

Activité biologique dans un filtre à charbon actif en grains

Biological activity in a granular activated carbon filter

P. SERVAIS¹, G. BILLEN¹, P. BOUILLOT²

Reçu le 7 janvier 1991, accepté pour publication le 25 juin 1991*.

RÉSUMÉ

Cet article présente les résultats d'une étude, réalisée en usine de production d'eau potable, de la filtration biologique sur charbon actif en grains (CAG) utilisée en seconde filtration à la suite d'une étape d'ozonation. Les buts de cette étude étaient d'étudier la cinétique de colonisation bactérienne des filtres à CAG, d'analyser la qualité de l'eau en sortie de filtres durant la phase de colonisation biologique et de comparer le fonctionnement à l'équilibre biologique de deux filtres à temps de contact « eau-CAG » différents. Les résultats des mesures de biomasse bactérienne fixée, effectuées par une méthode de respiration potentielle de glucose, montrent qu'un volume d'eau filtrée de 30 - 50 10³ m³/m² de filtre est nécessaire pour coloniser le CAG. A ce moment, la biomasse fixée est d'environ 7 µgC/ml de CAG. La comparaison de la qualité de l'eau, en terme de carbone organique dissous biodégradable (CODB), entre l'entrée et la sortie du filtre étudié montre que durant la colonisation le processus de biodégradation, lié à l'installation d'une biomasse bactérienne suffisante, prend donc progressivement le pas sur le processus d'adsorption dominant au départ, mais qui diminue rapidement. La comparaison de filtres, fonctionnant dans des conditions différentes de hauteur de CAG et de vitesse de filtration, montre l'importance du paramètre temps de contact sur l'efficacité de la filtration biologique sur CAG. De ce point de vue, des temps de contact de 10 à 15 minutes offrent une bonne efficacité de la filtration avec un abattement de CODB pouvant dépasser 80 %.

Mots clés : production d'eau potable, carbone organique dissous biodégradable, charbon actif en grains, filtration biologique.

1. Groupe de Microbiologie des Milieux Aquatiques, Université Libre de Bruxelles, Campus de la Plaine, CP 221, B-1050 Bruxelles, Belgique.
2. Compagnie Générale des Eaux, 63, rue d'Anjou, F-75008 Paris, France.

* Les commentaires seront reçus jusqu'au 15 septembre 1992.

SUMMARY

During the two last decades, granular activated carbon (GAC) filtration has been used in drinking water treatment plant in order to remove by adsorption a part of the organic pollution. The adsorption capacity of GAC is however rapidly saturated, requiring frequent regeneration or replacement, which are both expensive and fastidious.

An interesting alternative, introduced in some French and Canadian treatment plants, consists in using GAC filtration without regeneration, taking advantage of the activity of microbial communities colonizing the GAC particles. In fact, this biological filtration, introduced in the treatment lines after sand filtration and an ozonation stage, has the advantage of specifically removing biodegradable compounds which are the most undesirable fraction of dissolved organic carbon (DOC).

This paper presents results of a study carried out at the Choisy-le-Roi treatment plant to understand better of the processes involved in biological filtration and to derive guidelines for a rational management of these filters. The aim to the study was to follow the bacterial colonization of GAC filters, to test the quality of the filtered water during the colonization phase and to compare the functioning of two colonized filters working with different empty bed contact times.

During the period of the study (from March to September 1989), GAC samples were collected at various depth in the filters in order to estimate the fixed bacterial biomass by a method of potential glucose respiration. Samples were also collected in the inlet and outlet waters for measuring the DOC and its biodegradable fraction (BDOC), and also the bacterial abundance estimated by epifluorescence microscopy.

Fixed bacterial biomass measurements on GAC were made during the colonization of the GAC filter nr 56 (*table 2*). The data showed that a filtered water volume of about 30 to 50 10^3 cubic meters per square meter of GAC filter was required to reach a stable level of colonization (*fig. 1*). At this stage, the fixed bacterial biomass was around $7 \mu\text{gC}/\text{ml}$ (*fig. 1* and *table 2*).

