier) et l'eau de sortie (perméat) du pilote, pour le fonctionnement du BaM seul
- du 11/07/2016 au 02/08/2016 (semaines S28 à S30 avec deux échantillonnages moyens par semaine) sur l'entrée (effluent hospitalier), la sortie (perméat) du pilote et la sortie de la colonne de charbon (perméat après CAG) lors du fonctionnement avec la colonne de CAG en post-traitement.

6.2.1. BaM seul

6.2.1.1. Résidus de médicaments (quatre traceurs)

Les concentrations en carbamazépine, diclofénac, oxazépam et sulfaméthoxazole dans les eaux (phase dissoute) d'entrée et de sortie du pilote BaM échantillonnées de mars à juin 2016 sont présentées sur la Figure 21.

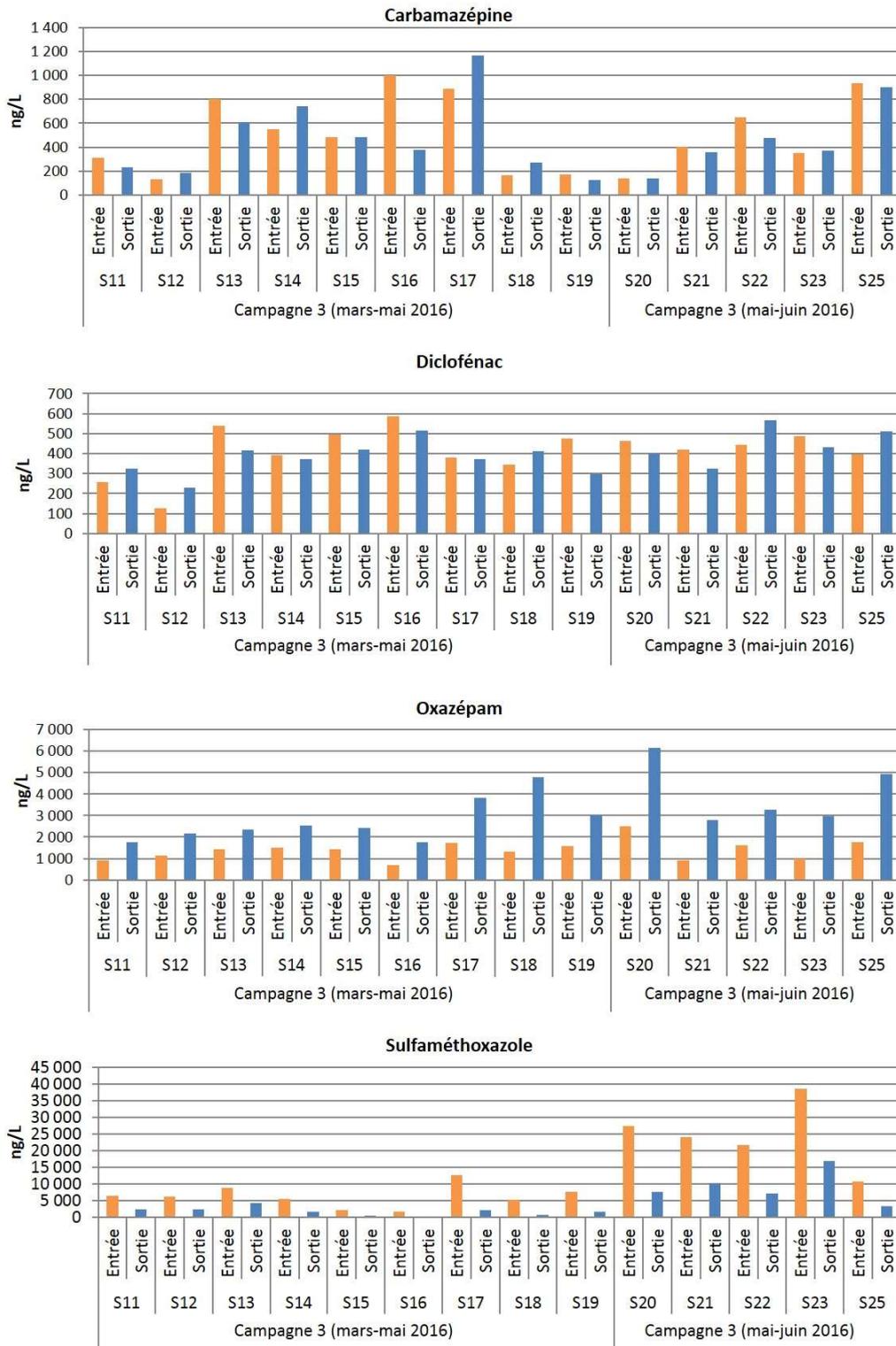


Figure 21 : Concentrations en médicaments en entrée et en sortie du BaM (phase dissoute, mars- juin 2016)

La carbamazépine est présente à des concentrations de 100 ng/L à 1,2 µg/L en entrée et en sortie du pilote.

Le diclofénac est présent de 100 ng/L à 600 ng/L en entrée et en sortie.
 L'oxazépan est présent de 600 ng/L à 2,5 µg/L en entrée et de 1,7 µg/L à 6 µg/L en sortie.
 Le sulfaméthoxazole est présent de 1,5 µg/L à 35 µg/L en entrée et de 0.2 µg/L à 15 µg/L en sortie.

6.2.1.2. Biocides : triclosan et triclocarban

Les concentrations en triclosan et triclocarban dans les eaux (phase dissoute) d'entrée et de sortie du BaM échantillonnées de mars à juin 2016 sont présentées sur la Figure 22.

