Université du Québec
Institut national de la recherche scientifique
Eau, Terre et Environnement

MISE AU POINT D'UN PROCÉDÉ ÉLECTROLYTIQUE POUR LE TRAITEMENT DES EAUX USÉES DE CAMPING

Par

Marouane Meftah

Mémoire présenté pour l'obtention du grade de
Maître en sciences (M.Sc.) en Sciences de l'eau
Programme bi-diplomation (ISHÉDD-INRS)

Jury d'évaluation

Examinateur Externe	Monsieur Kokou Adjallé Université du Québec à Trois-Rivières
Examinateur Interne	Monsieur Rajeshwar Dayal Tyagi INRS-ETE, Université du Québec
Directeur de recherche	Patrick Drogui INRS-ETE, Université du Québec

06 Septembre 2018

© Droits réservés de Marouane Meftah, 2018.

REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à adresser mes vifs remerciements à l'ensemble des professeurs impliqués dans ma formation académique et tout particulièrement au professeur Patrick Drogui qui a accepté de m'encadrer et m'orienter tout au long de de ces travaux de maitrise. Je le remercie aussi de m'avoir offert l'opportunité d'effectuer ce projet au sein de l'INRS-ETE afin de pouvoir mettre en application mes connaissances dans ce domaine et développer, par conséquent, mes compétences pendant cette expérience professionnelle instructive.

Je souhaite remercier l'ensemble des collaborateurs de l'équipe LEEPO avec lesquels j'ai eu le plaisir de travailler durant toute la période du projet. Ils m'ont réservé un accueil convivial dans leur lieu de travail et ont répondu à toutes mes questions avec bienveillance.

En particulier, mes remerciements distinctifs et chaleureux sont destinés à :

- Monsieur EL HAJI Kamal président de l'ISHÉDD, pour ses encouragements et pour m'avoir offert l'opportunité d'intégrer ce programme de bi-diplomation ;
- Monsieur Dufour Denis à qui j'adresse mes sincères remerciements pour sa disponibilité, sa sympathie, ses conseils et son accueil au sein de la station d'épuration des eaux usées de la ville de Québec.
- Monsieur Dirany Ahmad, pour son soutien, sa collaboration, ses orientations indispensables pour finaliser ce travail et ses remarques pertinentes.
- Messieurs Rajeshwar Dayal Tyagi et Kokou Adjalle d'avoir accepté d'examiner mon mémoire.
- Mes PARENTS, pour leur amour inconditionnel, leur patience et leur support inestimable durant toutes ces longues années.

RÉSUMÉ

Les eaux usées de camping contiennent des composés organiques, inorganiques et bactériens de nature différente. L'insuffisance des traitements peut avoir des effets néfastes sur l'environnement. Ces eaux sont généralement acheminées vers une fosse septique où les solides se déposent au fond du bassin tandis que les écumes (huiles et graisses) sont piégées à la surface du liquide. Le surnageant est par la suite acheminé vers un champ d'épuration (filtre aménagé à même le sol). Cependant après ces traitements les eaux contiennent toujours des quantités non négligeables de polluants : phosphore, azote, coliformes, etc. Cette diversité de polluants finit dans le sol et par infiltration dans les cours d'eau d'où le phénomène d'eutrophisation. La règlementation devient de plus en plus contraignante d'où la nécessité d'opter pour de nouvelles technologies de traitement des eaux usées. Afin de répondre à cette problématique, un procédé de traitement électrolytique efficace et simple a été mis au point. La production *in-situ* d'un agent coagulant (Fe^{2+}/Fe^{3+}) devrait permettre d'éliminer la pollution particulaire (incluant les polluants de type organique, inorganiques et bactériens), alors que l'utilisation de graphite à la cathode permet de générer simultanément du peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) qui réagit avec l'agent coagulant pour donner un oxydant fort (le radical hydroxyle) permettant une élimination des polluants dissous. L'application du procédé hybride électrocoagulation/électro-peroxydation dans les meilleures conditions opératoires a permis d'atteindre un taux d'abattement de la demande chimique en oxygène (DCO) d'environ 53 ± 2,1 %. À cela, il faut ajouter l'élimination du phosphore estimée à 99,82 ± 10,21 % et de la matière en suspension estimée à 82,25 ± 18 %. Ces taux d'abattement permettent de rencontrer les normes de rejet des eaux usées requises pour des installations non-connectées au réseau d'assainissement centralisé.

Mots-clés : Eaux usées de camping; Composés organiques et inorganiques; Traitement électrolytique; Peroxyde; Fenton.

ABSTRACT

Wastewaters from camping contain organic, inorganic and bacterial compounds having different nature. Insufficient treatment can have adverse effects on the environment. These waters are usually transferred to a septic tank where solids settle to the bottom of the tank while the scums (oils and greases) are trapped on the surface of the liquid. The supernatant is then transferred to a purification field (filter arranged on the ground). However, after these treatments the waters always contain significant amounts of pollutants: phosphorus, nitrogen, coliforms, etc. This diversity of pollutants ends up in the soil and infiltrates into watercourses, causing the phenomenon of eutrophication. Regulations are becoming increasingly restrictive, hence the need to opt for new technologies for wastewater treatment. In order to address this issue, an efficient and simple electrolytic treatment process has been developed. In-situ production of a coagulating agent (Fe^{2+}/Fe^{3+}) should eliminate colloids and particles pollution (including organic, inorganic and bacterial pollutants), whereas the use of graphite at the cathode can generate simultaneously hydrogen peroxide (H_2O_2) that reacts with the coagulant to give a strong oxidant (hydroxyl radical) allowing removal of dissolved pollutants. The application of the hybrid process combining electrocoagulation/electro-peroxidation applied in the best operating conditions allowed to reach 53 ± 2.1% of chemical oxygen demand (COD) removal. In addition, phosphates (99.82 ± 10.21% of removal) and suspended solids (82.25 ± 18% of removal) could be simultaneously removed. These abatements allowed to meet the wastewater discharge standards required for installations that are not connected to the centralized sewerage network.

Keywords: Wastewaters from camping; Organic and inorganic pollutants; Electrolytic treatment; peroxide; Fenton.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS ..... *iii*

RÉSUMÉ ..... *v*

ABSTRACT ..... *vii*

TABLE DES MATIÈRES ..... *ix*

LISTE DES TABLEAUX ..... *xiii*

LISTE DES FIGURES ..... *xv*

LISTE DES ÉQUATIONS ..... *xvii*

ABRÉVIATIONS et Symboles ..... *xix*

Introduction *1*

1. Revue de la littérature *3*

1.1 Eaux usées de camping et leurs caractéristiques **3**

1.2 Problématique des eaux de camping **3**

1.3 Normes de rejets **6**

1.4 Prétraitement des eaux usées de camping **7**

1.4.1 Traitement par fosse septique 7

1.4.2 Passage par un lit filtrant 8

1.5 Traitements physico-chimiques des EUC **8**

1.5.1 Traitement par coagulation chimique 9

1.5.2 Traitement par filtration sur sable 9

1.5.3 Traitement par filtration membranaire 10

1.6 Traitements biologiques **10**

1.7 Méthodes électrochimiques pour traitement des eaux usées 11

1.7.1 Traitement par électrocoagulation.....11

1.7.2 Electro-peroxydation 14

1.7.3 Electro-oxydation.....16

1.8 Avantages et inconvénients des électro-technologies..... 17

1.8.1 Avantage de l'utilisation des électro-technologies.....17

1.8.2 Inconvénients d'EC.....17

1.9 Paramètres influençant le traitement électrochimique des eaux usées..... 18

1.9.2 pH de l'effluent à traiter 18

1.9.3 La conductivité de la solution 19

2. Objectifs de recherche et méthodologie 20

2.1 Objectif principal 20

2.2 Objectifs spécifiques 20

2.3 Hypothèses de recherche 20

2.4 Démarche expérimentale..... 21

3. Matériel et méthodes 23

3.1 Échantillonnage et caractéristiques de l'effluent initial..... 23

3.2 Montage et caractéristiques de la cellule de traitement type laboratoire 25

3.2.1 Montage de la cellule..... 25

3.3 Traitement électrolytique des EUC 28

3.4 Méthodes analytiques 32

4. RÉSULTATS ET DISCUSSION 33

4.1 Caractéristiques initiales de l'effluent 33

4.2 Caractérisation de la cellule en termes de production de peroxyde d'hydrogène et oxydants totaux 34

4.3 Traitement électrolytique de l'effluent 1 par EC/EP 36

4.3.1 Effet du temps 36

4.3.2 Effet du traitement sur l'abattement des polluants bactériens 40

4.4 Traitement électrolytique de l'effluent 2 par EC/EP 42

4.4.1 Effet intensité 42

4.4.2 Effet temps 44

4.4.3 Effet du traitement sur l'abattement des polluants bactériens 44

4.5 Étude comparative des différents procédés électrolytiques (Effluent 2) 45

4.5.1 Étude comparative EC/EP et EC seule : Enlèvement de la DCO 45

4.5.2 Comparaison des procédés EC/EP et EC seul lors de l'élimination du TOC 46

5. Conclusion 49

6. Recommandations 50

7. Références bibliographiques 51

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 Plages de concentrations de différents paramètres d'après plusieurs auteurs (Daghrir, 2010b).....3

Tableau 2 Normes de rejet des systèmes d'assainissement autonomes (Développement durable, 2015).....7

Tableau 3 Caractéristiques physico-chimiques et bactériennes des EUC et normes de rejets (Gouvernement du Québec, 2015).....23

Tableau 4 Comparaison des caractéristiques initiales des deux effluents avec les normes de rejet correspondantes 33

Tableau 5 Resultats de désinfection pour l'échantillon N°1 40

Tableau 6 Abattement de la DBO_5 pour échantillon N°1.....41

Tableau 7 : Résultats de désinfection pour l'échantillon N°2 utilisant EC/EP 44

Tableau 8 : Concentration résiduelle de la DBO_5 pour l'échantillon 2.....45

LISTE DES FIGURES

Figure 1 Principe du procédé d'électrocoagulation (Mollah et al., 2001) 12

Figure 2 Montage d'électrocoagulation mono-polaire 13

Figure 3 Montage d'électrocoagulation bipolaire 14

Figure 4 : Illustration montrant la fosse septique, lieu de prélèvement de l'échantillon faisant l'objet de notre étude. 24

Figure 5 : Comparaison visuelle des échantillons après filtration 25

Figure 6 Photographie du dispositif expérimental pour le traitement par EC/EP 26

Figure 7 Schéma de la cellule de traitement par EC/EP (Échelle laboratoire) 26

Figure 8 Photographie du dispositif experimental pour le traitement par EO 27

Figure 9 Production de peroxyde d'Hydrogène en fonction de l'intensité et du temps de traitement utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphite 35

Figure 10 : Abattement de la DCO en fonction de temps de traitement (DCO_i = 3019,5) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites (3A, 45min) 37

Figure 11 : Abattement de MES en fonction de temps de traitement (MES_i=62mg/L) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites (3A, 45min) 38

Figure 12 : Abattement du Phosphore utilisant les conditions optimales (Pi=22,5 mg-P/L3A, 45min, 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphite) 39

Figure 13 : Abattement de DCO en fonction de différentes intensités de traitement dans les conditions optimales (3A, 45 min) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites 42

Figure 14 : Abattement de MES en fonction de différents intensités dans les conditions optimales (3A, 45min) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites 43

Figure 15 Taux d'abattement de DCO utilisant EC seule comparée à EC/EP dans les meilleures conditions de traitement : 3A, 45 min en mode bipolaire; DCO initiale = 1135 ± 97 45

Figure 16 Taux d'abattement du COT lors du traitement des eaux de camping en utilisant les procédés EC seule (3A, 45min), EC/EP (3A, 45min) et EC/EP+EO (en rajoutant 90min à 5 A pour le procédé EO) pour l'échantillon 2....47

Figure 17 Bilan comparatif des trois traitements effectués dans les meilleures conditions 47

Figure 18 Comparaison visuelle de la qualité d'eau après chaque traitement dans les conditions optimales 48

LISTE DES ÉQUATIONS

Equation 1 $Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + OH^- + \bullet OH$ 15

Equation 2 $2Ce4 + + H2O2 \leftrightarrow 2Ce3 + + O2 + 2H +$ 28

Equation 3 $FeO - Phen32 + +Ce4 + \leftrightarrow FeO - Phen33 + + Ce3 +$ 28

Equation 4 $Fe \rightarrow Fe2 + + 2\,e -$ 29

Equation 5 $Al \rightarrow Al3 + + 3\,e -$ 30

Equation 6 $2\,H2O + 2\,e - \rightarrow H2 + 2\,OH -$ 30

Equation 7 $2\,H_2O \rightarrow O_2 + 4H^+ + 4e^-$ 31

Equation 8 $O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O_2$ 31

Equation 9 $Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + OH^- + \bullet OH$ 31

ABRÉVIATIONS ET SYMBOLES

BDD	boron dopped diamond
DBO	demande biochimique en oxygène
DCO	demande chimique en oxygène
EUC	eaux usées de camping
EC	électrocoagulation
EO	électro-oxydation
EP	électro-peroxydation
Gr	graphite
LEEPO	laboratoire d'électro-technologies environnementales et procédés oxydatifs
MDDEP	Ministère du développement durable de l'environnement et des parcs Québec
MES	matières en suspension
MO	matière organique
NH_4-N	ion ammonium
NTK-N	azote Kjeldahl total
OD	oxygène dissous
POR	potentiel d'oxydo-réduction
P_{sol}	phosphore soluble
P_{tot}	phosphore total

INTRODUCTION

Les effluents en provenance des installations d'assainissement des résidences isolées sont fortement chargés en polluants organiques, inorganique et bactérien (MES, DCO, Coliformes, etc.). Ces effluents sont rejetés dans l'environnement sans traitement permettant une dépollution efficace (Ex : Fosses septiques, champ d'épuration…etc.) et constituent l'une des causes principales de nuisance à l'environnement et en particulier aux écosystèmes aquatiques. Ces eaux usées contiennent essentiellement des polluants à charge non-négligeables en Phosphore à cause des détergents utilisées, dans les salles de bains, les cuisines et les buanderies.

Le développement de l'Homme et de ses besoins exercent une grande pression sur les ressources naturelles en général et sur la ressource en eau en particulier. Ce qui fait la nécessité de traiter ces eaux afin de pouvoir les réutiliser ou de la rejeter dans l'environnement en respectant les normes et les objectifs environnementaux.

Le nombre d'agglomérations dans le Nord-Américain ne fait qu'augmenter, en particulier les résidences isolées et les campings, la direction des eaux municipales a estimé le nombre de résidences isolées à environ 1 000 000 de résidences ayant chacune un débit total quotidien de 3240 litres. De plus, 25% des nouvelles résidences construites au Canada et aux États-Unis dépendent d'une filière d'assainissement autonome pour le traitement de leurs eaux usées.

Le monde vit de plus en plus les conséquences des problématiques environnementales. À cet effet, la règlementation en matière d'assainissement devient de plus en plus stricte. En particulier, la règlementation au Québec devient de plus en plus stricte quant aux rejets des eaux usées dans l'environnement.

Le traitement effectué par les systèmes d'assainissement autonome qui fonctionnent généralement par acheminement des eaux usées vers une fosse septique où les solides se déposent au fond du bassin tandis que les huiles et graisses sont piégées à la surface du liquide. Le surnageant est par la suite acheminé vers un champ filtre aménagé à même le sol appelé élément épurateur. Après ce traitement conventionnel ces eaux contiennent toujours des

quantités non négligeables de polluants organiques, inorganiques et bactériens (PT > 14 mg/L, MES > 176 mg/L, NT > 79 mg/L, etc).

Le rejet de ces effluents fortement chargés par des concentrations importantes en phosphore, MES, azote etc. peut être la cause de graves conséquences sur les écosystèmes aquatiques comme n'importe quel milieu récepteur de ces eaux usées, tout en favorisant la prolifération des plantes aquatiques et des algues. Ce phénomène entraine consommation de l'oxygène dissout et diminue les stocks en oxygène dissous et par conséquent limite le processus photosynthétique. Ce phénomène met en danger la survie des espèces aérobies et touche l'équilibre de la faune aquatique. De la même manière une forte concentration en azote peut contribuer à la diminution de l'O_2 dissous (Robertson, 1987).