The quality of the water, in terms of dissolved organic carbon (DOC) and biodegradable dissolved organic carbon (BDOC), was tested during this colonization. The DOC in the inlet water was in the range of 1.71 to 2.28 mgC/l with a biodegradable fraction between 0.4 and 0.7 mgC/l . A removal of DOC was observed in all the sampled situations, it ranged between 0.49 mgC/l and 1.48 mgC/l ; the BDOC removal ranged between 0.31 mgC/l and 0.50 mgC/l (*table 3*). At the beginning of the colonization, the removal was due to adsorption, practically equal fractions of BDOC and NBDOC were removed. The adsorption process rapidly decreased as indicated by the decrease of non biodegradable dissolved organic carbon removal (*fig. 2*). Later, biodegradation increased with the bacterial colonization of the GAC. So during the colonization, biological processes took turn with adsorption so that a significant removal of biodegradable dissolved organic carbon was maintained from beginning to end.

Enumerations of bacteria were performed during colonization in the inlet and outlet waters of the nr 56 GAC filter by epifluorescence microscopy; they showed an increase of bacteria in the outlet water compared to the inlet water (*table 4*). This increase was nevertheless negligible in terms of carbon compared to the removed carbon; the average exportation was 0.0015 mgC/l while the removal was in the range 0.3 to 0.5 mgC/l .

Two filters (filters nr 56 and 58) with various functioning conditions were compared after their biological colonization. A vertical profile of BDOC in the

nr 56 filter is presented in figure 3 ; it shows that the most significant part of biodegradation took place in the first half of the filter, where the bacterial biomass was greater. A better BDOC removal was observed for filter 58 than for filter 56 (respectively 0.59 and 0.44 mgC/l) with empty bed contact time of respectively 15 and 10 minutes. In figure 4, the percentage of BDOC removal is plotted against empty bed contact time for filter nr 56 and 58. These data confirm previous results obtained with GAC pilot filters at the Neuilly-sur-Marne treatment plant (data also presented in figure 4) showing that the percentage of BDOC removal increases with increasing empty bed contact times. From this point of view, the actual contact times of 10 to 15 minutes applied in the treatment plant have shown a good efficiency of the filtration with BDOC removed higher than 80 %.

GAC biological filtration is a very promising way of removing dissolved organic matter in drinking water treatment plants.

Key-words : *drinking water production, biodegradable dissolved organic carbon, granular activated carbon, biological filtration.*

INTRODUCTION

La stratégie adoptée en Europe pour le traitement et la distribution d'eau potable à partir d'eaux brutes de qualité médiocre, telles que certaines eaux de rivières, consiste dans le développement de filières de traitement permettant d'éliminer au maximum la matière organique dissoute et de repousser la chloration en fin de traitement. Ceci permet de réduire considérablement les doses de chlore à appliquer et donc de limiter le risque de formation de composés organochlorés indésirables. La diminution de la demande en chlore de l'eau refoulée lui confère également une plus grande stabilité de son résiduel durant le séjour dans le réseau de distribution et permet le plus souvent d'éviter le recours aux rechloration en cours de distribution.

Dans les usines modernes de traitement, l'élimination de la matière organique dissoute débute dès l'étape de floculation-décantation et se poursuit durant la filtration sur sable. Cependant, un affinage supplémentaire, placé en aval de cette première filtration, se révèle souvent nécessaire. Au cours des deux dernières décennies, l'utilisation de filtres à charbon actif en grains (CAG) dans les installations de production d'eau potable a été mise en œuvre dans le but de retenir, par adsorption, une partie de la pollution organique qui n'a pas pu être éliminée par les premières étapes de traitement. Au cours de cette période, les propriétés adsorbantes des divers charbons actifs commerciaux ont fait l'objet d'un très grand nombre d'études (LEE *et al.*, 1981 ; ROBERTS *et al.*, 1982). Ces travaux ont permis de comparer l'adsorbabilité des grandes classes de composés organiques et de montrer l'influence des caractéristiques physiques du charbon sur l'adsorption de grosses molécules telles que les acides humiques (HUBER et ZIMMER, 1989).