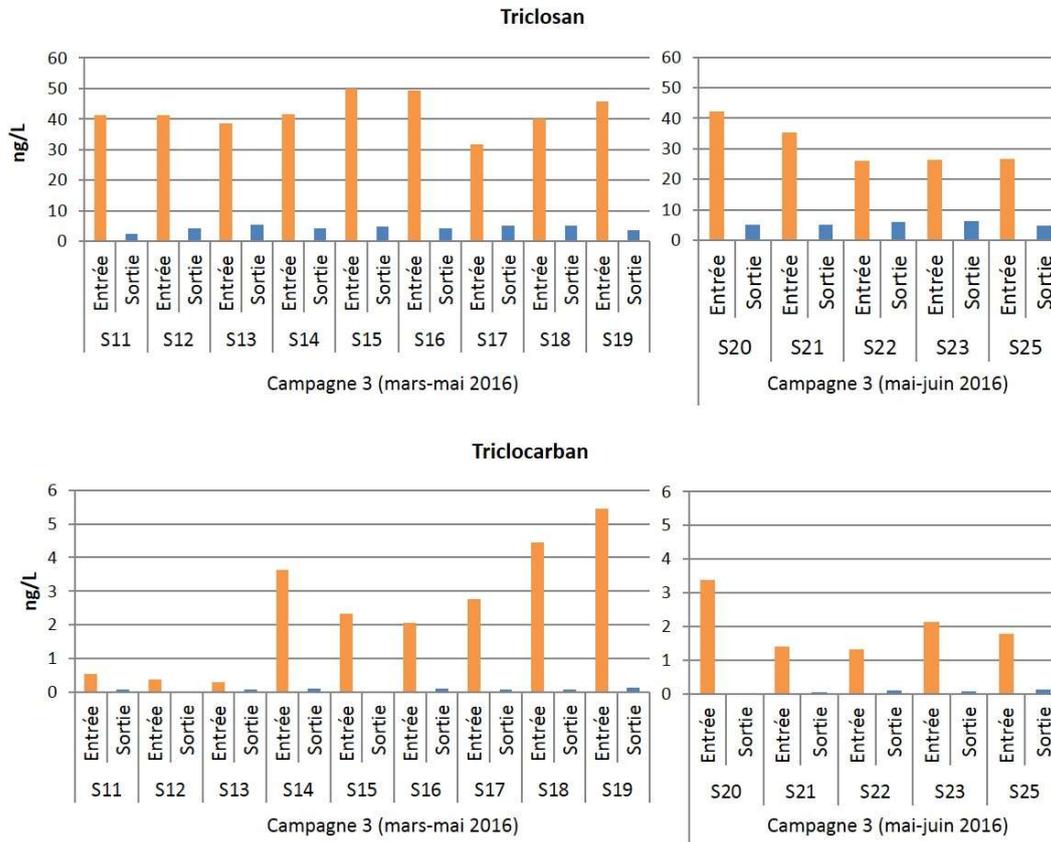


Figure 22 : Concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et en sortie du BaM (phase dissoute, mars- juin 2016)

Le triclosan est présent à des concentrations de 20 à 40 ng/L en entrée et de 5 ng/L en sortie.
 Le triclocarban a été détecté à des concentrations inférieures à 6 ng/L en entrée et inférieures à la limite de quantification (0,1 ng/L) en sortie du pilote.

6.2.2. BaM et colonne de CAG

6.2.2.1. Résidus de médicaments (quatre traceurs)

Les concentrations en carbamazépine, diclofénac, oxazépan et sulfaméthoxazole dans les eaux (phase dissoute) d'entrée et de sortie (perméat) du pilote BaM et dans le perméat après adsorption sur la colonne de charbon actif (sortie CAG) échantillonnés de juillet à août 2016 sont présentées sur la Figure 23.

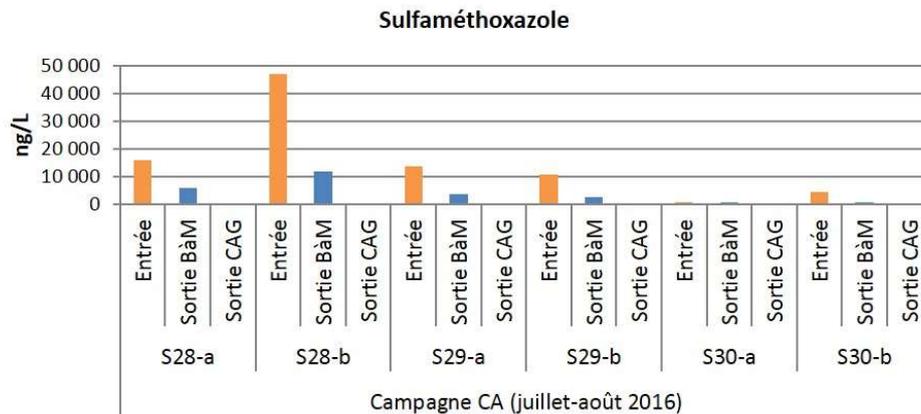
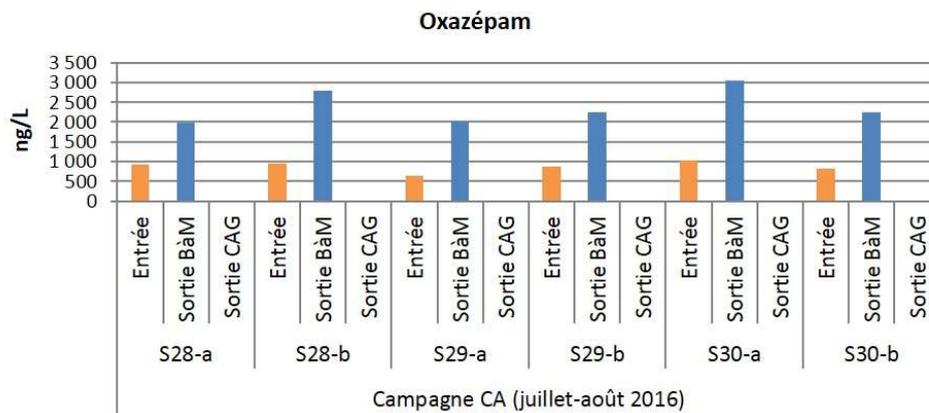
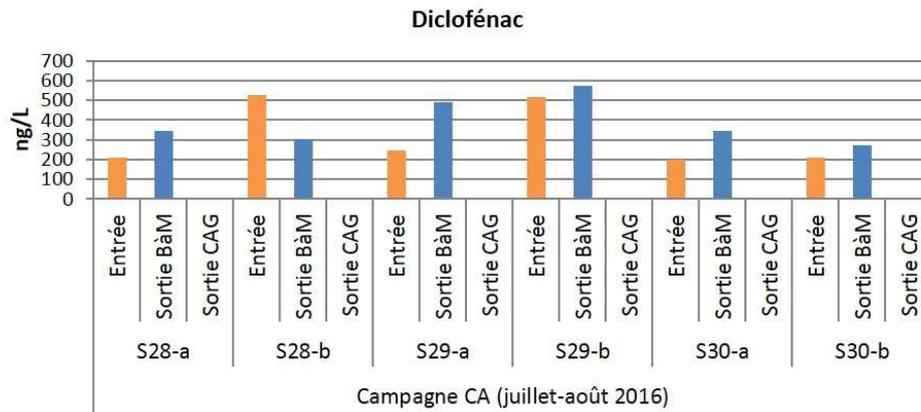
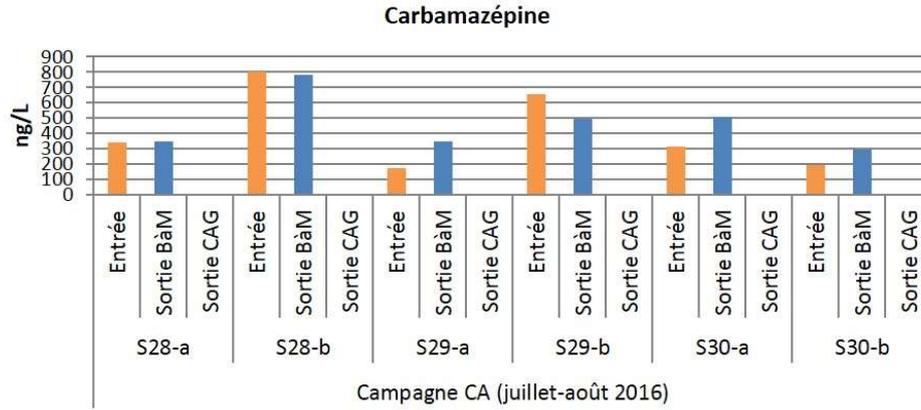


Figure 23 : Concentrations en médicaments en entrée et sortie du BaM et en sortie de colonne de charbon (phase dissoute, juillet- août 2016)

La carbamazépine est présente à des concentrations de 100 ng/L à 800 ng/L en entrée et de 300 à 800 ng/L en sortie du pilote.