L'utilisation de détergents est la cause principale derrière les fortes concentrations en phosphore et en azote qui peuvent atteindre 100 et 830 mg/L, respectivement (Matassa *et al.*, 2005).

De nos jours le traitement des eaux usées est l'un des défis majeurs que l'humanité affronte à cause de la grande révolution industrielle, la croissance continue de la population, l'urbanisation et les changements climatiques. Le monde se trouve actuellement face à un problème de traitement des eaux usées.

Des procédés physico-chimiques tels que la coagulation-floculation ont été largement utilisés afin de clarifier les eaux, éliminer la matière organique et inorganique (Massé & Masse, 2000). Ces procédés utilisent des concentrations importantes de réactifs chimiques augmentant ainsi le volume des boues générées et, par conséquent, le coût du traitement.

En vue de résoudre ce problème la recherche a mis le point sur plusieurs nouvelles techniques électrochimiques permettant à la fois une clarification, une désinfection et une élimination de la pollution organique et inorganique sans utilisation d'importantes quantités de réactif chimiques et par conséquent diminution du volume des boues. Le développement de l'électricité et la facilité d'automatisation de ces techniques ont permis une avancée dans le domaine d'électrochimie pour le traitement des eaux usées.

1. REVUE DE LA LITTÉRATURE

1.1 Eaux usées de camping et leurs caractéristiques

Les eaux usées de camping ont des caractéristiques similaires aux eaux usées domestiques. Ce type d'eaux usées peut être subdivisé en deux grandes parties : i) les eaux usées ménagères provenant des salles de bain, des cuisines et buanderies qui ont une forte charge en DBO_5, DCO et des charges relativement faibles en nutriments (Phosphore, Azote, etc) et ; ii) les eaux usées provenant des toilettes qui se caractérisent par une forte charge microbiologique (Eriksson *et al.*, 2002). Ces eaux peuvent aussi être riches en micropolluants, hormones, médicaments, produits de soins, etc. La charge polluante de ces eaux n'est pas stable, elle change dépendamment des lieux de nombre de personnes de leurs niveaux de vie, du climat, etc. Le tableau 1 présente la charge polluante des eaux usées de camping selon plusieurs sources :

Tableau 1 Plages de concentrations de différents paramètres d'après plusieurs auteurs (Daghrir, 2010b)

Paramètre	Charge (g/pers/jour)		Concentration mg/l				
	Plage	Moyenne	Tchobanoglous et Burton, 1991	EPA, 2002	Burks et Minnis	BNQ	Otis, 1975
	Crites et Tchibanglous, 1998						
DBO5	50 – 120	80	210 – 530	155 - 286	100 - 400	100 - 300	142- 174
MES	60 – 150	90	237 – 600	153 - 330	100- 400	100 - 350	-
Pt	2.7 - 4.5	3.2	10 – 27	6 - 12	5 - 20	-	11 - 18
Coliformes fécaux	-	-	10^6 - 10^8	10^6 - 10^8	10^6 - 10^8 UFC/100 ml (tot)	-	-

1.2 Problématique des eaux de camping

À Québec comme partout dans le monde, l'augmentation croissante des zones d'habitations dispersées (camping, hôtels, stations touristiques, etc.) non connectées à des systèmes

centralisés de traitement dans les pays industrialisés oblige les gestionnaires et les scientifiques à mettre en place de petites installations d'assainissement des eaux usées de camping (EUC),

La réglementation devient de plus en plus contraignante à cause de la grande industrialisation. Le traitement conventionnel par des fausses septiques n'est plus suffisant pour dépolluer ces eaux et pouvoir les rejeter dans l'environnement à cause de l'importante charge polluante qu'elles contiennent. Les EUC sont riches en polluants et nutriments (P, K, etc.), cette pollution affecte le sol, l'eau et en effet l'être humain.

Selon (Pignatello *et al.*, 2006), le nombre des résidences isolées dont le débit total quotidien est de 3240 litres (incluant les terrains de camping) est estimé à 1 million au Québec, soit 3.24 millions m^3 d'eaux usées domestiques sont produites quotidiennement (près de 1166.4 millions m^3/an). Ces eaux sont généralement acheminées vers une fosse septique où les solides se déposent au fond du bassin tandis que les écumes (huiles et graisses) sont piégées à la surface du liquide. Le surnageant est par la suite acheminé vers un champ d'épuration (filtre aménagé à même le sol). Après ce traitement conventionnel, ces eaux contiennent toujours des quantités non négligeables de polluants organiques, inorganiques et bactériens (P_T >14 mg/L, MES > 176 mg/L, NT > 79 mg/L, etc.) (Matassa *et al.*, 2005). Ces valeurs sont nettement supérieures aux normes exigées par le règlement portant sur l'évacuation et le traitement des eaux usées des résidences isolées (Q-2, r.22) (DBO_5=15 mg/L, MES = 15 mg/L, P_T= 1.0 mg/L, Colif. fécaux = 200 UFC 100ml) (Matassa *et al.*, 2005).

Le rejet de tels effluents contenant des concentrations relativement élevées en phosphore peut entrainer de graves conséquences sur les écosystèmes aquatiques (phénomène d'eutrophisation). Ce phénomène entraîne la prolifération de plantes aquatiques et d'algues au détriment d'autres espèces. Cette prolifération cause une consomation de l'oxygène dissous et limite le processus photosynthétique d'espèces aquatiques et la penetration du rayonnement solaire. Ce phénomène menace la survie des espèces (poissons, insectes, etc.), et touche grandement l'équilibre de la faune aquatique. De même, la présence d'une grande concentration d'azote peut également contribuer à la diminution de la concentration en O_2 dissous (Robertson, 1987). Selon Matassa et al., (2005), dans les eaux de camping (EUC), le

phosphore total et l'azote total peuvent atteindre des concentrations de 100 et 830 mg/L, respectivement. L'utilisation des détergents est la source majeure de ces concentrations. La présence de polluants organiques réfractaires (pharmaceutiques, oestrogènes, etc.) doit aussi être prise en compte en raison de leur toxicité potentielle (cancer, féminisation des poissons, etc.). Dans les eaux résiduaires des résidences isolées, il est possible de rencontrer des contaminants médicamenteux tels que l'acide salicylique (67.7 µg/L), l'ibuprofène (17.1 µg/L), l'OH-ibuprofène (20.7 µg/L), la carbamazépine (13.8 µg/L) et l'acide hydrocinnamique (45.54 µg/L) (Matamoros *et al.*, 2009). À cela, s'ajoute la présence de microorganismes pathogènes (bactéries, virus, parasites) qui peuvent avoir des effets néfastes sur la santé humaine causant divers types de maladies telles que la diarrhée, la fièvre, la dysenterie, et la gastro-entérite. Selon Henze et al. (2002), des concentrations d'E.coli et de Streptocoques fécaux allant jusqu'à 10^7 UFC/mL ont été enregistrées dans les eaux usées domestiques des résidences isolées (Henze *et al.*, 2001). Ces effluents domestiques non traités suffisamment constituent l'une des principales sources de contamination de l'environnement. Au Canada, les fosses septiques d'assainissement autonome d'habitats contribuent à produire 20 % de la quantité totale des eaux usées (Crites & Technobanoglous, 1998; Mortula, 2006). Ces petites installations de traitement des eaux résiduaires sont souvent caractérisées par le manque d'infrastructures appropriées pour atteindre de manière optimale les normes de rejets qui évoluent vers une sévérité croissante (Mortula, 2006). Pour pallier à ces problèmes, des procédés physiques, physico-chimiques, chimiques et biologiques sont étudiés et leur couplage est souvent envisagé (Friedler & Gilboa, 2010; Massé & Masse, 2000; Meiqiang, 2003; Senghor, 2013; Wang *et al.*, 2009). Par exemple, des procédés biologiques d'épuration tels que Ecoflo, Bioseg, Rotafix, etc. commercialisés par la compagnie Premier Tech sont efficaces lorsque l'effluent contient des composés biodégradables et non toxiques. En revanche, certains composés potentiellement toxiques ou réfractaires (tels que les contaminants médicamenteux) peuvent être retrouvés dans les eaux domestiques et perturber le fonctionnement de ces installations biologiques. Dans l'optique d'un développement durable et avec des réglementations environnementales de plus en plus contraignantes, il devient urgent de soumettre ces eaux résiduaires à des traitements plus poussés pour mieux protéger l'environnement de l'arrivée de contaminants

nocifs pour la faune et la flore. Les tendances actuelles de la R&D sont désormais orientées vers les techniques respectueuses de l'environnement (i.e.; sans ajouts de produits chimiques), moins coûteuses, relativement simples, efficaces et capables d'éliminer simultanément (en une seule étape) des polluants de type organique, inorganique et microbien. Dans cette perspective, les procédés électrolytiques utilisant à la fois des électrodes sacrificielles et catalytiques représentent une approche originale très attrayante pour les technologies environnementales.

1.3 Normes de rejets

Le règlement stipule que nul ne peut rejeter ni permettre le rejet dans l'environnement des eaux provenant des cabinets d'aisances ou des eaux usées ménagères d'une résidence isolée.

Selon le règlement sur l'évacuation et le traitement des eaux usées des résidences isolées

Ces normes s'appliquent dans les situations suivantes :

- Nouvelle résidence de 6 chambres à coucher ou moins ;
- Tout autre bâtiment qui rejette moins de 3240 litres d'eaux usées domestiques par jour ;
- Résidences existante responsable de la nuisance ou de contamination quelconque ;
- Construction d'une chambre à coucher supplémentaire dans une résidence existante ou augmentation de la capacité d'exploitation d'un autre bâtiment ;
- Construction, rénovation, modification, reconstruction, déplacement ou agrandissement d'une installation septique existante ou un puisard.

La législation devient de plus en plus contraignante en ce qui concerne les rejets d'eaux usées dans la plupart des pays du monde. Ces législations sont souvent basées sur des concentrations de ce qu'on peut appeler indicateurs de pollution, dont les plus connus sont les matières en suspension (MES), demande biochimique en oxygène (DBO_5), les micro-organismes pathogènes (Coliformes), les métaux dissous, le phosphore et l'azote.

Au Québec, la MDDEP a élaboré un guide concernant le rejet des eaux usées de résidences isolées (Q-2, r.22). Ce guide contient un certain nombre de directives en relation avec la construction des systèmes et des dispositifs de traitement des eaux usées de résidences isolées et autres construction non connectées au réseau d'assainissement collectif et dont le débit quotidien est inférieur ou égal à 3420 litres, ce guide aborde les normes qui régissent les rejets d'eaux usées en provenance des résidences isolées. Le règlement exige un traitement primaire (Fosse septique), secondaire et un traitement tertiaire. On commence à parler de la déphosphatation et/ou la désinfections à partir des systèmes de traitement tertiaire.

Le tableau 2 représente les valeurs limites de à la sortie selon chaque type de traitement utilisé.

Tableau 2 Normes de rejet des systèmes d'assainissement autonomes (Développement durable, 2015)

Types de traitement	Concentrations maximales des indicateurs de pollution dans l'effluent			
	MES (mg/L)	DBO_5	CF UFC/100mL	Phosphore (mg/L)
Traitement primaire	100	s/o	s/o	s/o
Traitement secondaire	30	25	s/o	s/o
Traitement secondaire avancé	15	15	50000	s/o
Traitement tertiaire avec déphosphatation	15	15	50000	1
Traitement tertiaire avec désinfection	15	15	200	s/o

1.4 Prétraitement des eaux usées de camping

1.4.1 Traitement par fosse septique

Le prétraitement des eaux usées de camping se réalise par le passage des effluents par une fosse septique. Ce dispositif combine une action physique (sert à favoriser la décantation des écumes) et une action biologique (sert à dégrader la matière organique par les microorganismes).

La grandeur et le dimensionnement d'une fosse septique dépendent principalement du débit journalier. Ce débit est fonction du nombre de personnes habitants la résidence isolée.

La fosse septique doit respecter plusieurs critères afin d'être conforme à la réglementation. Au nombre de ces critères se trouve l'étanchéité du système afin de ne pas contaminer le milieu environnant (Nappe phréatiques, sol). Un autre critère consiste à vidanger périodiquement la fosse septique dépendamment du débit qu'elle reçoit.

Dans une filière conventionnelle, la décantation des matières en suspension se fait au niveau de la fosse septique. Au niveau de ce traitement primaire, se fait aussi une dégradation anaérobie d'une faible fraction de la matière organique. La capacité d'une fosse septique dépend des débits d'eau qu'elle reçoit. La capacité de traitement d'une fosse septique est exprimée en nombre de chambres à coucher, nombre d'habitants, ou bien en termes d'équivalent habitant.

1.4.2 Passage par un lit filtrant

L'étape suivante est le passage par un champ d'épuration formé d'un réseau de drain de distribution en plastique déposé dans des tranchés de gravier au-dessus desquels se trouve une couche de sol où se forme un lit filtrant, permettant d'effectuer un traitement naturel des eaux. Les bactéries se trouvant sur le fond des tranchées et à même le sol environnant dégradent la matière organique qui se trouve dans les eaux usées conduisant à une diminution de la pollution organique. Cette étape d'épuration à l'aide du lit filtrant et par exposition aux bactéries permet de dégrader une grande partie des polluants organiques.

Le traitement primaire peut être amélioré par ajout de coagulants chimique comme le chlorure de Fe($FeCl_3$), le chlorure d'aluminium ($AlCl_3$) ou de sulfate d'aluminium $Al_2(SO_4)_3$ (Zheng *et al.*, 2012). Ces coagulants vont permettre la formation des flocs dont la taille dépend de la quantité du floculant ajouté (Aiyuk *et al.*, 2004) et faciliter le processus d'élimination par filtration.

1.5 Traitements physico-chimiques des EUC

Le traitement physico-chimique des eaux usées est généralement un ensemble de procédés qui visent l'élimination d'une grande partie de la matière en suspension, matière colloïdale, par un

ensemble de processus qui seront détaillés dans la partie suivante. Différentes techniques de traitement physico-chimiques des eaux usées domestiques peuvent être utilisées.

1.5.1 Traitement par coagulation chimique

La coagulation est une technique qui a comme principe la neutralisation des charges des particules en suspension afin de les stabiliser à travers des collisions mutuelles avec des contre ions, suivi par une sédimentation. En ce qui concerne la coagulation conventionnelle, on utilise un coagulant chimique qui est dans la plupart du temps un sel métallique ($FeCl_3$, $FeSO_2$, alun, etc.). L'efficacité de ce processus dépend de la nature et de la dose du sel coagulant. La coagulation est dans la plupart des cas suivie d'une floculation, ce qui permet l'agglomération des particules. Le processus de floculation se fait dans la plupart de temps par l'ajout d'un polymère afin de former des flocs plus stables et plus denses plus faciles à séparer de la fraction liquide. La recherche s'oriente actuellement vers des technologies sans utilisation de produits chimiques, avec une bonne capacité de coagulation, avec le minimum de résidus chimiques et moins de boues produites. L'électrocoagulation permet l'élimination des MES, de la DBO5, des composés organiques réfractaires, des nutriments (surtout le Phosphore), des métaux lourds et des sels inorganiques etc (Meunier *et al.*, 2004).

1.5.2 Traitement par filtration sur sable

Ce procédé doit être préférablement utilisé après l'étape de coagulation-floculation afin d'éviter le colmatage du milieu poreux. Son principe réside en le passage des eaux usées à travers un support poreux afin de clarifier les eaux en éliminant les MES. Le sable et l'anthracite sont les supports les plus utilisés dans le domaine de filtration, ils peuvent être utilisés séparément comme sur le même filtre. Les caractéristiques déterminantes pour ces milieux sont : le diamètre effectif, le coefficient d'uniformité, la densité relative et la porosité (Desjardins, 1990).

La grande surface, le manque d'efficacité présentent les principaux inconvénients reliés à ce type de traitement.

1.5.3 Traitement par filtration membranaire

La différence majeure entre la filtration membranaire et la filtration standard est l'épaisseur du milieu poreux. Une membrane est composée d'un matériau qui se présente sous la forme de parois minces (0,04mm à 2mm) et qui a la capacité d'exercer une résistance sélective au passage des différents constituants de l'eau usée à traiter. Cette caractéristique permet la séparation de certains éléments composants le fluide à traiter dépendamment de leurs diamètres. Plusieurs types de filtrations font partie de la séparation membranaire dépendamment du diamètre des pores et en effet des polluant qui seront retenus, on peut en citer ; la microfiltration (MF), l'ultrafiltration (UF), la nano-filtration (NF) et l'osmose inverse (OI). Chacune de ces filtrations a sa marge de séparation. Pour la micro filtration (MF), elle permet l'élimination des particules de l'ordre de 0.05 à 50 µm, en ce qui concerne l'ultrafiltration, elle est capable de retenir des particules de l'ordre de 1 à 100nm.