Parallèlement à ses propriétés adsorbantes, le charbon actif constitue un bon support pour le développement bactérien dont la mise en évidence dans les installations industrielles a pu être réalisée par diverses techniques convergentes : examen en microscopie à balayage (WEBER *et al.*, 1978), dénombrements bactériens (RIZET et COUTE, 1981) et dosage de l'ATP (BOURBIGOT, 1981). L'activité de ces bactéries fixées peut également contribuer à l'élimination de matière organique dissoute dans les filtres, et ce, même après saturation des capacité d'adsorption du CAG (RITTMAN et SNOEMYINCK, 1984 ; McFETERS *et al.*, 1987) ; on l'appelle dans ce cas filtration biologique sur CAG (LE CHEVALLIER et McFETERS, 1990).

La filtration biologique présente deux avantages significatifs. Tout d'abord, le traitement biologique ne nécessite que de faibles coûts d'exploitation, alors que le traitement physico-chimique exige une régénération régulière et très coûteuse en énergie du charbon actif saturé, afin de lui rendre son pouvoir adsorbant. Ensuite, l'élimination, réalisée dans les deux procédés, intéresse des fractions différentes du carbon organique : l'adsorption élimine indifféremment les fractions biodégradables et non biodégradables, tandis que la filtration biologique n'élimine évidemment que la fraction biodégradable. Du point de vue de la prévention directe du processus de reviviscence dans le réseau, c'est précisément cette fraction biodégradable qu'il est important d'éliminer.

La filtration biologique apparaît donc comme une alternative attrayante à l'utilisation des propriétés adsorbantes du support. A l'heure actuelle, bien que ce procédé de traitement soit utilisé avec succès dans quelques usines en France (BABLON *et al.*, 1986, 1987) et au Canada (PRÉVOST *et al.*, 1989), le contrôle de celui-ci est encore imparfait à cause de profondes lacunes dans la compréhension des processus impliqués. C'est dans le but de combler ces lacunes qu'ont été entreprises une série d'études des processus microbiologiques impliqués dans la filtration biologique sur charbon actif dans les usines du Syndicat des Eaux d'Ile-de-France.

Dans le cadre d'une précédente étude sur les premiers filtres biologiques à CAG mis en service en 1984 à l'usine de Choisy-le-Roi (sans régénération de la capacité d'adsorption), des méthodes de mesure de la biomasse bactérienne (SERVAIS *et al.*, 1991) et du dosage du carbone organique dissous biodégradable (COBD) ont été développées (SERVAIS *et al.*, 1987, 1989). Cette étude a montré que la biomasse bactérienne qui colonise le charbon actif en grains réalise un abattement tout à fait significatif de la matière organique biodégradable présente dans l'eau filtrée sur sable et ozonée alimentant ces filtres et ce, dans les conditions de fonctionnement suivantes : 1 m de profondeur de CAG avec une vitesse de filtration de 6 m/h (SERVAIS *et al.*, 1991). Une étude sur pilotes, réalisée à l'usine de Neuilly-sur-Marne, a mis en évidence le fait que l'abattement en COBD était fonction du temps de contact « eau-CAG » ; il est donc possible de conserver la même efficacité de la filtration en augmentant proportionnellement la vitesse de filtration et la hauteur de la couche de CAG (BOUILLOT *et al.*, 1990 ; SERVAIS *et al.*, soumis). En fonction de ces résultats, de nouveaux filtres biologiques à CAG, dimensionnés de manière différente (profondeur de CAG et vitesse de filtration plus importantes) ont été conçus et mis en service à l'usine de Choisy-le-Roi

début 1989 (POIREL *et al.*, 1989). Le but de cet article est de présenter les résultats acquis pendant une période de sept mois d'étude, suivant la mise en service de ces nouveaux filtres. Les mesures effectuées, visant à confirmer à l'échelle industrielle les résultats acquis sur pilotes, ont été centrées sur deux points :