Le diclofénac est présent de 200 ng/L à 600 ng/L en entrée et en sortie.

L'oxazépam est présent de 0.500 µg/L à 1 µg/L en entrée et de 2 µg/L à 3 µg/L en sortie.

Le sulfaméthoxazole est présent de 300 ng/L à 15 µg/L en entrée (avec un pic de concentration à 45 µg/L en fin de semaine 28) et de 300 ng/L à 10 µg/L en sortie.

Aucun des composés n'a été détecté dans le perméat en sortie de colonne de charbon actif.

6.2.2.2. Biocides : triclosan et triclocarban

Les concentrations en triclosan et triclocarban dans les eaux (phase dissoute) d'entrée et de sortie (perméat) du pilote BaM et dans le perméat après adsorption sur la colonne de charbon actif (sortie CAG) échantillonnés de juillet à août 2016 sont présentées sur la Figure 24.

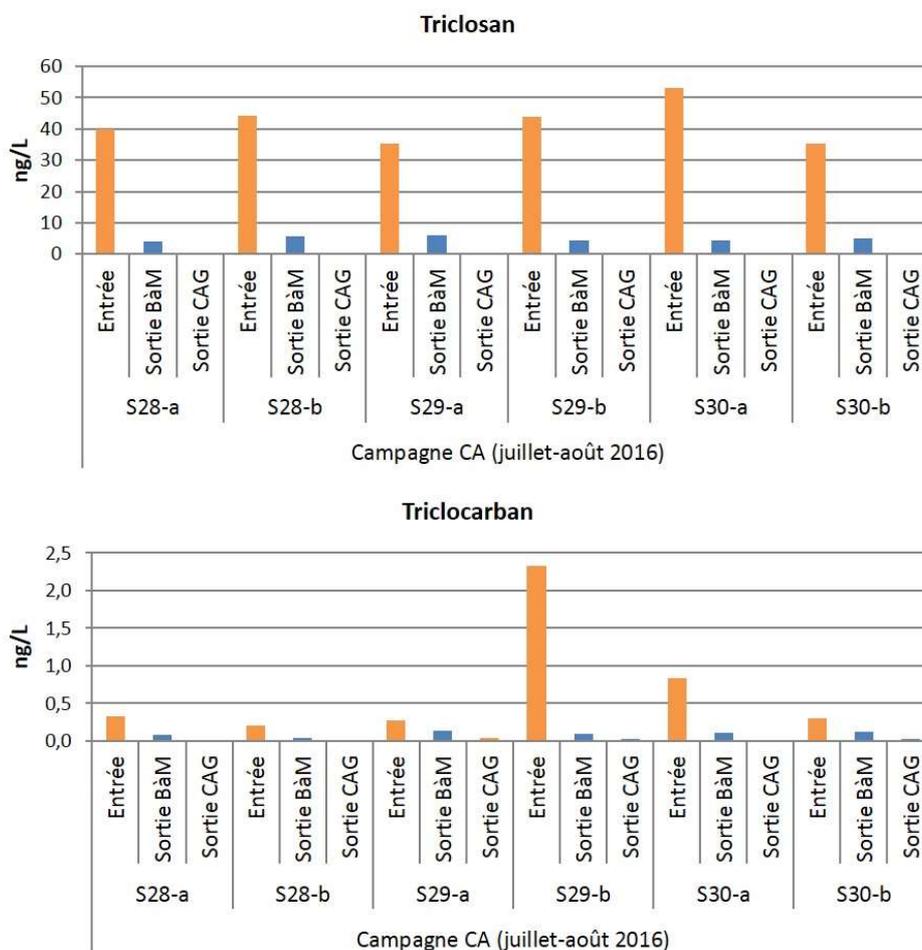


Figure 24 : Concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et sortie du BaM et en sortie de colonne de charbon (phase dissoute, juillet- août 2016)

Le triclosan est présent à des concentrations de 30 ng/L à 50 ng/L en entrée et de 5 ng/L en sortie. Le triclocarban a été détecté à des concentrations 0,2 ng/L à 2 ng/L en entrée et inférieures à la limite de quantification (0,7 ng/L) en sortie du pilote.

Ces deux composés n'ont pas été détectés en sortie de colonne de charbon actif.

6.3. Bilan des concentrations en micropolluants mesurées lors des différentes campagnes

En faisant le bilan des concentrations mesurées lors des deux dernières campagnes, les gammes de concentrations pour chacun des composés analysés sont présentées dans le Tableau 10 pour les quatre traceurs médicaments et le Tableau 11 pour les deux biocides.

Tableau 10 : Récapitulatif des concentrations en médicaments en entrée et en sortie du BaM et du CAG

	Carbamazépine	Diclofénac	Oxazéпам	Sulfaméthoxazole
Concentration entrée BaM (EH)	100 ng/L – 1 µg/L	100 ng/L – 1 µg/L	500 ng/L – 2,5 µg/L	300 ng/L – 35 µg/L
Concentration sortie BaM (perméat)	100 ng/L – 1 µg/L	100 ng/L – 1 µg/L	2 µg/L – 6 µg/L	200 ng/L – 15 µg/L
Concentration sortie CAG	< LD	< LD	< LD	< LD

Tableau 11 : Récapitulatif des concentrations en triclosan et triclocarban en entrée et en sortie du BaM et du CAG

	Triclosan	Triclocarban
Concentration entrée BaM (EH)	20 ng/L – 70 ng/L	< 6 ng/L
Concentration sortie BaM (perméat)	< LQ	< LQ
Concentration sortie CAG	< LD	< LD

Pour qualifier les performances de traitement d'une molécule dans un procédé de traitement, on peut parler de rendement d'épuration, c'est-à-dire le taux d'abattement du flux entre l'entrée et la sortie du procédé (Choubert et al., 2011). Ainsi, afin de comparer les différentes campagnes du BaM réalisées à des âges de boue différents, le rendement d'élimination en sortie de BaM pour chaque composé est calculé de la manière suivante, en faisant l'hypothèse que le flux de purge est négligeable :

$$\text{rendement d'élimination (\%)} = \frac{(\text{concentration en entrée} - \text{concentration en sortie})}{\text{concentration en entrée}} \times 100$$

Les rendements moyens pour les différentes campagnes du pilote ont aussi été calculés (moyenne des rendements de chaque semaine d'échantillonnage sur toute la durée de la campagne). Les résultats sont présentés dans le Tableau 12 pour les médicaments et le Tableau 13 pour les deux biocides.