La filtration membranaire nécessite l'application d'une pression pour que l'eau puisse traverser les pores. De plus l'eau à traiter traverse le filtre d'une façon tangentielle et non pas perpendiculaire comme le cas des filtres standards.

Les membranes existent en plusieurs types, elles peuvent être organiques (ex : polymères) ou minérales (Alumine fritté) (Blšťáková *et al.*, 2009).

Ces techniques sont très prometteuses du point de vue élimination de la pollution avec le moins d'additifs chimiques et la possibilité de diminuer le rejet, cependant le grand facteur limitant pour les procédés de filtration membranaire est le risque de colmatage élevé (Crini & Badot, 2007).

1.6 Traitements biologiques

Les traitements biologiques se séparent en deux grandes catégories : i) les traitements sur pellicules fixes (lit bactérien, disques biologiques) et ii) les procédés en boues (boues activées, lagunage). Ces deux catégories peuvent aussi être subdivisées en deux types, traitement aérobie et traitement anaérobie.

Le traitement aérobie est un traitement dans lequel les bactéries dégradent la matière organique présente dans les eaux usées en présence de l'oxygène, alors que le procédé en anaérobie se fait en absence d'oxygène. L'efficacité du traitement est fortement liée à l'activité biologique qui en elle-même intimement liée à la biodégradabilité des polluants. Cependant ce ne sont pas les seuls paramètres déterminant le bon fonctionnement du processus biologique, la présence de composées toxique ou inhibiteurs, la présence des nutriments, le pH, et la température sont des paramètres à prendre en considération.

Certes que les procédés biologiques sont plus efficaces que ceux physico-chimiques en termes de production des boues pour une même quantité de pollution traitée, mais ce type de procédé reste fortement sensible aux changements de l'environnement et des conditions. Les mauvaises odeurs et les grandes surfaces que nécessitent les traitements biologiques sont aussi des facteurs limitant pour ces techniques (El-Bestawy *et al.*, 2005).

1.7 Méthodes électrochimiques pour traitement des eaux usées

Les traitements électrolytiques, appelés aussi électrochimiques sont de plus en plus utilisés dans le domaine de traitement des eaux, à cause de leur bon potentiel d'épuration, avec un aspect moins polluant de l'électricité. L'utilisation de ces techniques permet d'utiliser le moins d'additifs chimiques et en effet une production de boues moins chargés. En plus la facilité de l'automatisation et la possibilité de les coupler avec toute autre technique de traitement. Ces techniques électrochimiques peuvent aussi remplacer les techniques biologiques qui ont parfois des limites pour traiter quelques composés réfractaires ou bio-résistants (Cenkin & Belevtsev, 1985).

La partie qui suit présente quelques techniques de traitement électrochimiques :

1.7.1 Traitement par électrocoagulation (EC)

Le traitement des eaux par électrocoagulation (figure 1) peut se faire en utilisant plusieurs types d'électrodes. Des anodes sacrificielles de fer (acier doux) et/ou d'aluminium sont largement utilisées. Ces matériaux sont choisis à cause de leur production d'hydroxydes (agents coagulants) quand on leur impose du courant, ce qui favorise la coagulation. L'anode soluble est donc composée d'un métal qui se dissout sous l'action du courant comme le cas du fer et

d'aluminium. De son côté, la cathode peut être également constituée de fer ou d'aluminium ou encore d'un autre métal. Lors de l'électrolyse, il n'y a pas de décomposition de la cathode induite par le courant électrique puisque le potentiel appliqué n'est pas excessif. Cependant, il y a un dégagement gazeux d'hydrogène (H_2) provenant de la réduction de l'eau. D'ailleurs, cette production de gaz contribue à la flottation des flocs d'hydroxydes métalliques (phénomène d'électro flottation), ce qui en facilite leur récupération à la surface du liquide.

L'électrocoagulation permet de traiter des eaux éventuellement chargées en matière organique, issus d'industries agro-alimentaires et de sites d'enfouissement…etc. À cet effet plusieurs essais sont effectués aux laboratoires afin de traiter ces eaux et pouvoir les rejeter dans l'environnement. Lors de ces essais, l'influence de plusieurs paramètres expérimentaux sur le système sont évalués (intensité de courant, temps de rétention, pH, concentration en électrolyte, conductivité, etc.). Une fois, les conditions optimales déterminées, des essais sont effectués afin de démontrer la reproductibilité du traitement.

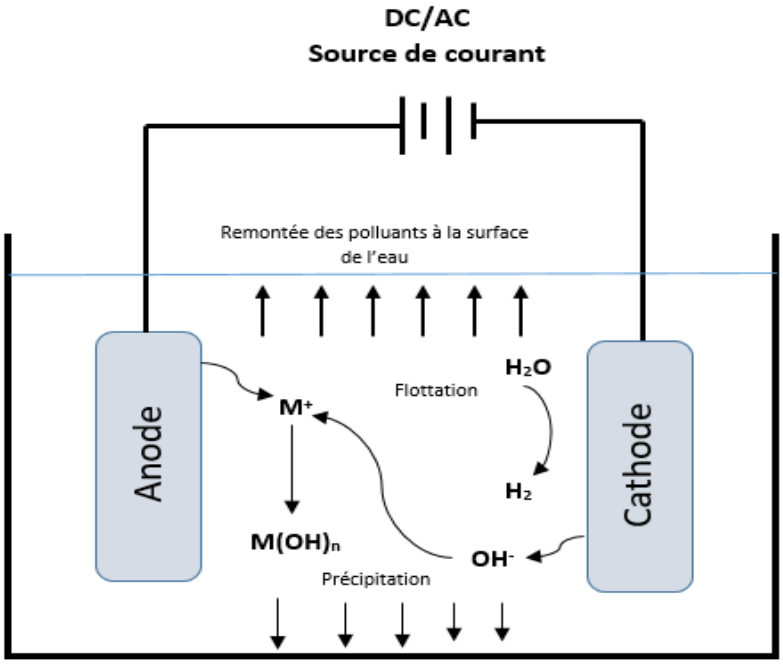

Figure 1 Principe du procédé d'électrocoagulation (Mollah *et al.*, 2001)

Deux types de montages sont possibles en électrocoagulation :

- Configuration mono-polaire (MP)

Dans cette configuration les huit électrodes utilisées sont individuellement branchées en alternance entre les bornes positive et négative du générateur de courant (Figure 2), Ainsi, quatre électrodes jouent le rôle d'anodes et les quatre autres servent de cathodes. Les quatre anodes se consomment graduellement sur les deux faces lors de l'imposition du courant tandis que les quatre cathodes demeurent intactes (Mollah *et al.*, 2001).

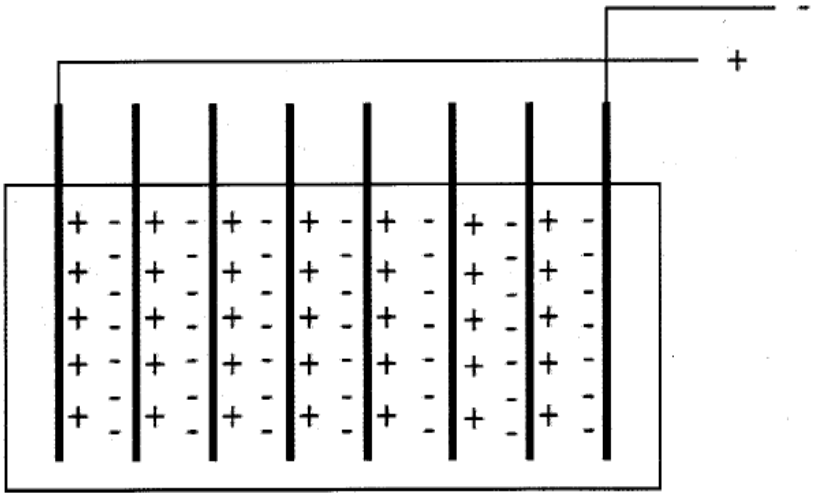

Figure 2 Montage d'électrocoagulation mono-polaire

- Configuration bipolaire (BP)

Dans cette configuration, seules les deux électrodes situées aux extrémités de la série sont branchées au générateur du courant, les six autres jouant à la fois le rôle d'anode et de cathode (Figure 3). En effet, les six électrodes intermédiaires qui ne sont pas connectées au générateur de courant deviennent électriquement actives grâce au déplacement des ions en solution sous l'effet du champ électrique et de l'agitation mécanique. Chaque ion transporte une fraction du courant ce qui cause une activation des électrodes intermédiaires. Ainsi, sept électrodes sur huit sont graduellement consommées lors de l'électrolyse (Mollah *et al.*, 2001).

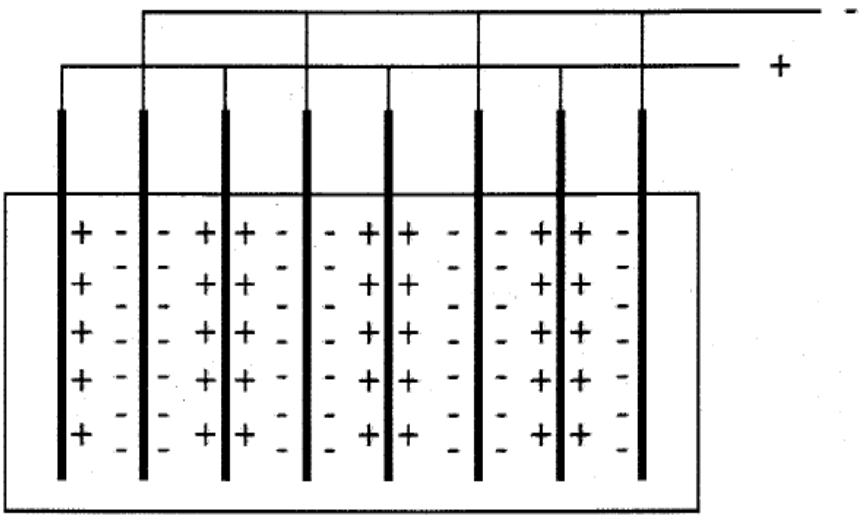

Figure 3 Montage d'électrocoagulation bipolaire

1.7.2 Electro-peroxydation

Le couplage d'EC-EP a été évalué en termes de sa capacité de produire simultanément un agent oxydant et coagulant en utilisant les anodes de fer ou l'aluminium en présence des cathodes de graphites arrangés dans une configuration bipolaire ou mono polaire dans la même cellule électrolytique (Daghrir, 2010b).

Un traitement des eaux usées a démontré de meilleurs résultats en utilisant les électrodes d'aluminium et de graphite alterné dans l'électrode sous un courant de 0.4 A durant 90 minutes d'électrolyse avec un pH ajusté à 7. Sous ses conditions plus de 98% d'huiles et graisses ont été éliminées et en effet une diminution de la demande chimique en oxygène (COD) de 90% et de demande biologique en oxygène (BOD) de 86%, respectivement. Également plus de 88% de phosphate soluble et 98% de turbidité et de solides en suspension ont été éliminés.

Le couplage des deux procédés (EC et EP) dans le même réacteur semble très efficace pour les eaux usées domestique, cela permettra d'éliminer simultanément les polluants insolubles et solubles. Il a été conclu par Daghrir (2010), que la combinaison des deux techniques permet d'éliminer simultanément les polluants inorganiques (Phosphates) par co-précipitation, car l'utilisation du savon du shampoing et des détergents n'échappe pas aussi aux résidences

isolées et aux campings et aussi les polluants organiques qu'ils soient en solution ou en suspension (Daghrir, 2010b).

EC/EP est une technologie qui permet la production des sels ferriques ou sels d'Aluminium au niveau de l'anode par dissolution du Fer ou d'Aluminium et en effet génération des OH° en donnant lieu à la réaction Fenton (Eq 1).

Equation 1 $\mathbf{Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + OH^- + \bullet OH}$

La réaction du dioxyde de Fer avec le peroxyde d'hydrogène permet de générer des radicaux hydroxyles OH° qui a un fort potentiel oxydant et qui permet d'éliminer une bonne partie de la pollution microbiologique et organique réfractaire (Ditzig *et al.*, 2007; Drogui *et al.*, 2001).

L'utilisation de cette technique a donné un bon taux d'élimination bactériologique à cause de la double action direct de l'électrolyse sur l'oxydation et la réduction au niveau des électrodes et une deuxième action indirecte et qui est la génération du peroxyde (Solano *et al.*, 2015). Ces deux facteurs auxquels on ne peut pas diviser leurs contributions à la désinfection. Cependant cette technologie dépend du pH qui a une grande influence sur la production du peroxyde et en effet sur celle des radicaux hydroxyles (Drogui *et al.*, 2001).

L'un des facteurs les plus importants ayant une grande influence sur l'efficacité du procédé EC/EP en général et sur la production du peroxyde d'hydrogène en particulier est le pH de l'effluent. Il a été confirmé par Jiang and Zhang (2007) que la valeur optimale du pH est comprise entre 2 et 4 pour une meilleure production du peroxyde d'hydrogène.

En effet, une valeur de pH faible est favorable à la production du H_2O_2 car la conversion de l'oxygène dissout en peroxyde d'hydrogène consomme les protons présents dans la solution. Lorsque le pH de la solution augmente, les ions de Fe^{2+} et les ions Fe^{3+} précipitent conduisant ainsi à une diminution de l'efficacité.

1.7.3 Electro-oxydation

Le principe de cette technique réside en l'application d'une différence de potentiel entre les électrodes immergées dans l'effluent, ce qui permet de créer un champ électrique. Au niveau de l'anode se passe une réaction d'oxydation alors qu'au niveau de la cathode se passe une réaction de réduction.

La technique d'électro-oxydation permet de générer in-situ des radicaux OH° capable d'oxyder les polluants organiques (Ando & Tanaka, 2004). Ces radicaux sont générés par oxydation de l'eau à la surface de l'anode. Généralement, l'efficacité de l'oxydation par voie électrochimique est due à la double action sur les polluants organiques (effet direct et indirect de l'électrolyse). Cette double action donne à l'électro-oxydation un exclusive avantage par rapport aux traitements par voie chimique et biologique. En effet, l'électro-oxydation des polluants se fait soit directement sur l'électrode (effet direct) et/ou par génération in situ d'un oxydant dans la solution (effet indirect) (Gandini *et al.*, 1998; Zaviska *et al.*, 2011). L'action directe est obtenue par décharge anodique de la molécule d'eau, ce qui conduit à la génération des radicaux libres (OH°) au niveau de l'électrode.

La voie d'oxydation électrolytique indirecte assure une élimination de plusieurs composés organiques. En effet la présence des ions chlorure dans le milieu, assure une électrolyse directe des composés organique à la surface de l'anode par des radicaux hydroxyles et une électrolyse indirecte par la présence du chlore actif dans le milieu.

Les radicaux hydroxyles ont une forte capacité d'oxydation des molécules organiques complexes, qui ne se dégradent pas ou difficilement oxydables par voie chimique (Kobya *et al.*, 2003).

Ces radicaux réagissent efficacement avec les polluants réfractaires, il est aussi possible d'exploiter simultanément l'action de plusieurs oxydants en utilisant les réactions anodiques et cathodique avec différents types d'électrodes dans un même réacteur (Zaviska *et al.*, 2011).

1.8 Avantages et inconvénients des électro-technologies

1.8.1 Avantage de l'utilisation des électro-technologies (ET)

- ET nécessite un équipement facile à opérer.
- Les boues formées par des traitements électrolytiques sont plus faciles à éliminer et à sécher à cause de leur composition, principalement d'oxydes et hydroxydes métalliques. Les ET restent des technologies peu productrices des boues (Mollah *et al.*, 2001)
- Les flocs formés par l'électrocoagulation sont plus hydrophobes que ceux formés par la coagulation chimique.
- L'électrocoagulation génère des effluents avec moins de solides totaux dissous (STD) comparativement aux traitements chimiques. Dans le cas de la réutilisation des eaux le traitement devient moins couteux.
- Le procédé d'électrocoagulation élimine les particules colloïdales à l'aide de l'application du champ électrique.
- Les procédés électrochimiques permettent d'éviter l'utilisation de produits chimiques, ce qui permet d'éviter le problème de sous-produits chimiques causés par l'utilisation des substances chimiques (coagulants) utilisées en grandes concentrations.
- Les bulles de gaz produits durant l'électrolyse peuvent mener à la flottation des polluants dans la solution, et par conséquent la possibilité de les concentrer, de les collecter et de les éliminer.