- Etudier la cinétique de colonisation bactérienne de ces filtres et tester la qualité de l'eau en sortie des filtres durant la phase transitoire de colonisation.
- Comparer le fonctionnement de deux filtres biologiquement colonisés de profondeurs différentes.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

L'usine de Choisy-le-Roi

L'usine de Choisy-le-Roi, située dans la banlieue sud-est de Paris, a une capacité de production de 800 000 m³/jour et dessert une population de 2 100 000 habitants. L'eau brute est prélevée dans la Seine en amont de Paris. La filière de traitement comprend une étape de préozonation (1 mgO₃/l), une étape de coagulation, floculation et décantation, une filtration sur sable (où l'ammoniaque est éliminé grâce à l'activité des bactéries nitrifiantes), une ozonation (1,5 à 2,5 mgO₃/l), une filtration biologique sur CAG, une chloration (1 mgCl₂/l avec un temps de contact de 2 à 4 heures) et enfin une déchloration au bisulfite, afin d'assurer un résiduel de chlore dans l'eau refoulée d'environ 0,3mgCl₂/l.

Les filtres à CAG étudiés

La colonisation bactérienne des nouveaux filtres à charbon actif de l'usine de Choisy-le-Roi a été suivie sur le filtre n° 56. Ce filtre, d'une surface de 117 m², contient une profondeur de 2,5 m de charbon actif vierge de type Picabiol (Compagnie Pica, France). La succession des diverses phases de la mise en service de ce filtre est reprise au *tableau 1*. Dans un premier temps, afin d'effectuer certaines mises au point, ce filtre s'est trouvé sous eau, mais sans être utilisé en filtration ; ensuite la filtration a été mise en route à faible débit (100 m³/h), puis à débit plus important (entre 300 et 650 m³/h) durant une partie du cycle journalier (10 heures par jour). La mise en route de la filtration en continu s'est effectuée le 28 avril 1989. Après colonisation biologique des filtres, des mesures ont également été effectuées sur le filtre n° 58 de même surface que le filtre n° 56, mais contenant une hauteur de CAG de 1,5 m et mis en eau au même moment.

Echantillonnages

Au cours de la période étudiée (de mars à septembre 1989), des échantillons de CAG ont été prélevés à différentes profondeurs dans les filtres, afin de mesurer la biomasse bactérienne fixée (voir plus loin). Les prélèvements de charbon ont été effectués à partir d'un pont roulant surplombant les

filtres au moyen d'un carotteur spécialement conçu pour collecter un échantillon d'environ 100 ml de CAG.

Tableau 1 Succession des diverses phases de mise en service du filtre n° 56 de l'usine de Choisy-le-Roi.

Table 1 Sequence of various functioning stages of the nr 56 filter at the Choisy-le-Roi.

Du 19.12.1988 au 23.12.1988	Livraison du CAG avec quelques rinçages pour étaler le charbon dans le filtre et remonter le pH.
Du 23.12.1988 au 27.12.1988	Rinçages répétés du CAG
Du 27.12.1988 au 03.01.1989	Vidange du filtre pour mesure du volume livré
Du 04.01.1989 au 30.01.1989	Mise en eau avec quelques lavages par semaine pour tester les automatismes et renouveler l'eau
Du 31.01.1989 au 12.02.1989	Mise en filtration à un faible débit (100 m ³ /h) avec quelques lavages périodiques
Du 13 au 20.03.1989	Recharge de CAG et lavages
Du 21 au 27.03.1989	Remise en filtration durant 10 heures par jour
A partir du 28.04.1989	Filtration en continu à un débit moyen de 1 790 m ³ /h correspondant à une vitesse de 15 m/h

Des échantillons d'eau d'entrée et de sortie des filtres ont été prélevés respectivement dans l'eau surnageante par-dessus le CAG dans les filtres et dans le collecteur d'eau filtrée. De plus, le filtre n° 56 est équipé d'un système permettant le prélèvement d'eau interstitielle à différentes profondeurs dans la couche de CAG.