Tableau 12 : Rendements d'élimination des quatre traceurs médicaments pendant les deux campagnes du BaM

Rendement moyen d'élimination (%)	Carbamazépine	Diclofénac	Oxazéпам	Sulfaméthoxazole
Campagne 2 : AB = 20j	-3,2%	-2,5%	-158%	81%
Campagne 3 : AB = 40j	0,1%	-2,9%	-133%	71%

Tableau 13 : Rendements d'élimination des deux biocides pendant les campagnes du BaM

Rendement moyen d'élimination (%)	Triclosan	Triclocarban
Campagne 2 : AB = 20j	91%	87%
Campagne 3 : AB = 40j	86%	94%

Ces résultats montrent que la carbamazépine et le diclofénac ne sont pas éliminés par le bioréacteur. En effet, pour la campagne menée avec un âge de boue de 20 jours dans le bioréacteur, le rendement d'élimination moyen sur toute la durée de la campagne est négatif pour les deux composés. Lors de la campagne réalisée avec un âge de boue plus long (40 jours), le diclofénac n'est également pas éliminé (rendement négatif) ; le rendement d'élimination de la carbamazépine est légèrement supérieur par rapport à la campagne précédente, mais reste proche de zéro.

Ces deux composés sont donc réfractaires au traitement biologique. Les travaux de Kovalova et al. (2012) et Nguyen et al. (2013) ont également montré une faible élimination de ces deux composés lors d'un traitement par bioréacteur à membranes.

En outre, lors du programme AMPERES (analyse des micropolluants prioritaires et émergents dans les rejets et les eaux de surface) de 2006 à 2009, les performances d'élimination de médicaments ont été étudiées pour 21 stations d'épuration et 8 filières de traitement. L'analyse des phases dissoute et particulaire en entrée et en sortie de STEP a montré que le flux en médicaments était majoritairement porté par la phase dissoute. Les rendements d'élimination de procédés de traitement secondaires biologiques dépendent de chaque molécule et des rendements inférieurs à 10 %, voire négatifs, ont été obtenus pour la carbamazépine ou le diclofénac (Choubert et al., 2011 ; Soulier et al., 2011).

L'oxazépam quant à lui est systématiquement présent en sortie du bioréacteur à des concentrations deux à trois fois supérieures par rapport aux concentrations mesurées dans l'effluent hospitalier en entrée du pilote. L'augmentation de cette concentration en sortie peut s'expliquer par le fait que **l'oxazépam est aussi le métabolite d'autres molécules** comme le diazépam et le nordiazépam.

Les concentrations en sulfaméthoxazole mesurées dans l'effluent hospitalier sont très variables dans le temps. Elles peuvent atteindre quelques dizaines de µg/L certaines semaines contre seulement quelques centaines de ng/L à d'autres périodes. Il est probable que ces variations de concentrations observées reflètent les variations d'utilisation de cet antibiotique administré aux patients du Pôle de Santé.

Le rendement d'élimination obtenu avec le bioréacteur à membrane est de 81% lors de la campagne 2 (AB=20j) et de 71% lors de la campagne 3 (AB=40j). N'ayant pas les concentrations dans le particulaire et dans la boue, il est difficile d'affirmer que cette différence de rendement entre les deux campagnes soit liée à la différence d'âge de boue. Cette différence est due au fait que les concentrations en sulfaméthoxazole en entrée du pilote (i.e. dans l'effluent hospitalier) était plus élevées lors de la campagne 3.

Le devenir du sulfaméthoxazole dans les procédés de traitement par boue activée et par bioréacteurs à membranes a été étudié dans plusieurs travaux. Il ressort de la littérature, d'une part, que ce composé a un faible potentiel de sorption sur la boue et est principalement éliminé par biodégradation, et d'autre part, que les performances d'élimination de ce composé sont sensiblement les mêmes pour une boue activée que pour un bioréacteur à membranes (Göbel et al., 2005 ; Radjenović et al., 2009). Malgré le fonctionnement du BaM dans des conditions moins conventionnelles et susceptibles d'améliorer cette biodégradation, nous n'avons pas observé d'amélioration de la dégradation de ce composé lors de nos essais.

Les deux biocides analysés, le triclosan et le triclocarban, sont très bien éliminés par le bioréacteur à membranes (rendements de 86 à 94%). D'après la littérature (Narumiya et al., 2013 ; Park et al., 2017 ; Singer et al., 2002), leur élimination se fait pour une part du composé par biodégradation et pour le reste par adsorption sur la boue (avec un coefficient de sorption, logKd, supérieur à 4L/kg).

Enfin, l'ajout du traitement d'adsorption du perméat sur une colonne de charbon en grain a permis d'obtenir un abattement total de la concentration des composés étudiés puisqu'aucun d'eux n'a été détecté dans le perméat en sortie de colonne de charbon. **Notons que cette étape de traitement tertiaire est rendue possible par un traitement avancé de l'effluent par le bioréacteur à membrane, en particulier la membrane garantie une quasi absence de matières en suspension qui va donc faciliter l'utilisation du charbon actif et son action sur les molécules ciblées récalcitrantes au traitement biologiques précédent.** Ces résultats sont en parfait accord avec ceux rapportés par le projet Armistiq, action A (<https://armistiq.irstea.fr>).

A côté de ces analyses quantitatives, des évaluations d'effets biologiques ont été menées. Elles sont détaillées dans le livrable 3 (Module « Impact »), et le paragraphe ci-dessous rapporte les principaux éléments de synthèse : « Les analyses montrent que les rejets hospitaliers sont chargés en composés œstrogéno-mimétiques et HAP-like. Le bioréacteur à membrane seul permet d'éliminer jusqu'à 99% l'activité œstrogénique et 98% l'activité HAP-like observée. L'association bioréacteur à membrane et charbon actif permet d'abaisser l'activité œstrogénique des eaux usées hospitalières en dessous des limites de détections du bio-essais employé. Il est par contre constaté qu'une légère activité HAP-like persiste malgré le traitement, mais abaissée d'un facteur 100 ».

L'ensemble de ces éléments illustre l'intérêt du couplage entre le BaM et l'unité de charbon actif, d'une part pour l'élimination de la macro-pollution et d'autre part, pour le traitement de composés réfractaires présents dans l'effluent hospitalier du Pôle de Santé d'Arcachon, par la synergie attendue entre les 2 opérations couplées, en particulier pour l'élimination partielle ou totale de certains effets biologiques, sans que leur source ne soit clairement identifiée.

7. Evaluation technico-économique du Bioréacteur à membrane pour le traitement des effluents du Pôle de santé

Cette évaluation est réalisée sur la base des données obtenues avec le pilote BaM installé par Polymem lors du projet REMPARG, équipé de membranes classiques de Polymem, et de leurs performances hydrauliques obtenues ainsi. Une comparaison sera de plus menée avec les performances des nouvelles membranes de POLymem, sous la dénomination NEOPHIL™. L'évaluation sera transcrite par les valeurs d'OPEX (dépenses d'exploitation) et de CAPEX (dépenses d'investissement).