1.8.2 Inconvénients de l'électrocoagulation

- L'oxydation anodique induit une dissolution continue des électrodes (dans l'effluent à traiter), ce qui entraîne à remplacer régulièrement les électrodes.
- L'utilisation de l'électricité peut être chère dans quelques endroits au monde.
- Un film imperméable peut être formé sur la cathode menant à la perte d'efficacité de traitement.
- L'efficacité du processus dépend de la conductivité de l'effluent à traiter.
- L'Hydroxyde gélatineux a parfois tendance à se solubiliser (Mollah *et al.*, 2001).

1.9 Paramètres influençant le traitement électrochimique des eaux usées

1.9.1 Intensité de courant électrique

Le courant est la base des techniques électrochimiques. De nombreuses études rapportent l'effet de l'intensité de courant électrique sur l'efficacité de traitements électrochimiques des effluents (Chen *et al.*, 2000; Tran, 2009). La majorité des études ont démontré qu'en augmentant l'intensité de courant, l'efficacité de traitement augmente. La quantité d'ions Al^{3+} ou Fe^{2+} libérés aux électrodes sont fonction de l'intensité de courant imposée (Chen *et al.*, 2000). Il a été rapporté par Kornienko *et al.* (2006) que l'efficacité d'élimination de plusieurs polluants organiques tels que 2,6-diaméthylamine est améliorée lors de l'augmentation de la densité de courant. En effet, une augmentation de la densité de 3,5 A/m² à 10,6A/m² a permis d'augmenter la capacité d'élimination du 2,6-diaméthylamine, de 58% à 91%. La même observation a été réalisée par Ting *et al.* (2009) pour le traitement d'un effluent contaminé par du phénol. Ces derniers ont rapporté que le fait de doubler la densité de courant, augmente le taux d'élimination du phénol, pour lequel le pourcentage d'élimination était de 84% et passe à 92%. Le courant contrôle les cinétiques électrochimiques de la dissolution des électrodes anodiques et le dégagement de l'hydrogène à la cathode (Asselin, 2007; Holt *et al.*, 2005). Cependant le fait d'imposer une intensité de courant plus élevée, causera une forte consommation des électrodes, ce qui rendra le procédé moins rentable sur le plan énergétique et économique. Le choix de l'intensité dépend de plusieurs paramètres tels que le pH, la température, le débit et la géométrie des électrodes (Drogui *et al.*, 2001; Schmalz *et al.*, 2009).

1.9.2 pH de l'effluent à traiter

Le pH est l'un des paramètres déterminants dans un traitement électrochimique. Il détermine en partie les formes moléculaires des oxydants, leurs réactions avec d'autre polluants et leurs paramètres physico-chimiques (Kobya *et al.*, 2003; Panizza & Cerisola, 2001). En EC, la variation du pH peut affecter la formation des hydroxydes métalliques et par conséquent, les performances du procédé (Mollah *et al.*, 2004). Par exemple, en milieu alcalin (pH > 8), les ions hydroxydes (OH^-) et des hydroxydes métalliques favorisent la coagulation et la précipitation de certains polluants. Une étude réalisée par Gandini *et al.* (1998) ont prouvé que l'efficacité de

traitement électrochimique augmente avec le pH de la solution. Or, d'autres études ont démontré que les meilleurs rendements d'oxydation de composés organique (Ex : HAP, Phénol, etc.) sont à un pH situé autour de la neutralité en utilisant une électrode catalytique de titane recouverte d'oxyde de ruthénium (Tran, 2009).

1.9.3 La conductivité de la solution

L'action du courant est en lien direct avec la conductivité, car cette dernière affecte significativement, la consommation énergétique dans la cellule électrochimique (Chen *et al.*, 2000), (Daneshvar *et al.*, 2006). La conductivité de l'effluent peut être améliorée par l'ajout d'un sel conducteur notamment le sulfate de sodium.

2. OBJECTIFS DE RECHERCHE ET MÉTHODOLOGIE

2.1 Objectif principal

L'objectif principal de cette étude est de développer une méthode électrolytique afin de réduire la charge polluante des eaux usées de camping et de résidences isolées de manière à se conformer à la réglementation en vigueur (Tableau 2).

2.2 Objectifs spécifiques

Les objectifs spécifiques de cette étude sont :

- Identifier l'anode sacrificielle (Al ou le Fer) la plus performante.
- Optimiser les paramètres expérimentaux lors de l'application du procédé EC/EP.
- Comparer dans les conditions optimales le pouvoir épuratoire du procédé EC/EP avec EC seul et électro-oxydation (EO).
- Identifier, sur la base des résultats obtenus, la filière de traitement la mieux adaptée en termes d'élimination des polluants organiques et inorganiques.

2.3 Hypothèses de recherche et originalité

i. Le traitement par EC/EP opéré dans un même réacteur peut s'avérer plus efficace qu'un traitement d'électrocoagulation seule. Une telle combinaison permettra de bénéficier des performances des deux traitements sur les polluants organiques, inorganiques et microbiens, alors que l'utilisation d'un traitement par électrocoagulation seule pourrait ne pas être suffisante pour respecter les normes de rejet des eaux usées dans l'environnement.

ii. L'utilisation de l'électrode de Fe à l'anode et de Gr à la cathode induit la génération d'un oxydant fort (les radicaux libres) non sélectif permettant l'élimination de la majorité des polluants de l'eau à traiter tout en agissant sur l'intensité de courant et le temps de traitement.

iii. Pour un effluent ayant une DCO plus élevée, l'ajout d'un procédé d'EO pourrait s'avérer plus efficace, induisant une génération de radicaux hydroxyles capables de dégrader la majorité des polluants restant après le traitement par EC/EP.

L'objectif ultime de ce projet est de développer un procédé d'électrocoagulation (EC) combiné à un procédé d'électro-peroxydation (EP) innovant pour la décontamination efficace des eaux résiduaires de camping non connecté à des systèmes centralisés de traitement. Ce procédé hybride devrait permettre de répondre aux objectifs environnementaux de rejets pour ce type d'effluent.

2.4 Démarche expérimentale

La première partie de ce projet consistait à évaluer la capacité de la cellule à produire des oxydants totaux et du peroxyde d'hydrogène.

La deuxième partie consistait en la caractérisation physico-chimique de l'effluent afin d'identifier l'ensemble des contaminants contenus dans les EUC et leurs concentrations. Les EUC se caractérisent par une concentration relativement élevée en DCO ainsi qu'une forte teneur en phosphore (P_t), azote ($N\text{-}NH_4$), et de coliformes.

La troisième partie est celle du traitement électrochimique des effluents. Durant les tests, plusieurs paramètres ont été testés (intensités, temps, effet anode, effet cathode etc.) afin de choisir les paramètres optimaux pour chaque procédé. Les analyses ont été effectuées sur des effluents échantillonnés pendant différents périodes. Le premier échantillon (Effluent-1) a été prélevé le 20/04/2017 par le personnel du camping et acheminé au laboratoire LEEPO (Laboratoire d'Électro-technologie Environnementale et procédés Oxydatifs). Le deuxième échantillon (Effluent-2) a été prélevé le 29/06/2017 sur le site du camping par l'équipe de l'INRS. Plusieurs paramètres ont été analysés, DCO, MES, DBO_5, TOC, métaux et coliformes. Cette même partie est subdivisée à trois parties pour l'effluent (2). Trois types de traitements ont été appliqués : (i) Traitement par électrocoagulation (EC) seule ; (ii) Traitement par électro-peroxydation/électrocoagulation (EP/EC) et ; (iii) Traitement par électro-peroxydation/électrocoagulation (EP/EC) suivie de l'électro-oxydation (EO).

3. MATÉRIEL ET MÉTHODES

3.1 Échantillonnage et caractéristiques de l'effluent initial

Les eaux usées de camping utilisées dans ce projet proviennent d'un camping se trouvant dans la municipalité de Mont-Carmel, dans la région de Québec. L'effluent a été prélevé directement à partir des fosses septiques Figure N°4. L'eau brute était turbide, noirâtre et contenait des insectes et de petites branches d'arbres et végétaux. Les principales caractéristiques de ces eaux sont : DCO autour de 3019 mg-O_2 /l, DBO_5 de l'ordre de 4260 mg-O_2/l et une turbidité de 1360 NTU.

Les caractéristiques initiales sont présentées dans le tableau suivant :

Tableau 3 Caractéristiques physico-chimiques et bactériennes des EUC et normes de rejets (Gouvernement du Québec, 2015)

Paramètre	Effluent 01	Normes de rejets
pH	6,69 ± 0,17	-
Conductivité (mS/cm)	965	-
Turbidité (NTU)	1360 ± 70	-
DCO (mg-O_2/L)	3019 ± 179	-
COT (mg/l)	63 ± 5	-
DBO_5 (mg-O_2/L)	4260	15
Coliformes totaux (CFU/100 ml)	5900000	200
MES (mg/l)	62 ± 09	15
Couleur Vraie (UCV)	15,2 ± 0,6	-
NH4 (mg-N/l)	101 ± 14	-
Phosphore total (mg-P/l)	22,5 ± 2,3	1

Figure 4 : Illustration montrant la fosse septique, lieu de prélèvement de l'échantillon faisant l'objet de notre étude.

Comme le montre le tableau N°3, les analyses ont été effectuées sur deux effluents ; le premier a été échantillonné par l'entreprise en date du 20/04/2017 et qui était trop chargé vu qu'il datait de l'activité de camping de l'année précédente et la température n'étais pas suffisante pour accroitre l'acticité bactérienne. Le deuxième effluent était échantillonné en date du 29/06/2017 et était moins chargé que les premiers échantillons. Cette variabilité nous a permis de comparer l'effet de plusieurs paramètres de la matrice. La figure 5 nous permet de constater la différence visuelle entre les deux échantillons.

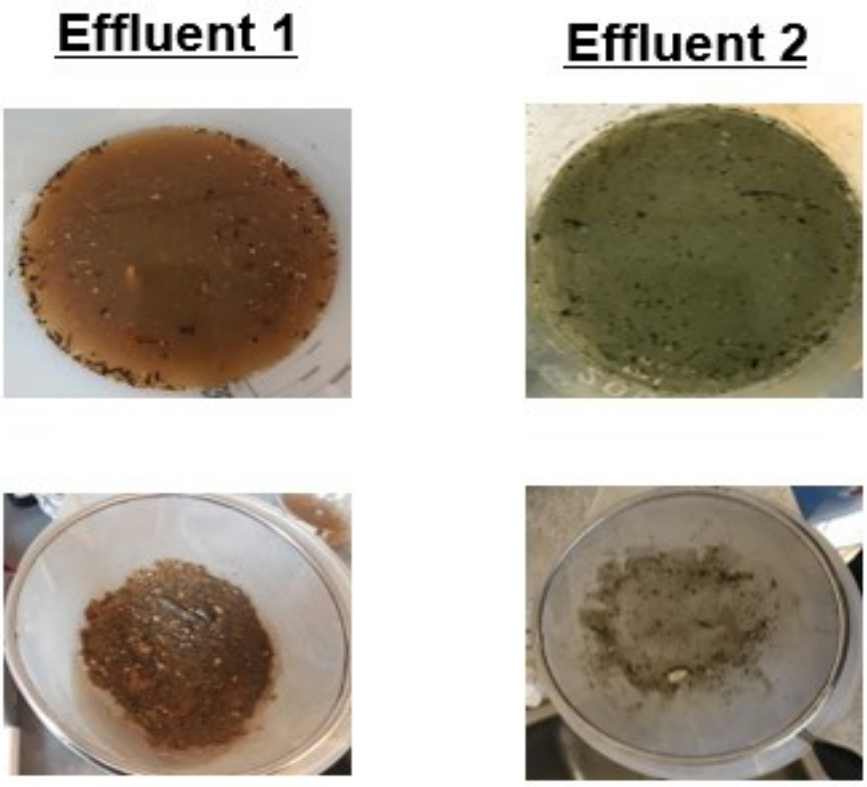

Figure 5 : Comparaison visuelle des échantillons après filtration

3.2 Montage et caractéristiques de la cellule de traitement type laboratoire

3.2.1 Montage de la cellule

L'unité de traitement était un réacteur fabriqué en plexiglas de 12 cm de profondeur, 12 cm de largeur et 19 cm de hauteur. Dans ce réacteur sont placé 8 électrodes placées parallèlement les unes aux autres. La surface active totale de chaque électrode résulte de 110 cm² et la distance entre elles est de 1cm. Les électrodes ont été maintenues en place dans le réacteur par un support perforé en plexiglas situé à 2 cm du fond du réacteur et elles ont été presque entièrement submergées par l'eau à traiter. La cellule était de 12 cm de largeur et de 19 cm de profondeur comme indiqué dans le schéma Figure 7. Le mode batch utilisé au cours de ce traitement permet une recirculation de l'eau dans un autre bac de recirculation d'un volume de 1L à l'aide d'une pompe péristaltique avec un débit de 300ml/min.

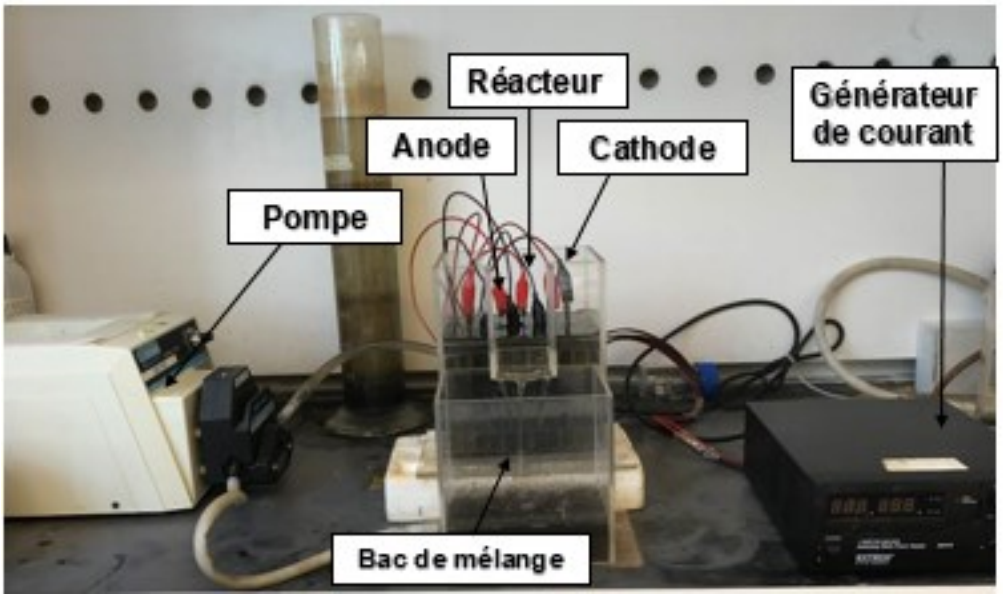

Figure 6 Photographie du dispositif expérimental pour le traitement par EC/EP

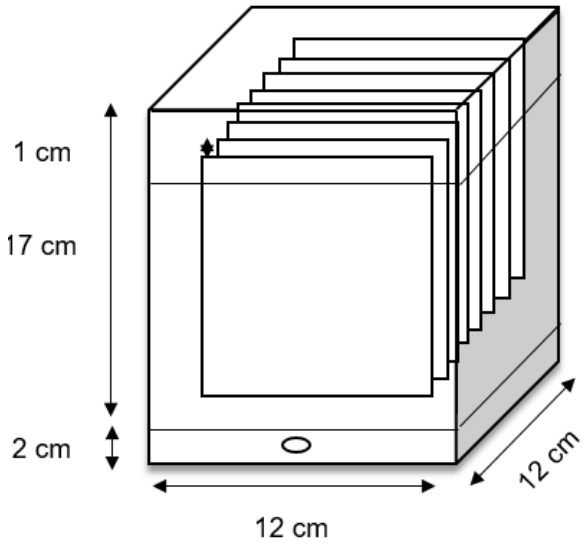

Figure 7 Schéma de la cellule de traitement par EC/EP (Échelle laboratoire)

Le courant a été imposé à l'aide d'un générateur de type EXTECH 382275 capable de générer une tension maximale de 30 V et une intensité maximale de 20 A. Un montage mono-polaire a

été utilisé pour le traitement des eaux usées de camping. Au cours de l'application du procédé électrolytique utilisant une configuration mono-polaire, 4 anodes de Fer sont connectées au pôle positif du générateur, alors que, 4 cathodes de Gr sont connectées au pôle négatif du générateur.