Mesure de la biomasse bactérienne fixée

L'observation directe en microscopie des bactéries fixées sur un grain de charbon est très difficile en raison de l'irrégularité de sa surface. La plupart des auteurs ayant tenté d'estimer la biomasse fixée sur CAG ont eu recours à des techniques de décrochages aux ultrasons, suivies d'une énumération dans la phase liquide (LE CHEVALLIER et McFETERS, 1990). Néanmoins, cette technique est peu satisfaisante, à cause de la variabilité et du faible rendement du décrochage.

C'est la raison pour laquelle nous avons développé une technique basée sur une toute autre approche. Il s'agit de la mesure de la respiration potentielle du glucose qui renseigne sur l'importance de la population bactérienne active présente sur le support (SERVAIS *et al.*, 1991).

Pratiquement, on mesure la production de ¹⁴C₂O₂ à partir de ¹⁴C-glucose (présent en concentration saturante) par un échantillon de charbon à 20°C. Le mode opératoire retenu est le suivant :

A 2 ml de CAG avec son eau interstitielle (celle-ci représente environ 75 % en poids), on ajoute 0,1 ml d'une solution 10 mmol/l de glucose marqué (Amersham Corp.) contenant 0,1 à 1 µCi, ainsi que 0,9 ml d'eau interstitielle

filtrée sur une membrane de porosité 0,2 μm , dans un flacon bouché par un septum étanche. Après 3 heures d'incubation à 20° C, l'échantillon est acidifié par addition de 2 ml d' H_2SO_4 10 % à travers le septum. Le CO_2 formé et entraîné par bullage et piégé dans 10 ml d'un mélange Carbosorb-Lipoluma (1:4 vol/vol) qui piège le CO_2 (BILLEN *et al.*, 1980). La respiration potentielle de l'échantillon est calculée à partir de la radioactivité contenue dans ce mélange et mesurée par scintillation liquide à l'aide d'un compteur Packard Tri-Carb. Sur base de série de répliquats, la précision de cette méthode a été estimée à environ 10 %, dans la gamme des activités de respiration potentielle mesurées sur des échantillons de CAG.

Pour pouvoir convertir les valeurs de respiration potentielle de glucose en biomasse exprimée en carbone, cette méthode a été calibrée sur des suspensions de bactéries décrochées par une procédure de lavage d'un filtre à charbon. Une valeur de 1,1 μgC par nmole de glucose respiré par heure a été obtenue (SERVAIS *et al.*, 1991).

Tableau 2 Biomasse bactérienne fixée ($\mu\text{gC/ml}$) à différentes profondeurs dans le filtre n° 56 au cours de sa colonisation.

Table 2 Fixed bacterial biomass ($\mu\text{g/ml}$) at various depths in the nr 56 filter during its colonization.

Date	Profondeur (m)				
	0	0.5	1	1.5	2
02.03.89			Echantillon moyen		
22.03.89	1.1	1.5	—	1.0	0.9
19.04.89	0.5	1.1	0.7	0.7	1.2
23.05.89	4.2	3.1	—	—	—
15.06.89	4.7	6.0	11.7	2.9	—
27.09.89	8.5	8.0	6.7	6.3	—

Dénombrement des bactéries dans l'eau

Les bactéries totales sont dénombrées au microscope à épifluorescence après coloration à l'acridine orange selon la procédure proposée par HOBBIÉ *et al.* (1977). Les volumes filtrés sur membrane Nucléopore noire de porosité 0,2 μm sont compris entre 10 et 50 ml selon la concentration en bactéries. La précision de telles énumérations a été estimée à environ 10 %.

Mesure de carbone organique dissous (COD) et du carbone organique dissous biodégradable (CODB)

Le COD est dosé au moyen d'un Total Carbon Analyser Dohrman 180, dans lequel le carbone organique est oxydé au persulfate sous rayons ultraviolets après élimination du carbone minéral. Le CO_2 résultant de l'oxydation est déterminé par spectrométrie infra-rouge.