Le Tableau 14 ci-dessous réunit les éléments nécessaires aux calculs ; ci-après quelques explications quant à sa construction :

Le volume à traiter du Pôle de santé est de 0.68m³/h, nous avons appliqué un facteur de sécurité de 1.2.

La cuve de prétraitement a été dimensionnée pour traiter la totalité du volume des effluents du Pôle de santé. Nous ne modifions pas cette donnée dans l'extrapolation.

Les débits de production, moyens ou instantanés, les flux et les surfaces membranaires sont des valeurs liées. Nous élaborons ces calculs avec 2 produits disponibles du fabricant de membranes : les membranes testées lors de l'expérimentation REMPARG, et les membranes NEOPHIL, qui n'étaient pas disponibles à ce moment-là mais qui ont été testées dans le projet SMS avec d'excellents résultats (un très faible colmatage confirmant que les rétrolovages ne sont pas nécessaires et que les lavages chimiques doivent être très distants). Toutefois, au vue de la résistance au colmatage de la nouvelle membrane nous avons effectué l'évaluation avec un flux plus élevé (ce qui réduit la surface totale nécessaire).

Tableau 14 Eléments de dimensionnement et évaluation technico-économique du procédé BaM

	REMPARG	Pôle de Santé
Volume Traité	400l/j soir 0.016 m ³ /h	Débit moyen 0.68 m ³ /h Design de sécurité x1,2 soit 0.816 m ³ /h
Prétraitement	Cuve PEHD 3.8 m ³ pour dégraissage et dessablage – a traité TOUTES les eaux du Pole de Santé	Idem
Débit de production de permeat	16l/h soit 32l/h instantané	816l/h soit 1632 l/h instantané
Surface de filtration	8m ² - 1 module	42 modules de 8m ² = 336 m ² (membrane rempar) Ou 23 modules de 8m ² = 184 m ² avec flux de 3,7 l/h.m ² moyen (NEOPHIL)
Flux de permeat	2 l/h.m ² soit 4 l/h.m ² instantané (filtration syncopée 3min/3min)	Idem ou NEOPHIL flux = 3,7l/h.m ²
Volume Bioréacteur	1 m ³ – 400 l utilisés	20 m ³ minimum // 30 m ³ pour sécurité (anticiper croissance du volume à traiter ?)

En plus des éléments ci-dessus, nous rappelons que cette évaluation tiendra compte des données suivantes :

HRT = 24h - SRT = 40 jours

Débit de recirculation de la boue = 235 L/h

Séquence de filtration : 3 min « on » / 3 min « relax »

Pas de rétrolavage

Aération boue bioréacteur : 20min avec aération / 1h30 sans, 4m³/h pendant l'aération

Aération module membranaire : 30sec/30sec à 500 NL/m², soit 250 NL/m²
 Fréquence de nettoyage chimique : 0 fois pour REMPARG, uniquement des lavages eau chaude une fois par semaine

7.1 Eléments du CAPEX (investissement)

En s'appuyant sur les données du constructeur, l'évaluation du CAPEX est basée sur un calcul à 20 ans d'exploitation pour une production de 142788 m³ (soit 0.516m³/h) et un changement de membrane tous les 5 ans pour les membranes testées, tous les 7.5 ans pour les NeophilTM.

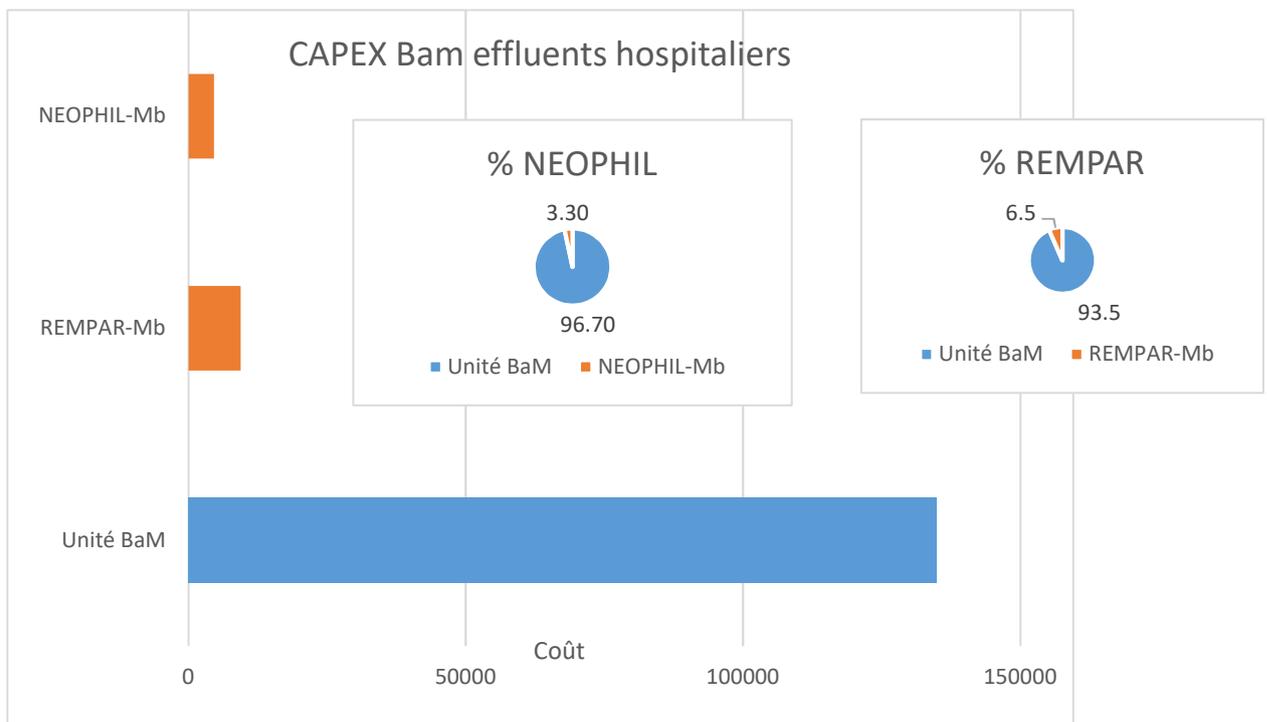


Figure 25: Capex du BaM traitant les effluents du Pôle de santé

La Figure 25 permet d'apprécier les éléments du Capex et de comparer l'impact du coût des membranes, de l'ordre de 5% dans la construction d'une telle unité.

7.2 Eléments de l'OPEX (exploitation)

Les

Figure 26 et Figure 27 ci-dessous permettent de positionner les parts relatives des différents postes de dépenses envisagés, avec les 2 possibilités de membranes et en intégrant le charbon actif comme produit de traitement : le coût de revient est alors respectivement de 0.38 euros/m³ et 0.21 euros/m³ pour les membranes utilisées dans REMPARG et pour les membranes NEOPHILTM. C'est le remplacement de la membrane qui est la part prépondérante de ce coût. Les baisses de coût et de surface engendrées avec NEOPHILTM diminuent cette prépondérance.