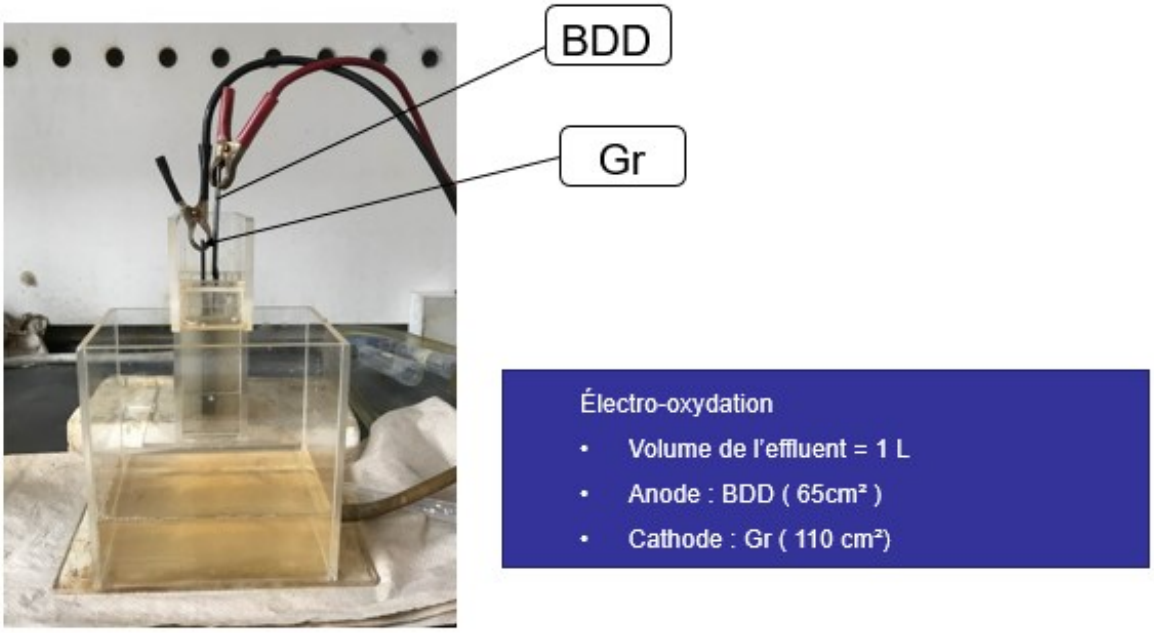

Figure 8 Photographie du dispositif experimental pour le traitement par EO

L'anode et la cathode ont été placées verticalement et connectées à un générateur de courant (Xantrex XFR40-70 - Aca Tmetrix, Canada) d'une capacité maximale de 70 A et 40 V. Cette cellule était reliée à un bac de recirculation d'une capacité de 1,5 L et de dimensions de 15 cm de profondeur, 14 cm de longueur et 9 cm de largeur. Ce bac permet de mélanger la solution à l'aide d'une pompe péristaltique fonctionnant à un débit de recirculation 250 mL/min. Durant tous les tests effectués, le graphite a été utilisé comme cathode avec une surface totale de 110 cm^2. Pour l'anode le BDD muni d'une surface de 65 cm^2 a été utilisé vu sa forte capacité à produire des oxydants permettant ainsi une plus grande production de radicaux hydroxyles (•OH). L'utilisation du BDD a pour effet de minimiser les réactions secondaires (production

d'oxygène due à l'oxydation de H_2O) et d'augmenter ainsi l'efficacité du traitement (Jardak *et al.*, 2016).

3.2.2 Caractérisation de la cellule en termes de production de peroxyde d'hydrogène et d'oxydants totaux

- Mesure du peroxyde d'hydrogène par titrage au sulfate de cérium

La méthode indirecte permet d'estimer la quantité de peroxyde d'hydrogène H_2O_2 généré par réduction d'oxygène au niveau de la cathode, à travers un dosage effectué par l'ajout de sulfate de cérium (produit chimique jaune) (($Ce(SO_4)_2$, $2(NH_4)2SO_4$. $2H_2O$) fourni par Fisher) à la solution contenant le peroxyde d'hydrogène (équation 2). Le dosage a été effectué en présence d'un indicateur coloré rouge (Orthophénanthroline ferreuse ou Ferroine (Fe (O-phen)$_3^{2+}$), qui se transforme en bleu pâle quand il réagit complètement avec le peroxyde se trouvant dans la solution. Ce changement de couleur indique le point de virage de la réaction selon l'équation 3.

Equation 2 $$\boldsymbol{2Ce^{4+} + H_2O_2 \leftrightarrow 2Ce^{3+} + O_2 + 2H^+}$$

Equation 3 $$\boldsymbol{\left[Fe\left((O-Phen)\right)_3\right]^{2+} + Ce^{4+} \leftrightarrow \left[Fe\left((O-Phen)\right)_3\right]^{3+} + Ce^{3+}}$$

Rouge bleu pâle

3.3 Traitement électrolytique des EUC

Avant de commencer le traitement, les effluents initialement stockés dans des chaudières d'une capacité de 20 L chacun, ont été mélangés manuellement. Lors des essais, le traitement a été effectué sur des volumes de 2,45 L qui ont été introduits dans le réacteur après dégrillage (à l'aide d'un tamis d'1mm d'ouverture) pour enlever les particules grossières (exemple : troncs d'arbres, reste de végétaux...etc.) afin d'éviter le colmatage du tuyau permettant la recirculation de l'effluent entre le réacteur et le bac de recirculation. Un total de huit électrodes

(4 anodes et 4 cathodes) est utilisé lors de l'application du procédé EC/EP, alors que seulement deux électrodes (une anode de BDD et une cathode de Gr) sont utilisées lors de l'application du procédé EO. Plusieurs intensités ont été imposées (allant de 1 à 5A) pendant différent temps de traitement variant entre 15 et 60 min pour l'électrocoagulation, et allant de 30 à 90 min pour l'électro-oxydation.

Avant d'imposer le courant électrique (1-5A), pendant (5-45min), un échantillon de l'effluent brut a été conservé, après l'avoir filtré, afin de le caractériser. La caractérisation commence par une mesure de la DCO initiale, des MES et de la conductivité. Par la suite un échantillon a été envoyé au laboratoire pour l'analyse des métaux, de la DBO_5 et des coliformes.

Le traitement commence par une intensité 1A un temps de traitement 5min faibles, ensuite l'effluent traité est envoyé à l'analyse des métaux, COT et Azote aux laboratoires de l'INRS, et aussi envoyé pour analyse microbiologique aux laboratoires « EnvironEX », en même temps des analyses de DCO, MES, Turbidité et pH sont réalisées à chaque variation des paramètres opératoires (Intensité de courant, anodes, cathodes, ou temps de traitement). Des échantillons de 10mL ont été prélevés à un intervalle de 5 min afin de faire un suivi de la cinétique de dégradation des polluants.

À la fin du traitement le contenu du réacteur électrolytique est transféré dans un bécher pour y subir la décantation en présence d'un polymère cationique.

Entre deux essais, les électrodes et le réacteur sont successivement nettoyés à l'acide nitrique à 2% et à l'eau savonneuse, puis rincés à l'eau distillée.

3.3.1 Traitement par électrocoagulation seule

Pour le procédé d'électrocoagulation seule, comme précédemment précisé 4 anodes de Fer et 4 cathodes en Inox ont été branchées au générateur permettant ainsi de produire des agents coagulants Fe^{2+}, Fe^{3+} ou Al^{3+} afin d'engendrer la coagulation des matières en suspension et des particules colloïdales présentes dans les effluents à traiter selon les réactions suivantes :

Réaction anodique

Equation 4 $\mathbf{Fe \rightarrow Fe^{2+} + 2\,e^{-}}$

Equation 5 $\mathbf{Al \rightarrow Al^{3+} + 3\,e^-}$

Réaction cathodique

Equation 6 $\mathbf{2\,H_2O + 2\,e^- \rightarrow H_2 + 2\,OH^-}$

La production d'agents coagulants et la consommation des électrodes qui ont un rôle déterminant dans le processus d'électrocoagulation dépend de plusieurs paramètres tels que, la composition de l'effluent, le pH et les ions produits à l'anode. Donc un pesage des électrodes avant et après chaque expérience a été réalisé afin de calculer le cout du traitement. Une décantation accélérée sous l'effet d'un polymère cationique pour une concentration finale de 10mg/l a été réalisée pour une durée de 10 min à la fin de chaque traitement. L'électrocoagulation a été réalisée dans une configuration Mono-polaire durant laquelle les 8 électrodes sont branchées au générateur (4 électrodes de Fer jouant le rôle d'anodes et 4 électrodes d'INOX jouant le rôle de cathode).

3.3.1 Traitement par Électrocoagulation/Électro-peroxydation

Le traitement par EC/EP a été réalisé en utilisant 4 électrodes de Fer comme anodes et 4 électrodes de Gr comme cathodes dans la même cellule de l'EC et le même mode opératoire (figure 4). Les électrodes de Fe ont été utilisées à l'anode alors que les électrodes de Gr ont été utilisées à la cathode. Une génération d'agents coagulants $Fe^{2+,}$ Fe^{3+} au niveau de l'anode et des agents oxydants au niveau de la cathode H_2O_2, permettant ainsi une bonne coagulation en utilisant le Fe, et à la fois une désinfection grâce à l'utilisation du Gr produisant le H_2O_2 généré à la surface de l'anode par oxydation de la molécule d'eau en oxygène (Equation 7), ensuite à la cathode l'oxygène est réduit afin de donner du H_2O_2 (Equation 8). Les ions Fe réagissent avec le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 produit à la cathode pour produire un agent oxydant fort OH° selon la réaction Fenton (Equation 9).

Equation 7 $2H_2O \rightarrow O_2 + 4H^+ + 4e^-$

Equation 8 $O_2 + 2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2O_2$

Equation 9 $Fe^{2+} + H_2O_2 \rightarrow Fe^{3+} + OH^- + \bullet OH$

Après le traitement par EC/EP, 2 L de l'échantillon traité sont prélevés. Un polymère cationique (facultatif ; car la décantation peut être réalisée naturellement), 10mg/L est ajouté à l'échantillon avec un temps de décantation de 10 min, permettant de former des flocs plus denses et stables facilitant ainsi la décantation qui est l'étape d'élimination des polluants des eaux usées.

3.3.2 Traitement par EC/EP suivie d'EO

Après le traitement par EC/EP, un échantillon de 1L l'échantillon est prélevé pour un traitement additionnel par EO.

Le traitement par EO est réalisé à l'aide d'une anode de BDD et 1 cathode de Gr connectés au générateur. L'application de plusieurs intensités avec différents temps de traitements ont permis d'identifier les meilleures conditions opératoires. L'application d'EO visait l'utilisation du BDD qui est une électrode à forte capacité d'oxydation, et pouvoir éliminer le reste des polluants. Car le traitement par EC/EP n'a pas permis de respecter les normes de rejet dans l'environnement pour le premier effluent qui est était trop chargé (DCO≈3000 mg-O_2/l, MES≈22,5 mg/L).

3.4 Méthodes analytiques

3.4.1 Mesures des paramètres opératoires (pH, Conductivité, Turbidité…)

Pour chaque expérience, le pH de la solution est mesuré avant et après traitement à l'aide d'un pH-mètre de type Fisher Scientific Accumet (modèle XL25) préalablement calibré avec des solutions étalons de pH 4,0, pH 7,0 et pH 10,0 et équipé d'une électrode Cole-Palmer à double jonction (référence Ag/AgCl). Le conductimètre (OAKTON, Modèle 510) est calibré avant toute utilisation et permet de déterminer la conductivité initiale et finale de l'effluent des EUC. Les mesures de turbidité ont été aussi déterminées à l'aide d'un turbidimètre de type HACH 2100 AN.

3.4.2 Mesure des polluants organiques, inorganiques et microbiens

Pour déterminer la DCO, les échantillons ont été prélevé, puis acidifiés à 0,2% afin d'être conservé à la chambre froide dans une température de 4°C. Différentes mesures de DCO ont été réalisé à l'aide spectromètre de type UV 0811 M136 (Marque Varian). La méthode standard qui a été suivie pour la mesure de la DCO a été tirée du guide du centre d'expertise en analyse environnementale de Québec.

Les analyses des métaux présents dans l'EUC et du Phosphore dissous ont été effectuées en triplicata à l'aide d'un appareil ICP-AES (marque Varian, modèle Vista AX). Avant l'envoi pour analyse les échantillons ont été acidifié avec l'acide nitrique 0,2% et conservé à 4°C jusqu'au moment de l'analyse.

Les analyses de DBO_5 ont été réalisées par les laboratoires AGAT, et celle des coliformes totaux et fécaux ont été faite par les laboratoires du groupe Environex.

3.4.3 MES et ST

Le protocole expérimental utilisé afin de déterminer les MES et les ST présents dans l'échantillon est inspiré du centre d'expertise en analyse environnementale du Québec (Référence M A. 115-S.S.1.1e t MA. 100-S.T.1.0). Les analyses de MES et ST ont été effectuées sur la fraction liquide de l'échantillon qui a subi une décantation de 15 min à l'aide d'un polymère cationique

4. RÉSULTATS ET DISCUSSION

La section résultats et discussion est subdivisée en trois volets. Le premier volet traite des essais pour caractérisation de la cellule électrolytique, le deuxième traite la caractérisation des eaux usées de camping, alors que le dernier présente les différents résultats de traitement électrolytique et de son optimisation.

4.1 Caractéristiques initiales de l'effluent

Les eaux usées de camping contiennent des composés organiques, inorganiques et bactériens de nature différente. Les caractéristiques physico-chimiques de l'effluent pouvaient varier selon l'échantillon prélevé. Les caractéristiques de ces eaux sont citées dans le Tableau 4.

Tableau 4 Comparaison des caractéristiques initiales des deux effluents avec les normes de rejet correspondantes

Paramètre	Effluent 1	Effluent 2	Normes de rejet
pH	6,69 ± 0,17	6,53 ± 0,09	-
Conductivité (mS/cm)	965	220	-
Turbidité (NTU)	1360 ± 70	342 ± 15	-
DCO (mg/l)	3019 ± 179	1135 ± 97	-
COT (mg/l)	63 ± 5	43 ± 3	-
DBO_5 (mg/l)	4260	1690	15
Coliformes totaux (CFU/100 ml)	5900000		200
MES (mg/l)	62 ± 9	74 ± 11	15
Couleur Vraie (UCV)	15,2 ± 0,6	10,8 ± 0,14	-
NH_4 (mg-N/l)	101 ± 14	93 ± 21	-
Phosphore total (mg/l)	22,5 ± 2,3	17,4 ± 3,4	1
Azote total (mg-N/l)	347 ± 29	173 ± 17	-

Les concentrations en DCO_t étaient d'environ 3000 mg O_2/l. La DBO_5 était de 2400mg O_2/L. Le ratio DBO_5/DCO démontrait que l'effluent est biodégradable. Les valeurs de MES et de la turbidité indiquent la nécessité d'un traitement permettant de clarifier ces effluents. La présence du Phosphore indique la nécessité d'appliquer un traitement d'électrocoagulation (EC) et la forte charge en coliformes appuie la nécessité d'appliquer un traitement permettant de générer suffisamment des oxydants in situ afin de réduire la teneur de ces effluents en coliformes (Meunier *et al.*, 2004; Robertson & tiedje, 1987).

4.2 Caractérisation de la cellule en termes de production de peroxyde d'hydrogène et oxydants totaux

Il a été démontré que le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 est un oxydant fort disposant d'un potentiel Redox de 1,77 V (Vepsäläinen, 2012). Pourtant celui-ci n'est pas assez efficace en étant utilisé seul mais il peut être utilisé simultanément avec le chlore ou le brome dans l'objectif d'améliorer les performances de la désinfection tout en diminuant les sous-produits de désinfection (Bender & Breidenbach, 1963). D'autres études ont prouvé le danger que constitue cette molécule sur les cellules de l'Homme et peuvent être la cause de mal formations congénitales chez l'Homme (Guittonneau *et al.*, 1988). Les résultats relatifs à la production du H_2O_2 en fonction de temps de traitement et de l'intensité sont présentés dans la figure 9. L'intensité de courant appliqué et le temps de traitement sont deux paramètres clés dans la génération d'oxydants totaux. La quantité de peroxyde générée augmente avec l'intensité de courant appliquée.