Dans cette étude, nous avons utilisé la méthode de détermination de CODB basée sur la décroissance du COD dans un échantillon stérilisé, puis

réinoculé (SERVAIS *et al.*, 1987, 1989). Dans cette méthode, un échantillon de 200 ml est stérilisé par filtration sur une membrane de porosité 0,2 μm (Nucléopore ou Sartorius) préalablement rincée à l'eau distillée. Un inoculum de 2 ml, contenant une population indigène de bactéries, est ensuite ajouté. L'inoculum est, en fait, constitué d'eau brute (eau de Seine), filtrée sur une membrane de 2 μm , afin de retenir les particules et le microzooplancton. L'incubation de l'échantillon inoculé se fait à $20 \pm 0,5^\circ \text{C}$ pendant 4 semaines. Deux sous-échantillons de 30 ml sont prélevés en début d'incubation (juste après addition de l'inoculum) et en fin d'expérience, afin de doser le COD. Le CODB est calculé comme la différence entre les valeurs moyennes du COD initial et final, ce dernier représentant en fait le carbone organique dissous non biodegradable (CODNB).

RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

Suivi de la colonisation d'un filtre

Biomasse fixée

Six campagnes de mesures de la biomasse bactérienne fixée ont été effectuées entre mars et septembre 1989. Les résultats de ces mesures sont repris au tableau 2. Celui-ci montre qu'une biomasse de l'ordre de 1 $\mu\text{gC/ml}$ était déjà fixée sur le CAG, avant la mise en filtration continue de ce filtre le 28.04.89. Cette biomasse s'est développée durant la phase de mise sous eau et de filtration à débit réduit.

A la figure 1, la biomasse moyenne fixée dans ce filtre a été portée en fonction des volumes d'eau, ayant percolé à travers le filtre, calculés à partir des informations du tableau 1, pour les différentes situations échantillonnées. Ceci permet d'avoir une idée de la cinétique de colonisation de ce filtre. Dans une première phase, la biomasse fixée augmente rapidement avec le volume d'eau filtrée, cette augmentation se ralentit par la suite. Il semble que la valeur moyenne de biomasse fixée, mesurée lors de la dernière campagne de prélèvements (4,7 $\mu\text{gC/ml}$), puisse être considérée comme représentant la biomasse fixée à l'équilibre. Elle se trouve, en effet, au sommet de la fourchette des valeurs de biomasse à l'équilibre précédemment observée à l'usine de Choisy-le-Roi (SERVAIS *et al.*, 1991). Un volume d'eau de 30 à 50 $10^3 \text{ m}^3/\text{m}^2$ est donc nécessaire à la colonisation bactérienne du CAG.

Pendant les trois premiers mois de notre étude, le filtre n° 56 se trouve donc dans une phase transitoire de colonisation, pendant laquelle il est particulièrement important de voir quelle est la qualité de l'eau en sortie de filtre, tant en terme de COD (et plus particulièrement de CODB) qu'en terme de teneur en bactéries libres.

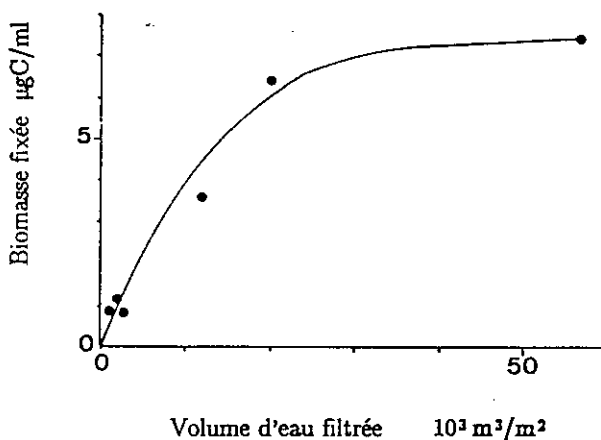


Figure 1 Biomasse moyenne fixée dans le filtre n° 56 en fonction du volume d'eau filtrée par celui-ci (exprimée en m³ d'eau par m² de filtre).