On pourrait ajouter à ce calcul le coût d'intervention technique, à raison de 1/2 journée par semaine, et pour un coût horaire HT de technicien à 41euros/h, cela revient à ajouter 2 euros par m³. Ce coût supplémentaire est prohibitif par rapport à la somme précédente issue du seul fonctionnement de l'installation.

Si on se réfère aux chiffres trouvés dans la littérature (Verrecht et al. 2010) et pour des installations de très grandes dimensions, ces coûts de personnels deviennent ridicules. Ces résultats pointent l'intérêt limité d'un point de vue énergétique du BaM pour des installations de « petite taille », dans les conditions opératoires choisies, qui rappelons-le ne sont pas favorables à une intensification de la production pour satisfaire aux exigences d'adaptation du système biologique. Dans ces études de la littérature, comme dans la nôtre, le traitement des boues en excès n'est pas pris en

compte (il doit être ici négligeable, de l'ordre de 15kg/j soit 5T par an à 55 euros la tonne). De plus, notre étude focalisant sur un âge de boues élevé, on peut s'attendre à une diminution du volume de boues en excès et un gain sur ce poste par rapport à une installation conventionnelle.

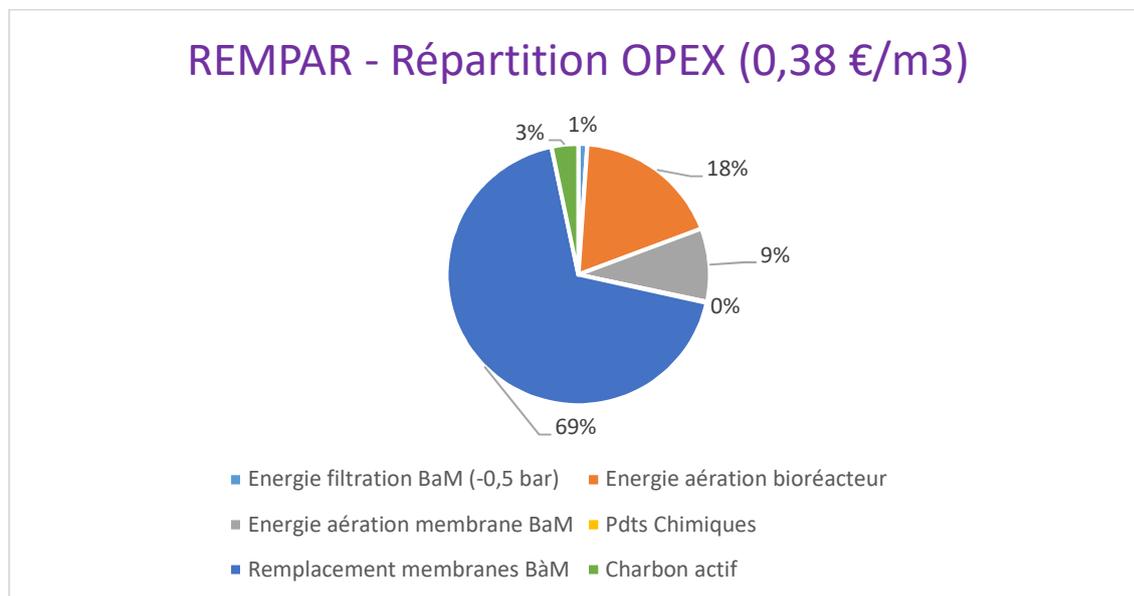


Figure 26 : OPEX membrane de REMPAR

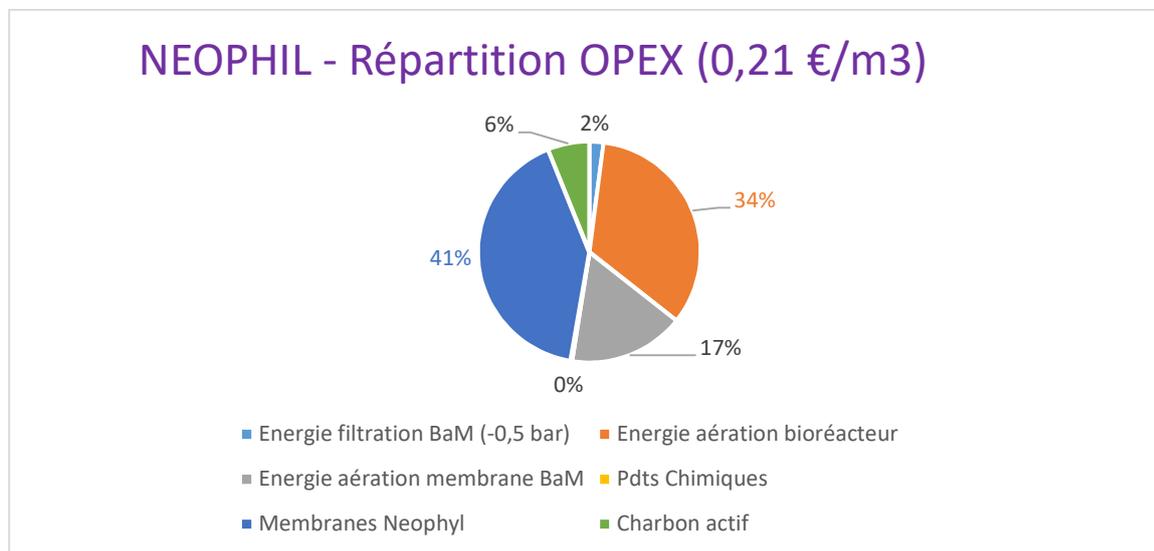


Figure 27 : Opex membrane Neophil

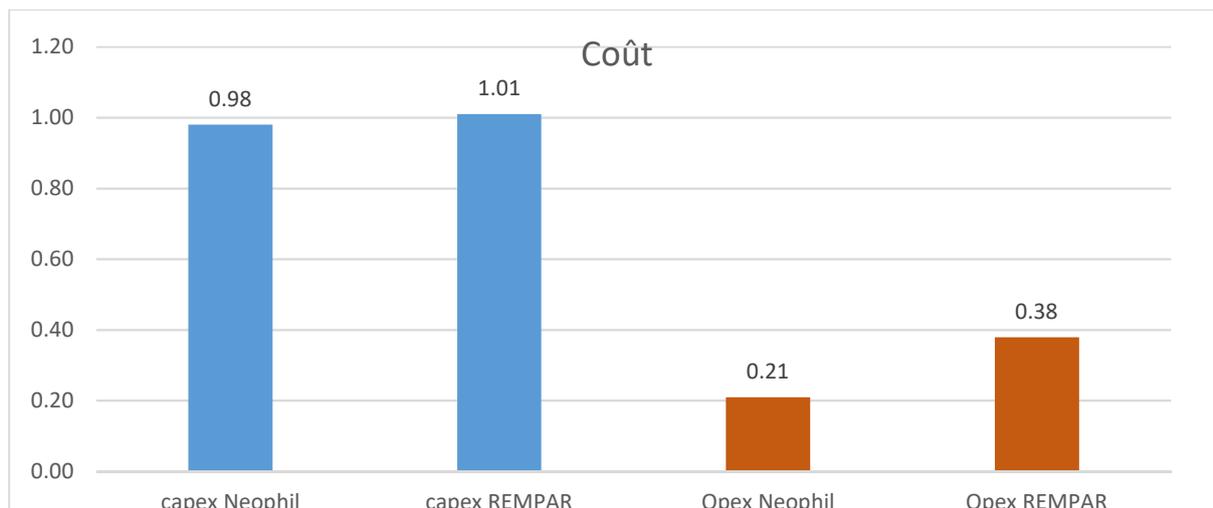


Figure 28 : Prix de revient et comparaison des membranes

La Figure 28 récapitule le coût au m³ produit en cumulant OPEX et CAPEX, soit un coût total de 1.2 et 1.39 euros par m³ respectivement pour une installation NEOPHIL™ et REMPAN.

7.3 Synthèse

L'évaluation technico économique, qui a été menée sur la base des éléments de fonctionnement collectés lors des campagnes d'essais, permet de conclure à un coût de traitement de l'ordre de 1,5 euros par m³ dans les conditions suivantes :

- une installation dimensionnée pour le site du pôle de santé, soit 7200 m³ par an environ
- sans tenir compte du coût de traitement des boues en excès, ni du coût des interventions techniques pour surveillance et nettoyage chimiques
- opérée dans les conditions opératoires favorables à la biodégradation d'effets biologiques, potentiellement dus à la présence de micropolluants d'origine pharmaceutiques ; c'est-à-dire avec un âge de boues de 35 jours et un temps de séjour hydraulique de 24h, avec une cinétique de colmatage conduisant à une dérive de pression transmembranaire de l'ordre de 0.05bar par mois.

Dans ce contexte, l'intérêt de ce type de traitement passera par la réutilisation de l'eau, en effet il faut garder à l'esprit que l'eau ainsi traitée est apte à être rejetée dans le milieu naturel, ou à être réutilisée vers des usages d'irrigation par exemple. Son volume n'impactera alors plus celui des eaux à traiter à la station. Ces considérations sont à mettre en regard des chiffres d'OPEX et de CAPEX obtenus par cette première estimation.

CONCLUSION GENERALE

Dans cette partie du projet **REMPAR**, un bioréacteur pilote, à l'échelle semi industrielle, a été mis en service sur le réseau des effluents du Pôle de Santé de LaTeste de Buch. Il traite environ 500l d'eau par jour sur les 74,4m³ produits par le Pole. Cette étude organisée sur 18 mois, est la suite logique des travaux menés antérieurement sur l'utilisation d'un pilote BaM pour le traitement des effluents d'un centre anti-cancéreux (ANR CD2I, Panacée, impliquant les partenaires EPOC et LGC, ainsi que Polymem sous-traitant fournisseur du pilote BaM). Les phases de mises au point ont déjà été réalisées lors de ce précédent projet (et en particulier l'évaluation de l'impact des rejets hospitaliers sur le fonctionnement des procédés), et les conditions opératoires établies ont constitué le point de départ des essais **REMPAR** :