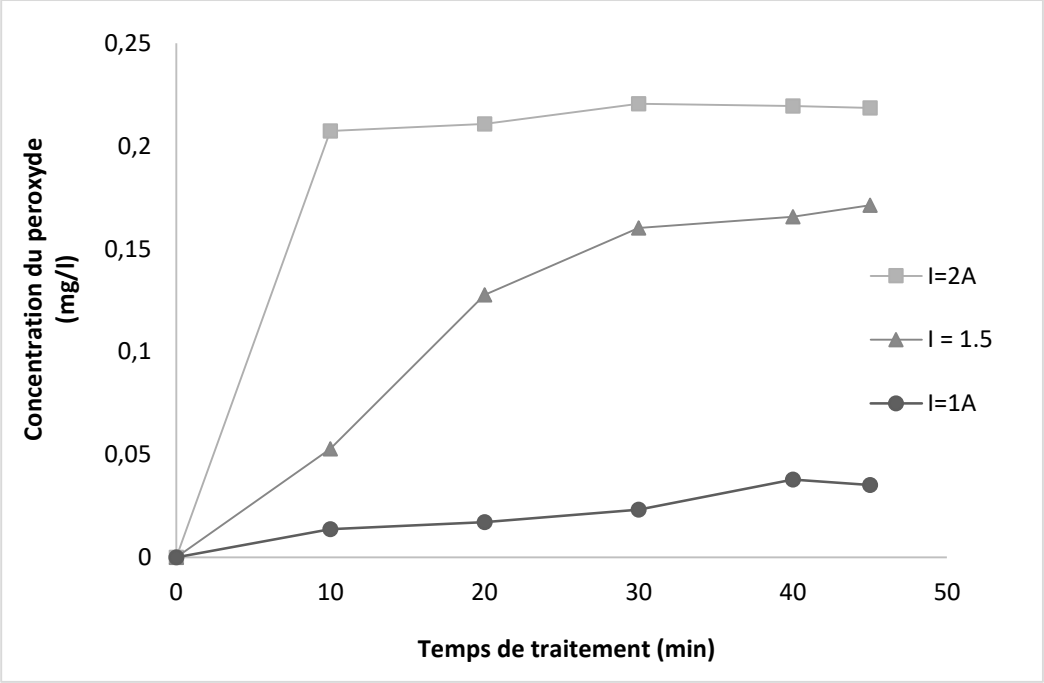

Figure 9 Production de peroxyde d'Hydrogène en fonction de l'intensité et du temps de traitement utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphite

La production du H_2O_2 augmente durant les premiers 40 minutes puis se stabilise. Selon (Daghrir, 2010a) cela est probablement lié à une limitation du transfert d'oxygène. Après le remplacement de l'électrode de Gr en Inox la production du peroxyde d'hydrogène devient minime. La production de H_2O_2 sur l'électrode d'inox est relativement faible à cause du fait que la réduction de l'oxygène dissous s'effectue en une seule étape (réduction de l'oxygène directement en H_2O). Par comparaison, sur une cathode de graphite, la réduction de l'oxygène peut s'effectuer en deux étapes successives, avec comme étape intermédiaire la formation de H_2O_2(Guitaya et al., 2015).

La production in-situ du H_2O_2, est obtenue suite à la réduction de l'oxygène au niveau de la cathode, la dissolution anodique de l'électrode de fer mène à la production des ions Fe^{2+} qui réagissent immédiatement avec les ions Hydroxydes (OH^-) permettent de produire un agent coagulant $Fe(OH)_3$. Dans ce milieu, les ions ferreux permettent de décomposer le peroxyde d'hydrogène par le réactif de Fenton (Drogui *et al.*, 2001). Cette réaction permet de générer les

radicaux hydroxyles qui sont des oxydant non sélectifs très puissant permettant ainsi une dégradation rapide et efficace des polluants organiques présents dans l'effluent. La courbe démontre au début une augmentation linéaire de la quantité de H_2O_2 dans les 20 premières minutes et par la suite devient sous la forme d'un palier de valeurs de plus en plus stables. Ces résultats confirment les travaux de (Drogui *et al.*, 2001) qui démontrent que le taux de la production du peroxyde d'hydrogène à la cathode est proportionnel à I 'intensité du courant appliquée et à la durée du traitement).

4.3 Traitement électrolytique de l'effluent 1 par EC/EP

4.3.1 Effet du temps

Le temps est un paramètre essentiel qui doit être pris en considération durant un procédé électrolytique, car plus on avance dans le temps plus on produit une quantité plus importante de coagulants et d'agents oxydants. Dans le cas d'une EC/EP, la production des sels de Fer au niveau de l'anode et du peroxyde au niveau de la cathode devient de plus en plus importante en avançant dans le temps de traitement. Afin d'évaluer l'influence du temps de traitement sur ce dernier. Le suivi de la cinétique de l'abattement de plusieurs paramètres (DCO, Turbidité, Phosphore) a été suivi pendant différents temps de traitements;

4.3.1.1 Abattement de la DCO

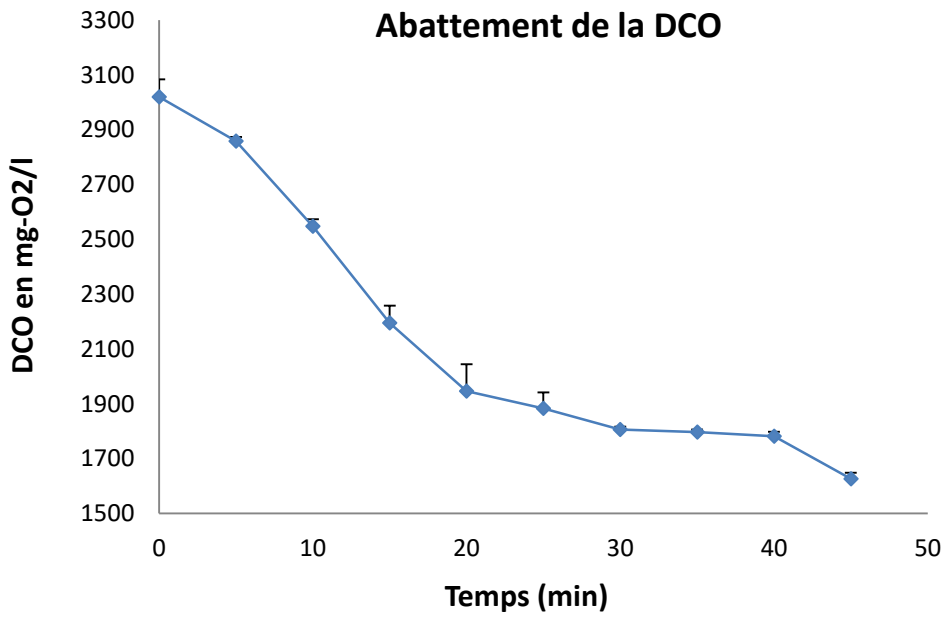

Figure 10 : Abattement de la DCO en fonction de temps de traitement (DCO_i = 3019,5) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites (3A, 45min)

La cinétique d'abattement de la DCO démontre que le taux de dégradation de la DCO augmente avec le temps. Ceci est prouvé par l'augmentation de la production des agents coagulants et oxydants tout en avançant dans le temps d'électrolyse.

4.3.1.2 Abattement de MES

La figure permet de constater l'abattement de la matière en suspension, à partir de 5 premières minutes puis baisse après 40 minutes de traitement.

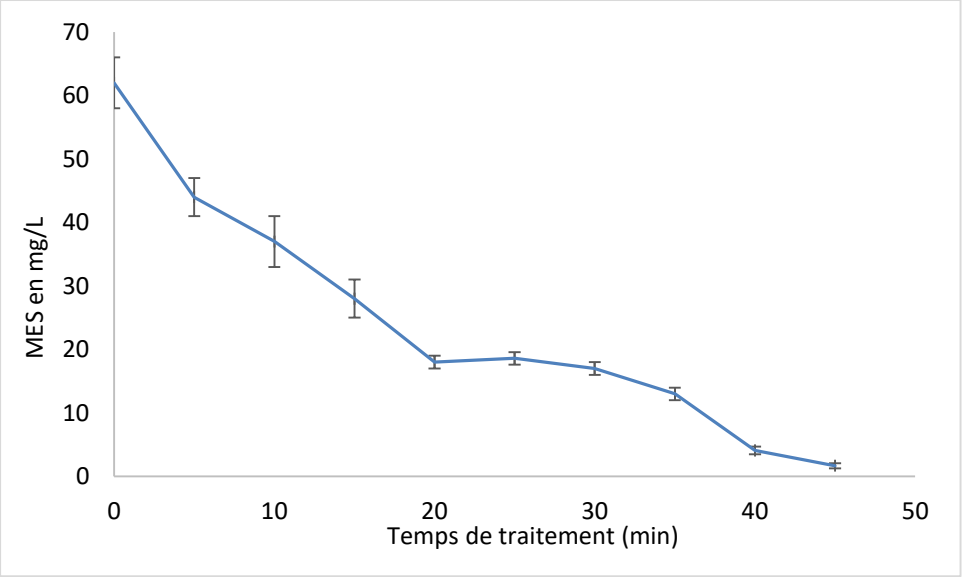

Figure 11 : Abattement de MES en fonction de temps de traitement (MES_i=62mg/L) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites (3A, 45min)

L'abattement de MES peut être expliquée par la dissolution de l'électrode de Fer permettant de générer un agent coagulant Fe^{2+} et Fe^{3+}. Ces ions (Fe^{2+}/Fe^{3+}) en réagissant avec les ions hydroxydes (OH^-) produisent des hydroxydes $Fe(OH)_3$ de fer (Drogui et al., 2007) capables d'enlever les matières en suspension et les fines particules colloïdales.

4.3.1.3 Abattement du phosphore

Il est important de souligner que les effluents en provenance de fosses septiques desservant le camping comportent des quantités non-négligeables de Phosphore d'où la nécessité du suivi de ce polluant. Généralement la norme de rejet des eaux usées dans les égouts en termes de Phosphore est autour de 1mg/L. Le suivi de la dégradation de ce polluant et le temps nécessaire à cette dégradation ont été réalisé dans les conditions suivantes : 4 anodes de Fer, 4 cathodes de Graphite en branchement mono-polaire.

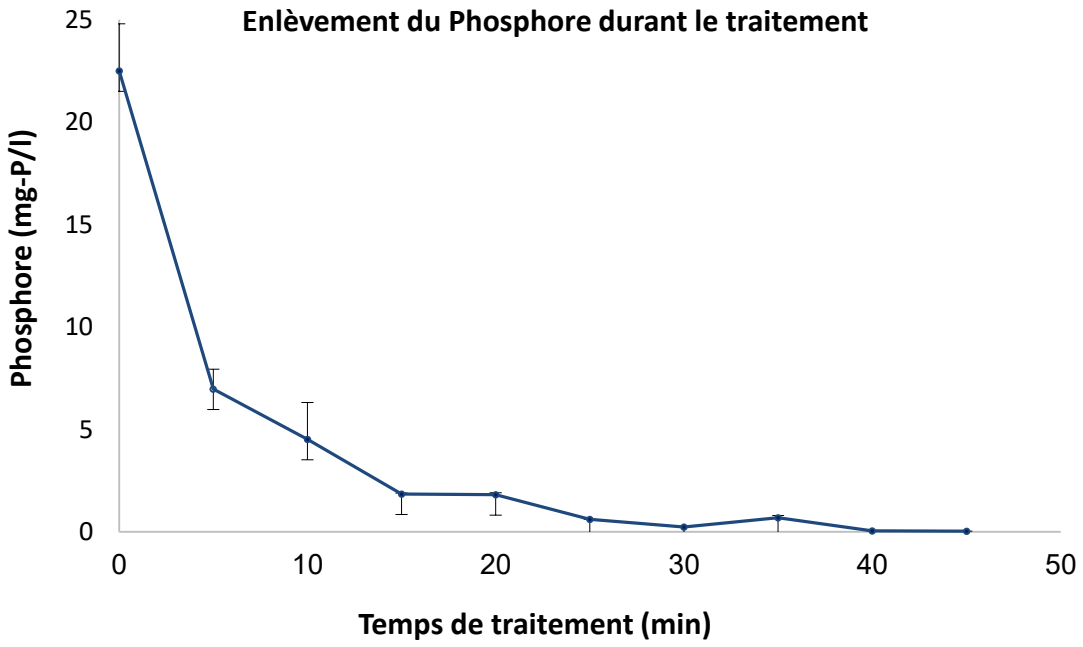

Figure 12 : Abattement du Phosphore utilisant les conditions optimales (Pi=22,5 mg-P/L3A, 45min, 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphite)

Le graphe démontre la baisse significative de la quantité de Phosphore à partir des 15 premières minutes. Par la suite la totalité d'élimination d Phosphore atteint 100% après les 30 premières minutes de traitement. Le P est éliminé par des phénomènes de précipitation, de co-précipitation et d'adsorption sur les hydroxydes de fer sous forme de boues (Meunier *et al.*, 2004; Tran *et al.*, 2012). Au cours du traitement la concentration du P diminue alors que la quantité de boue produite augmente en fonction du temps résultant en une diminution de l'efficacité d'enlèvement du phosphore (Tran et al., 2012). Selon Lacasa *et al.* (2011), l'enlèvement du P au cours de l'EC dépend également de la solubilité des espèces de fer, des types de phosphore, et du potentiel zêta.

4.3.2 Effet du traitement sur l'abattement des polluants bactériens

Le traitement par EC/EP permet de bénéficier à la fois de la dissolution du Fe utilisé à l'anode pour produire des coagulant $Fe(OH)_2$ et $Fe(OH)_3$, et le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 afin de générer OH°, Un oxydant fort permettant une bonne désinfection de l'effluent à traiter, à travers la réaction Fenton. Le tableau N°5 résume les résultats de désinfection.

Des tests à différentes intensités ont été réalisés, cette variation a permis de choisir l'intensité donnant la meilleure efficacité de traitement par EC/EP utilisant les meilleures conditions opératoires ; 3 A pendant 45 min en utilisant 4 anodes en Fe et 4 cathodes en Gr. Comme le montre le tableau N°5, le résultat est un abattement total des coliformes et de E.coli.

Tableau 5 Resultats de désinfection pour l'échantillon N°1

	EUC non traitées	**EUC après traitement**
Unité	UCF/100ml	UCF/100ml
Coliformes totaux	5.900.000	N.D
Coliformes fécaux	9100	N.D
E.Coli	9100	N.D

Les concentrations initiales et finales en (UFC/100 ml) de coliformes totaux fécaux mesurées dans l'effluent avant et après traitement sont présentées au tableau 5. L'application du procédé permet une élimination des coliformes. Ainsi des concentrations se situant entre 5900000 et 9100UFCml ont été mesurées dans les eaux non-traitées, alors que les mesures effectuées sur les eaux traitées (à la sortie du décanteur indiquaient des concentrations Non détectable, soit une réduction d'environ 100% de coliformes totaux, fécaux et d'E-coli.

Cet abattement enregistré après électrolyse est dû à une neutralisation des charges bactériennes et à une co-précipitation suite à la production des hydroxydes métalliques. Aussi, le peroxyde d'hydrogène (agent bactéricide) contribue également à l'éradication bactérienne.

Le traitement par EC/EP a permis de désinfecter l'effluent sous l'effet des OH° qui ont dégradé les coliformes contenues dans l'eau et l'ensemble des polluants que l'EC n'est pas capable de dégrader.

Tableau 6 Abattement de la DBO_5 pour échantillon N°1

	EUC non traitées	**EUC après traitement**
Unité	mg/l-O_2	mg/l-O_2
DBO_5	4260	1140

La DBO_5 représente la quantité d'oxygène consommée par des microorganismes lors de l'oxydation biochimique des matières organiques biodégradables. La mesure de la DBO5 avant et après traitement a présenté un taux d'élimination de 73,24% en utilisant les paramètres optimaux pour traitement par EC/EP en montage mono-polaire à une intensité de 3A pendant 45min.