Fixed bacterial biomass in the nr 56 filter plotted against the volume of filtered water (expressed in m³ of water per m² of GAC filter).

Abatement en COD et enCODB

Le tableau 3 reprend les valeurs de l'ensemble des dosages de COD et CODB effectués à l'entrée et à la sortie du filtre n° 56, ainsi que les abatements calculés pour les différentes formes du carbone organique dissous.

Tableau 3 Carbone organique dissous biodégradable (CODB) et non biodégradable (CODNB) à l'entrée et à la sortie du filtre n° 56. Abatement en COD, CODB et CODNB.

Table 3 Biodegradable (BDOC) and non biodegradable (NBDOC) dissolved organic carbon at the inlet and outlet of the nr 56 filter. Removal of DOC, BDOC, NBDOC.

Date 1989	ENTREE			SORTIE			ABATEMENT					
	COD mgC/l	CODNB mgC/l	CODB mgC/l	COD mgC/l	CODNB mgC/l	CODB mgC/l	COD mgC/l	%	CODNB mgC/l	%	CODB mgC/l	%
22.03	2.28	1.58	0.70	0.80	0.60	0.20	1.48	65	0.98	62	0.50	71
19.04	2.18	1.55	0.63	1.30	1.04	0.26	0.88	40	0.51	33	0.37	59
23.05	1.73	1.15	0.58	1.24	0.93	0.31	0.49	28	0.22	19	0.31	53
15.06	1.71	1.31	0.40	1.10	1.01	0.09	0.61	36	0.30	23	0.31	78
27.09	2.16	1.61	0.55	1.53	1.42	0.11	0.63	29	0.19	12	0.44	80

Le COD de l'eau filtrée sable ozonée alimentant les filtres à CAG est compris entre 1,71 et 2,28 mgC/l ; le CODB est compris entre 0,40 et 0,70 mgC/l avec une valeur moyenne de 0,57 mgC/l, très proche du CODB moyen d'entrée, observé en 1985 et en 1986 à Choisy-le-Roi qui était de 0,60 mgC/l (SERVAIS *et al.*, 1991). Cette valeur relativement élevée s'explique par le fait que l'eau alimentant les filtres à CAG vient de subir une ozonation qui a pour effet de transformer une part de carbone organique réfractaire en CODB (SONTHEINER, 1979 ; JANSSENS *et al.*, 1985 ; WERNER et HAMBSCH, 1986 ; SERVAIS *et al.*, 1987). Une réduction du COD comprise entre 0,49 et 1,48 mgC/l s'observe lors de la filtration pour chacune des situations échantillonnées qui couvrent une gamme de température de 10 à 20° C. La concentration en CODB est, pour sa part également, toujours diminuée de 0,31 à 0,50 mgC/l ce qui correspond à une fraction retenue sur le filtre de 53 à 80 % de la concentration dans l'influent. Ces résultats montrent de manière indiscutable l'efficacité de tels filtres. Il semble que la qualité de l'eau, du point de vue de sa teneur en carbone organique dissous, est aussi bonne en sortie du filtre en cours de colonisation qu'en sortie du filtre une fois colonisé. Au départ, le processus d'adsorption est dominant, il retient sans distinction le CODB et le CODNB. Ainsi le 22.03.89, les pourcentages d'abattement de CODB et CODNB sont fort proches, entre 60 et 70 %. Par la suite, le pourcentage d'abattement du carbone organique non biodégradable, qui résulte uniquement du processus d'adsorption, diminue rapidement (*fig. 2*), pour atteindre moins de 15 % lors de la dernière situation échantillonnée (27.09.89). Ceci met en évidence la rapide diminution de la capacité d'adsorption du charbon actif vis-à-vis de la matière organique dissoute. Le pourcentage de CODB abattu, résultant à la fois de l'adsorption et de la biodégradation, diminue dans un premier temps, mais réaugmente par la suite, lorsque la biodégradation devient importante, suite à la colonisation bactérienne du charbon.