- **Du point de vue hydraulique**, les conditions opératoires choisies, qui sont une filtration intermittente (3min ON /3min OFF) à 4 LMH, avec une aération de décolmatage (1min ON /1min OFF), ont permis un fonctionnement sur 2 mois sans rétrolavage ni lavage chimique avec une dérive de la pression transmembranaire de l'ordre de 0.025 bar par mois.
- Les conditions opératoires biologiques étaient un temps de séjour hydraulique de 24 à 30 heures et un âge de boues (AB) de 20 ou 40 jours, avec une aération bio (1h30 OFF/20 min ON). Des soucis de fonctionnement simultanés à l'essai AB=20 jours ne nous permettent pas de tirer de conclusions (mais des essais dans SMS portant sur le même paramètre AB sont défavorables à sa diminution dans le cadre de l'élimination des micropolluants).
- Le suivi **des paramètres physicochimiques** relatant la pollution macroscopique, en entrée de BaM, sortie de BaM et sortie de colonne de charbon actif a permis de confirmer un abattement de la DCO de l'ordre de 95% conduisant à des valeurs inférieures à 15 mg/l. Après ajustement des conditions d'aération du BaM, un abattement de l'azote convenable a aussi été obtenu.

La qualité de l'eau ainsi traitée a permis d'envisager, avec des facilités, le post-traitement par charbon actif. Ce couplage peut s'avérer particulièrement intéressant car le passage par le BaM va éliminer de l'eau la matière organique biodégradable, qui en général pourrait venir en compétition pour l'adsorption sur le charbon actif avec les molécules organiques réfractaires dont l'élimination est visée par cette étape d'adsorption. Ainsi, l'eau sortie du BaM a pu alimenter sans autre forme de traitement une colonne de charbon actif pour l'affinage des **micropolluants**.

Ainsi le traitement d'affinage par adsorption sur Charbon actif a été dimensionné et expérimenté. Les résultats se déclinent d'une part en termes de performances hydrauliques, d'autre part en termes de performance d'élimination de molécules traceurs et de persistance ou diminution d'effets écotoxicologiques (pour cette seconde partie, se référer au Livrable 3 de REMPARG).

Du point de vue de **l'élimination des micropolluants**, quelques molécules traceurs, dont certaines reconnues réfractaires en traitement conventionnels, ont été suivies (Carbamazepine, Diclofenac, Oxazepam, Sulfamethoxazole, Triclosan et Triclocarban). Si l'élimination des molécules par le BaM reste partielle, le couplage avec la colonne de charbon actif permet une élimination qui conduit les concentrations en dessous de la limite de détection.

Finalement, ce sont **les tests biologiques d'effet** qui vont permettre d'achever la description de l'efficacité de ce dispositif pour le traitement des effluents hospitaliers. Les bioessais viennent confirmer la pertinence de ce couplage BaM/Charbon Actif pour l'élimination d'effets biologiques. Ces tests ont mis en évidence des sensibilités variables des organismes aux différents effets, indiquant toutes les précautions à prendre dans l'interprétation de ce type de données, tout en appréciant leur caractère global.

Une évaluation technico économique, passant par le calcul des OPEX et CAPEX, a été proposée, sur la base des éléments de fonctionnement collectés lors des campagnes d'essais,

et permet de conclure à un coût de traitement de l'ordre de 1,5 euros par m³ dans les conditions suivantes :

- une installation dimensionnée pour le site du pôle de santé, soit 7200 m³ par an environ
- sans tenir compte du coût de traitement des boues en excès, ni du coût des interventions techniques pour surveillance et le nettoyage chimique
- opérée dans les conditions opératoires favorables à la biodégradation d'effets biologiques, potentiellement dus à la présence de micropolluants d'origine pharmaceutiques ; c'est-à-dire avec un âge de boues de 35 jours et un temps de séjour hydraulique de 24h, avec une cinétique de colmatage conduisant à une dérive de pression transmembranaire de l'ordre de 0.05bar par mois.