4.4 Traitement électrolytique de l'effluent 2 par EC/EP

4.4.1 Effet intensité

Afin de mettre en évidence l'effet de l'intensité de courant sur le traitement électrolytique une gamme de 1 à 3 A a été testé sur l'effluent à traiter afin d'identifier l'intensité qui donne le meilleur résultat. Un test a été réalisé en fixant la DCO comme paramètre et un autre sur les MES.

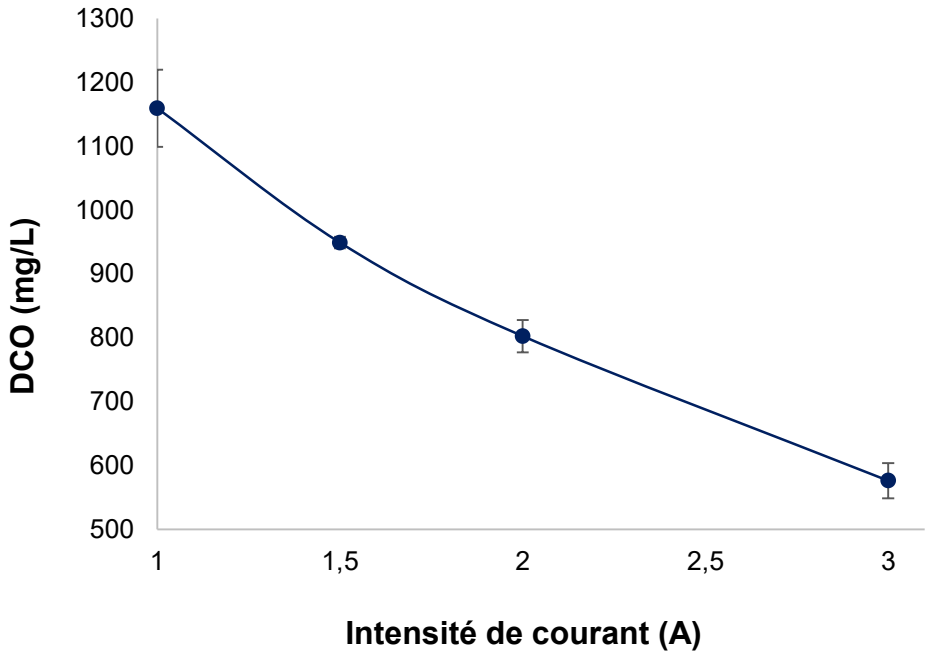

Figure 13 : Abattement de DCO en fonction de différentes intensités de traitement dans les conditions optimales (3A, 45 min) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites

La courbe permet de conclure que la DCO contenue dans l'effluent diminue en augmentant l'intensité de courant. Il a été observé par (Jeong *et al.*, 2009) que la quantité de coagulants et oxydants produits dépendent de l'intensité du courant appliqué et le temps de l'électrolyse. Une intensité de 3A a été retenue pour le traitement des EUC.

En revanche le choix de l'intensité optimale doit tenir compte non seulement de l'efficacité d'élimination de la matière organique, mais aussi du coût de l'énergie consommée et de la quantité de MES présentes dans I 'effluent traité.

D'autre part, la consommation anodique d'une électrode consommable tel que le fer augmente avec l'intensité de courant imposée. Une inefficacité de l'agrégation des particules solides est observée lors que l'intensité diminue. Une baisse de l'intensité de courant induit une diminution de la quantité de coagulant généré par voie électrochimique nécessaire à la déstabilisation des particules colloïdales et de la matière en suspension.

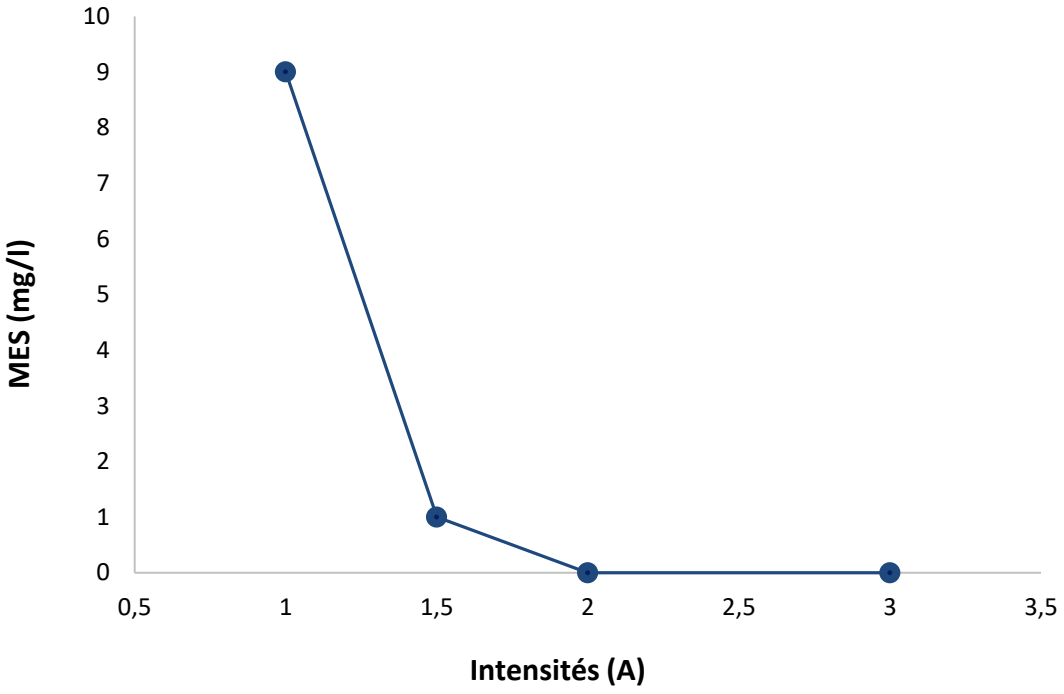

Figure 14 : Abattement de MES en fonction de différents intensités dans les conditions optimales (3A, 45min) utilisant 4 anodes de fer et 4 cathodes de graphites

Ce graphe démontre une élimination complète de MES à partir d'une intensité 2 A. Un temps de traitement de 45 min a été fixé tout en utilisant des anodes Fer et des cathodes de Gr en branchement mono-polaire. Ce qui est expliqué par l'effet directe de l'intensité de courant sur la production d'hydroxydes de Fer capables de d'éliminer la matière en suspension.

4.4.2 Effet temps

En raison d'évaluer l'effet du temps de traitement sur l'efficacité de ce dernier, des essais ont été réalisés en utilisant l'intensité qui a donné les meilleurs résultats d'enlèvement de la DCO et MES qui est de 3 A. Le suivi de la cinétique de dégradation des polluants indiquait que l'augmentation du temps de traitement résultait en une augmentation de l'efficacité de traitement (Ex : Figures 10, 11 et 12).

4.4.3 Effet du traitement par EC/EP sur l'abattement des polluants bactériens

Le traitement par EC/EP permet de bénéficier à la fois de la dissolution du Fe utilisé à l'anode pour produire des coagulant $Fe(OH)_2$ et $Fe(OH)_3$, et le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 afin de générer OH°, Un oxydant fort permettant une bonne désinfection de l'effluent à traiter, à travers la réaction Fenton. Le tableau N°7 résume les résultats de désinfection par EC/EP pour l'échantillon 2.

Des tests à différentes intensités ont été réalisés, cette multitudes de test a permis de choisir l'intensité qui donne les meilleurs taux d'abattement utilisant le minimum d'énergie, 3A pendant 45 min en employant 4 anodes en Fe et 4 cathodes en Gr a été choisi comme optimale. Comme le montre le tableau N°5, le résultat est un abattement total des coliformes et de E.coli.

Tableau 7 : Résultats de désinfection pour l'échantillon N°2 utilisant EC/EP

	EUC non traitées	**EUC après traitement**
Unité	UCF/100ml	UCF/100ml
Coliformes totaux	12 700 000	N.D
Coliformes fécaux	-	N.D
E.Coli	1 883 000	N.D

Tableau 8 : Concentration résiduelle de la DBO_5 pour l'échantillon 2

	Eaux usées de camping non traitées	Eaux usée de camping après traitement
Unité	mg/l-O_2	mg/l-O_2
DBO_5	1690	129,6

4.5 Étude comparative des différents procédés électrolytiques (Effluent 2)

4.5.1 Étude comparative EC/EP et EC seule : Enlèvement de la DCO

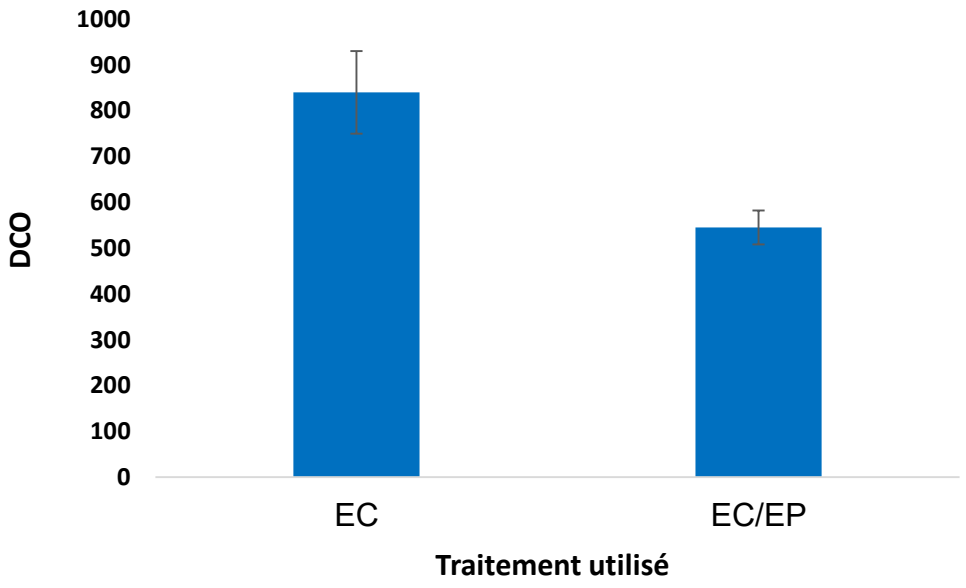

Figure 15 **Taux d'abattement de DCO utilisant EC seule comparée à EC/EP dans les meilleures conditions de traitement : 3A, 45 min en mode bipolaire; DCO initiale = 1135 ± 97**

Le traitement par EC seule a été réalisé dans le même dispositif opératoire que l'EC/EP, la différence réside dans l'utilisation de l'INOX au lieu du Gr. Les mêmes paramètres opératoires

ont été utilisés pour pouvoir comparer l'efficacité des deux traitements. Une intensité de 3 A pendant 45 min et 8 électrodes connectées en mode bipolaire.

Les paramètres expérimentaux qui ont donné les meilleurs résultats ; 3 A pendant 45 min en utilisant un réacteur de capacité 2,45 L. Le graphe démontre l'efficacité du traitement par EC/EP en terme de dégradation de la DCO sur le même effluent initialement chargé de 1437 mg-O2/l. Cette efficacité est expliquée du fait que le traitement EC/EP utilise à la fois du procédé d'électrocoagulation (libération des hydroxydes de fer) et du procédé d'électro-peroxydation (formation de H_2O_2 à la cathode). La réaction entre les ions ferreux et le peroxyde d'hydrogène induit la réaction de Fenton qui conduit à la formation de OH°, un oxydant fort non sélectif qui permet de dégrader la majorité des polluants dans l'eau.

4.5.2 Comparaison des procédés EC/EP et EC seul lors de l'élimination du TOC

La figure 16 démontre les résultats de l'abattement du COT en fonction du type de traitement appliqué. Trois types de traitements ont été respectivement appliqués : i) Traitement par EC seule; ii) Traitement par EC/EP; iii) Traitement par EC/EP suivi de EO. Une intensité de 3A a été respectivement appliquée pour le traitement par EC et EC/EP pendant 45min, alors qu'une intensité de 5A a été appliquée pendant le traitement oxydatif par EO pour 90 min.

Suite au traitement électrolytique une concentration résiduelle de 45 mg/l a été enregistrée pour EC seule comparativement à une valeur initiale de TOC de 63mg/l mesurée dans l'effluent brut, alors que des concentrations résiduelles de 30 mg/l et 17 mg/l ont été respectivement enregistrées pour EC/EP et pour EC/EP + EO. La combinaison EC/EP + EO est plus efficace pour la minéralisation de la matière organique. Le procédé EC/EP + EO conduit à une minéralisation plus poussée de la MO (73% d'enlèvement du TOC) comparativement aux procédés EC/EP et EC seule. Cela est probablement dû à la forte production des radicaux libres dans le cas de la combinaison des procédés EC/EP + EO.

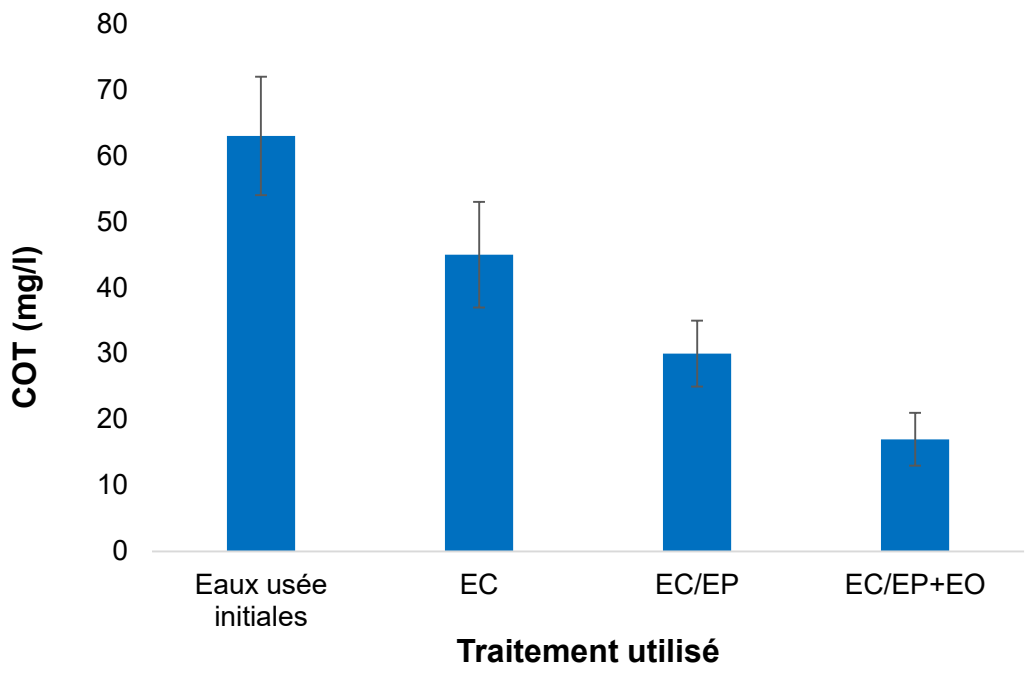

Figure 16 **Taux d'abattement du COT lors du traitement des eaux de camping en utilisant les procédés EC seule (3A, 45min), EC/EP (3A, 45min) et EC/EP+EO (en rajoutant 90min à 5 A pour le procédé EO) pour l'échantillon 2**

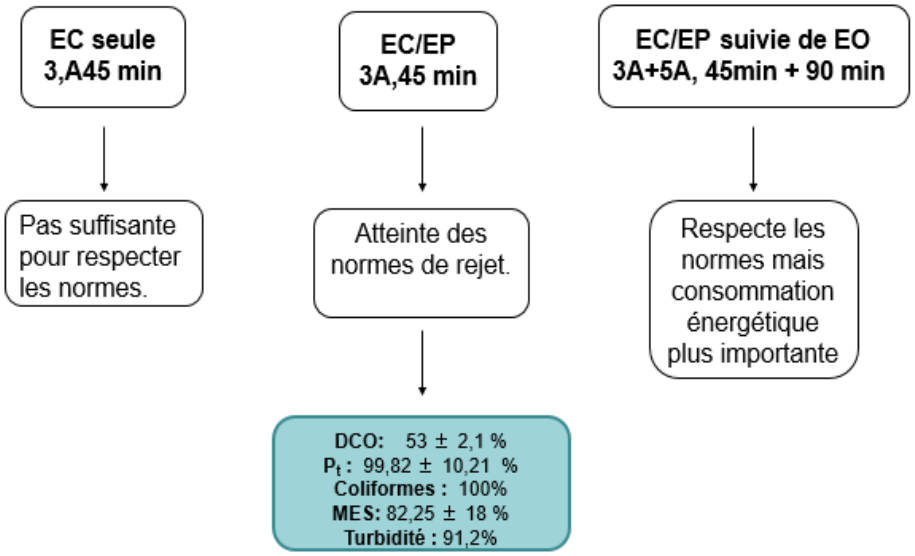

Figure 17 **Bilan comparatif des trois traitements effectués dans les meilleures conditions**

L'illustration ci-dessus, permet de comparer l'efficacité de chaque type de traitement. L'utilisation de l'EC seule (3A, 45min) ne permet pas de respecter les normes de rejet dans l'environnement (DBO_5 : PT : 15 mg/L, MES : 15 mg/L, Coliformes : 200 UFC 100mL). En ce qui concerne l'EC/EP suivie de EO les résultats permettaient de respecter les normes mais les couts de traitement étaient supérieurs à ceux de l'EC/EP vu le temps d'électrolyse de 90 min utilisant 5A en plus de l'application l'EC/EP.