Dans ce contexte, l'intérêt de ce type de traitement passera par la réutilisation de l'eau. En effet, il faut garder à l'esprit que l'eau ainsi traitée est apte à être rejetée dans le milieu naturel, ou à être réutilisée vers des usages d'irrigation par exemple. Son volume n'impactera alors plus celui des eaux à traiter à la station.

Références bibliographiques

- Bernhard M, Müller J, Knepper T. P. 2006. Biodegradation of persistent polar pollutants in wastewater: Comparison of an optimised lab-scale membrane bioreactor and activated sludge treatment. *Water Research* 40, 3419-3428.
- Choubert, J.-M., Martin-Ruel, S., Budzinski, H., Miège, C., Esperanza, M., Soulier, C., Ugarrigue, C., Coquery, M., 2011. Removal of micropollutants by domestic conventional wastewater treatment plants and advanced tertiary process: Specific method and results of the Amperes project. *Techniques Sciences and Methodes*, 44–62.
- Delgado LF, Faucet Marquis V, Pfohl-Leszkowicz A, Schetrite S, Dorandeu C, Marion B, Albasi C. 2011. Cytotoxicity micropollutant removal in a crossflow membrane bioreactor. *Bioresource Technology*, 102, 4395-4401.
- Delgado LF, Faucet Marquis V; Schetrite S Pfohl-Leszkowicz A, Albasi C. 2010. Effect of cytostatic drugs on the sludge characteristics of a cross-flow membrane bioreactor; consequence on the process. *Journal of Membrane Science*, 347, 165-173.
- De Wever H, Weiss S, Reemtsma T, Vereecken J, Müller J, Knepper T, Röden O, Gonzalez S, Barcelo D, Hernando M.D. 2007. Comparison of sulfonated and other micropollutants removal in membrane bioreactor and conventional wastewater treatment. *Water research*, 41, 935-945.
- Escher, B.I., Baumgartner, R., Koller, M., Treyer, K., Lienert, J., McArdell, C.S., 2011. Environmental toxicology and risk assessment of pharmaceuticals from hospital wastewater. *Water Research*, 45, 75–92.
- Göbel, A., Thomsen, A., McArdell, C.S., Joss, A., Giger, W., 2005. Occurrence and sorption behavior of sulfonamides, macrolides and trimethoprim in activated sludge treatment. *Environmental Science and Technology*, 39, 3981–3989.
- Kovalova, L., Siegrist, H., Singer, H., Wittmer, A., McArdell, C.S. (2012), Hospital wastewater treatment by membrane bioreactor: performance and efficiency for organic micropollutant elimination. *Environmental Science and Technology*, 46, 1536-1545.
- Kümmerer, K., 2001. Drugs in the environment: emission of drugs, diagnostic aids and disinfectants into wastewater by hospitals in relation to other sources – a review. *Chemosphere* 45, 957–969.
- Narumiya, M., Nakada, N., Yamashita, N., Tanaka, H., 2013. Phase distribution and removal of pharmaceuticals and personal care products during anaerobic sludge digestion. *Journal of Hazardous Materials*, 260, 305-312.
- Nguyen, L. N., Hai, F. I., Kang, J., Price, E. W., Nghiem, L. D., 2013. Coupling granular activated carbon adsorption with membrane bioreactor treatment for trace organic contaminant removal: breakthrough behaviour of persistent and hydrophilic compounds. *Journal of Environmental Management*, 119, 173-181.
- Park, J., Yamashita, N., Park, C., Shimono, T., Takeuchi, D.M., Tanaka, H., 2017. Removal characteristics of pharmaceuticals and personal care products: Comparison between membrane bioreactor and various biological treatment processes. *Chemosphere*, 179, 347-358.
- Passerat, J., Tamtam, F., Le Bot, B., Eurin, J., Chevreuil, M., Servais, P., 2010. Antimicrobials and faecal bacteria resistant to antimicrobials in the rivers of the Seine River watershed: Impacts of hospital effluents. *J. Eur. Hydrol.* 41, 1–13.

Quesada I., Gonzalez Y., Schetrite S., Budzinski H., Le Menach K., O. Lorain, N. Manier, S. Ait Aissa, P. Pandard, D. Abdelaziz, PANACÉE: évaluation du fonctionnement d'un bioréacteur à membranes immergées traitant des effluents hospitaliers d'oncologie, *J. Water Sci.*, 28 (2015) 1-6.

Radjenović, J., Petrović, M., Barceló, D., 2009. Fate and distribution of pharmaceuticals in wastewater and sewage sludge of the conventional activated sludge (CAS) and advanced membrane bioreactor (MBR) treatment. *Water Research*, 43, 831-841.

Singer, H., Müller, S., Tixier, C., Pillonel, L., 2002. Triclosan: occurrence and fate of a widely used biocide in the aquatic Environment: field measurements in wastewater treatment plants, surface waters, and lake sediments. *Environmental Science and Technology*, 36, 4998-5004.

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 Methodes*, 63-77.

Stalder, T., Barraud, O., Casellas, M., Dagot, C., Ploy, M.C., 2012. Integron involvement in environmental spread of antibiotic resistance. *Antimicrobials Resistance and Chemotherapy*, 3, 119.

Steger-Hartmann T, Kümmerer K, Hartmann A. 1997. Biological degradation of cyclophosphamide and its occurrence in sewage Water. *Ecotoxicology and environmental safety*, 36, 174-179.

Verrecht B., Maere T, Nopens I, Brepols C., Judd S., - The cost of a large-scale hollow fibre MBR – WR .2010.06.054



Agence de l'eau Adour-Garonne
90 rue du Férétra
CS 87801
31078 Toulouse Cedex 4
05 61 36 37 38
www.eau-adour-garonne.fr

Agence française pour la biodiversité
Hall C – Le Nadar
5, square Félix Nadar
94300 Vincennes
01 45 14 36 00
www.afbiodiversité.fr

SIBA
16 allée Corrigan
33120 Arcachon
05 57 52 74 74
www.siba-bassin-arcachon.fr

EPOC UMR 5805 CNRS-OASU
Equipe LPTC
Bâtiment A12
351 crs de la Libération
33405 Talence
05 40 00 69 98
Equipe EA
Place du Dr Bertrand Peyneau
33120 Arcachon
05 56 22 39 02
www.epoc.u-bordeaux.fr

LGC UMR 5503 INPT-CNRS-UPS
4, allée Emile Monso
BP 84234
31030 Toulouse cedex 4
05 34 32 36 00
www.lgc.cnrs.fr

Irstea, centre de Bordeaux
UR ETBX
50 avenue de Verdun
Gazinet 33612
Cestas Cedex
05.57.89.08.00
www.irstea.fr