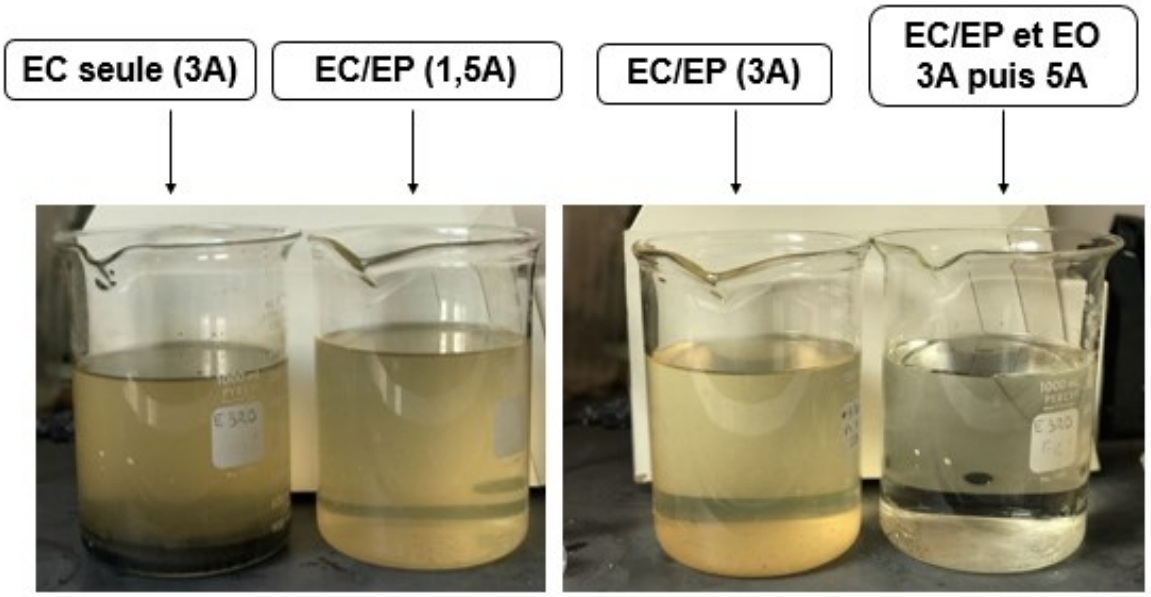

Figure 18 Comparaison visuelle de la qualité d'eau après chaque traitement dans les conditions optimales

5. CONCLUSION

Cette étude avait pour objectif de mettre au point une filière de traitement électrolytique des eaux de camping et ce, en testant l'efficacité de trois procédés élaborés (EC seul, EC/EP et EC/EP suivie de EO). Les meilleures performances en termes de coût/efficacité ont été enregistrées à l'aide du procédé hybride EC/EP permettant de produire simultanément (dans un même réacteur) un agent coagulant (Fe^{2+}/Fe^{3+}) et un agent oxydant (H_2O_2).

Les paramètres optimaux du traitement électrochimique par EC/EP sont : l'utilisation des anodes de Fer et des cathodes en Gr en configuration mono-polaire, une intensité de 3A et un temps d'électrolyse de 45min. Cependant, une étape de décantation a été nécessaire après le traitement en ajoutant un polymère cationique à raison de 10ml/l. L'utilisation de ces conditions a permis d'atteindre un taux d'abattement de la DCO de 53,2 ± 2,1 % avec un taux d'abattement de Pt de 99,82 ± 10,92% et un taux d'abattement de MES de 82,25 ± 18%. En outre, un taux d'élimination de coliformes totaux de 100% a été également enregistré. Des rendements d'enlèvement de la turbidité allant jusqu'à 91,2% ont été obtenus.

Le cout énergétique relié au procédé hybride par EC/EP pour traitement des eaux usées de camping était d'environ 0,194$/m^3, alors que celui d'EC/EP + EO est estimé de 6.089$/m3 (incluant uniquement les coûts relatifs de consommation d'énergie pour le fonctionnement de la cellule électrolytique).

En bref ce projet constitue une mise au point du traitement électrolytique hybride par EC/EP pour le traitement des eaux usées en provenance des fosses septiques de camping à la fois contaminées par des polluants organiques, inorganiques et bactériens.

6. RECOMMANDATIONS

Cette étude a permis de démontrer l'efficacité du traitement hybride par EC/EP des eaux usées de camping et de le comparer avec les procédés EC seule et EC/EP suivi d'EO. Cependant, un travail expérimental doit être poursuivi afin d'améliorer les conditions de traitement et étudier davantage la composition des eaux usées traitées.

- Des essais supplémentaires utilisant un montage bipolaire doivent être réalisés.
- Un traitement en mode continu peut être appliqué en vue de tester l'application du procédé à l'échelle préindustrielle.
- Tester l'effet de plusieurs cathodes sur la production du peroxyde d'hydrogène.
- L'utilisation de différentes électrodes afin de pouvoir comparer l'efficacité de chaque matériau sur la production des agents coagulants et oxydants.
- Une étude de la composition des boues métalliques, de leur toxicité et une caractérisation complète des résidus obtenus à la fin du traitement.

7. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Aiyuk S, Amoako J, Raskin L, Van Haandel A & Verstraete W (2004) Removal of carbon and nutrients from domestic wastewater using a low investment, integrated treatment concept. *Water Research* 38(13):3031-3042.

Ando Y & Tanaka T (2004) Proposal for a new system for simultaneous production of hydrogen and hydrogen peroxide by water electrolysis. *International Journal of Hydrogen Energy* 29(13):1349-1354.

Asselin M (2007) *Utilisation de l'électrocoagulation dans le traitement des eaux usées industrielles chargées en matière organique*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique).

Bender D & Breidenbach A (1963) Modification of the Phenolphthalin Method for the Determination of Total Oxidants. *Analytical Chemistry* 35(3):417-418.

Blšťáková A, Bodík I, Dančová L & Jakubčová Z (2009) Domestic wastewater treatment with membrane filtration—two years experience. *Desalination* 240(1-3):160-169.

Cenkin V & Belevtsev A (1985) Electrochemical treatment of industrial wastewater. *Effluent and water treatment journal. Rick Mansworth* 25(7):243-249.

Chen X, Chen G & Yue PL (2000) Separation of pollutants from restaurant wastewater by electrocoagulation. *Separation and purification technology* 19(1-2):65-76.

Crini G & Badot P-M (2007) *Traitement et épuration des eaux industrielles polluées: procédés membranaires, bioadsorption et oxydation chimique.* Presses Univ. Franche-Comté,

Crites R & Technobanoglous G (1998) *Small and decentralized wastewater management systems.* McGraw-Hill,

Daghrir R (2010a) *Développement d'un procédé hybride d'oxydation électrolytique et d'éléctrocoagulation pour le traitement des eaux usées non connectées à des infrastructures communautaires*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique).

Daghrir R (2010b) *Développement d'un procédé hybride d'oxydation électrolytique et d'éléctrocoagulation pour le traitement des eaux usées non connectées à des infrastructures communautaires.* Université du Québec, Institut

national de la recherche scientifique, Québec. xxii, 188 pages p. Accès au document http://espace.inrs.ca/id/eprint/2108

Daneshvar N, Oladegaragoze A & Djafarzadeh N (2006) Decolorization of basic dye solutions by electrocoagulation: an investigation of the effect of operational parameters. *Journal of hazardous materials* 129(1-3):116-122.

Desjardins R (1990) Le traitement des eaux, 2eme édit. *Editions de l'école polytechnique de Montoreal* :133-198.

Développement durable Eelclcc, Quebec (2015) TRAITEMENT DES EAUX USÉES DES RÉSIDENCES ISOLÉES. *Guide technique* :224.

Ditzig J, Liu H & Logan BE (2007) Production of hydrogen from domestic wastewater using a bioelectrochemically assisted microbial reactor (BEAMR). *International Journal of Hydrogen Energy* 32(13):2296-2304.

Drogui P, Elmaleh S, Rumeau M, Bernard C & Rambaud A (2001) Oxidising and disinfecting by hydrogen peroxide produced in a two-electrode cell. *Water Research* 35(13):3235-3241.

du Quebec G (2015) Règlement sur l'évacuation et le traitement des eaux usées des résidences isolées. *Québec, Canada* 80.

El-Bestawy E, Hussein H, Baghdadi HH & El-Saka MF (2005) Comparison between biological and chemical treatment of wastewater containing nitrogen and phosphorus. *Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology* 32(5):195-203.

Eriksson E, Auffarth K, Henze M & Ledin A (2002) Characteristics of grey wastewater. *Urban water* 4(1):85-104.

Friedler E & Gilboa Y (2010) Performance of UV disinfection and the microbial quality of greywater effluent along a reuse system for toilet flushing. *Science of the total environment* 408(9):2109-2117.

Gandini D, Comninellis C, Tahar NB & Savall A (1998) Électrodépollution: traitement électrochimique des eaux résiduaires chargées en matières organiques toxiques. *Actualité Chimique* 10:68-73.

Guitaya L, Drogui P & Blais JF (2015) In situ reactive oxygen species production for tertiary wastewater treatment. *Environmental Science and Pollution Research* 22(9):7025-7036.

Guittonneau S, De Laat J, Dore M, Duguet J & Honnel C (1988) Etude de la dégradation de quelques composés organochlorés volatils par photolyse du peroxyde d'hydrogène en milieux aqueux. *Revue des sciences de l'eau/Journal of Water Science* 1(1-2):35-54.

Henze M, Harremoes P, la Cour Jansen J & Arvin E (2001) *Wastewater treatment: biological and chemical processes.* Springer Science & Business Media,

Holt PK, Barton GW & Mitchell CA (2005) The future for electrocoagulation as a localised water treatment technology. *Chemosphere* 59(3):355-367.

Jardak K, Dirany A, Drogui P & El Khakani MA (2016) Electrochemical degradation of ethylene glycol in antifreeze liquids using boron doped diamond anode. *Separation and Purification Technology* 168:215-222.

Jeong J, Kim C & Yoon J (2009) The effect of electrode material on the generation of oxidants and microbial inactivation in the electrochemical disinfection processes. *Water research* 43(4):895-901.

Jiang C-c & Zhang J-f (2007) Progress and prospect in electro-Fenton process for wastewater treatment. *Journal of Zhejiang University-SCIENCE A* 8(7):1118-1125.

Kobya M, Can OT & Bayramoglu M (2003) Treatment of textile wastewaters by electrocoagulation using iron and aluminum electrodes. *Journal of hazardous materials* 100(1-3):163-178.

KORNIENKO G, CHAENKO N & KORNIENKO V (2006) Indirect Electrochemical Oxidation of Phenol by Hydrogen Peroxide in situ Generated from Oxygen in a Gas Diffusion Electrode in Acid and Neutral Media. *Chemistry for Sus tainable Development* 4:19-22.

Lacasa E, Canizares P, Saez C, Fernández FJ & Rodrigo MA (2011) Electrochemical phosphates removal using iron and aluminium electrodes. *Chemical Engineering Journal* 172(1):137-143.

Massé D & Masse L (2000) Characterization of wastewater from hog slaughterhouses in Eastern Canada and evaluation of their in-plant wastewater treatment systems. *Canadian Agricultural Engineering* 42(3):139-146.

Matamoros V, Arias C, Brix H & Bayona JM (2009) Preliminary screening of small-scale domestic wastewater treatment systems for removal of pharmaceutical and personal care products. *Water Research* 43(1):55-62.

Matassa M, McEntyre C & Watson JT (2005) Tennessee valley marina and campground wastewater characterization screening study. *Proceedings of the Water Environment Federation* 2005(12):3685-3712.

Meiqiang LYZYL (2003) The treatment of dyeing wastewater by the electrocoagulation-biological activated carbon filtering reactor process [J]. *Techniques and Equipment for Environmental Pollution Control* 2:007.

Meunier N, Drogui P, Gourvenec C, Mercier G, Hausler R & Blais JF (2004) Removal of metals in leachate from sewage sludge using electrochemical technology. *Environmental technology* 25(2):235-245.

Mollah MY, Morkovsky P, Gomes JA, Kesmez M, Parga J & Cocke DL (2004) Fundamentals, present and future perspectives of electrocoagulation. *Journal of hazardous materials* 114(1-3):199-210.

Mollah MYA, Schennach R, Parga JR & Cocke DL (2001) Electrocoagulation (EC)—science and applications. *Journal of hazardous materials* 84(1):29-41.

Mortula M (2006) Phosphorus removal from small-scale wastewater applications using alum sludge.

Panizza M & Cerisola G (2001) Removal of organic pollutants from industrial wastewater by electrogenerated Fenton's reagent. *Water Research* 35(16):3987-3992.

Pignatello JJ, Oliveros E & MacKay A (2006) Advanced Oxidation Processes for Organic Contaminant Destruction Based on the Fenton Reaction and Related Chemistry. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology* 36(1):1-84.

Robertson G (1987) Nitrous oxide sources in aerobic soils: nitrification, denitrification and other biological processes. *Soil Biology and Biochemistry* 19(2):187-193.

Robertson GP & tiedje JM (1987) Nitrous oxide sources in aerobic soils: Nitrification, denitrification and other biological processes. *Soil Biology and Biochemistry* 19(2):187-193.

Schmalz V, Dittmar T, Haaken D & Worch E (2009) Electrochemical disinfection of biologically treated wastewater from small treatment systems by using boron-doped diamond (BDD) electrodes–Contribution for direct reuse of domestic wastewater. *Water research* 43(20):5260-5266.

Senghor F (2013) *Traitement tertiaire d'effluents domestiques par électrocoagulation-électroreduction*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique).

Solano AMS, Garcia-Segura S, Martínez-Huitle CA & Brillas E (2015) Degradation of acidic aqueous solutions of the diazo dye Congo Red by photo-assisted electrochemical processes based on Fenton's reaction chemistry. *Applied Catalysis B: Environmental* 168:559-571.

Ting W-P, Lu M-C & Huang Y-H (2009) Kinetics of 2, 6-dimethylaniline degradation by electro-Fenton process. *Journal of Hazardous Materials* 161(2-3):1484-1490.

Tran LH (2009) *Destruction par voie électrochimique d'hydrocarbures aromatiques polycycliques contenus dans des matrices fortement contaminées*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique).

Tran N, Drogui P, Blais J-F & Mercier G (2012) Phosphorus removal from spiked municipal wastewater using either electrochemical coagulation or chemical coagulation as tertiary treatment. *Separation and Purification Technology* 95:16-25.

Vepsäläinen M (2012) *Electrocoagulation in the treatment of industrial waters and wastewaters.* VTT Technical Research Centre of Finland,

Wang K, Liu S, Zhang Q & He Y (2009) Pharmaceutical wastewater treatment by internal micro-electrolysis–coagulation, biological treatment and activated carbon adsorption. *Environmental technology* 30(13):1469-1474.

Zaviska F, Drogui P, Blais J-F, Mercier G & Lafrance P (2011) Experimental design methodology applied to electrochemical oxidation of the herbicide atrazine using Ti/IrO2 and Ti/SnO2 circular anode electrodes. *Journal of hazardous materials* 185(2-3):1499-1507.

Zheng X, Plume S, Ernst M, Croué J-P & Jekel M (2012) In-line coagulation prior to UF of treated domestic wastewater–foulants removal, fouling control and phosphorus removal. *Journal of Membrane Science* 403:129-139.