Exportation de bactéries

Des dénombrements de bactéries ont été effectués lors des campagnes de mesures à la fois sur l'eau filtrée sable ozonée alimentant les filtres à CAG et sur l'eau prélevée en sortie du filtre n° 56 (*tableau 4*).

Tableau 4 Dénombrements des bactéries dans l'eau d'entrée et de sortie du filtre n° 56.

Table 4 *Bacterial enumeration in the inlet and outlet waters of the nr 56 filter.*

Date	Nombre de bactéries (/ml)	
	Eau d'entrée	Eau de sortie
22.03.89	15 000	80 000
19.04.89	18 000	112 000
23.05.89	10 000	26 000
15.06.89	35 000	147 000
27.09.89	28 000	117 000

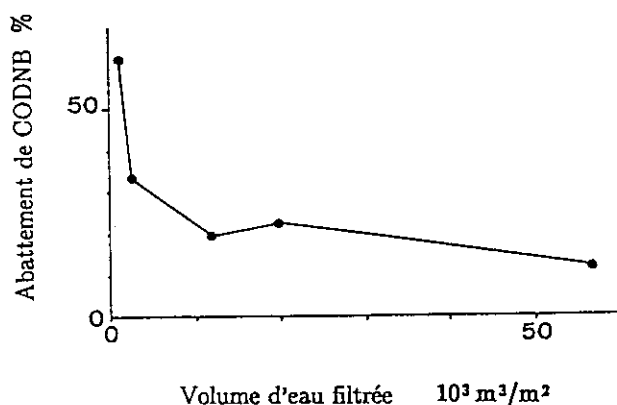


Figure 2 Pourcentage d'abatement en CODNB, lors du passage sur le filtre n° 56 durant sa colonisation, porté en fonction du volume d'eau ayant percolé à travers ce filtre.

Percentage of non biodegradable dissolved organic carbon removal in the nr 56 GAC filter during its colonization plotted against the volume of filtered water.

L'eau d'alimentation contient entre 10 000 et 35 000 bact/ml ; ces valeurs faibles s'expliquent par l'efficacité de l'étape d'ozonation qui conduit à une réduction de plus de 85 % du nombre de bactéries contenues dans l'eau filtrée sur sable (SERVAIS, résultats non publiés).

En sortie du filtre à CAG, le nombre de bactéries fluctue entre 26 000 et 147 000 bact/ml. Ces valeurs sont légèrement supérieures à celles observées préalablement sur les filtres CAG de 1 m de hauteur à l'usine de Choisy-le-Roi (SERVAIS *et al.*, 1991). Le nombre de bactéries en sortie est toujours plus élevé (4 à 5 fois, en moyenne) qu'à l'entrée des filtres, ce qui montre que ce type de filtre exporte de la biomasse bactérienne. Ceci est en accord avec les résultats obtenus précédemment par SERVAIS *et al.* (1991), qui montraient également une teneur en bactéries supérieure dans l'eau après filtration biologique sur CAG. En terme de carbone, cette exportation est cependant négligeable par rapport à la quantité de carbone abattu dans le filtre : l'exportation nette de bactéries sur les situations échantillonnées est, en moyenne, de $75 \cdot 10^6$ bact/l, ce qui représente, en considérant un contenu moyen en carbone par bactérie de $20 \cdot 10^{-15}$ gC (SERVAIS *et al.*, 1991), une exportation de carbone de 0,0015 mgC/l, alors que l'abatement de CODB est de l'ordre de 0,3 à 0,5 mgC/l.

Fonctionnement de filtres biologiquement colonisés

Lors de la campagne de mesures du 27.09.89, après cinq mois de filtration en continu, nous avons comparé les filtres n° 56 et 58 dont les conditions de fonctionnement sont reprises au tableau 5. Le temps de contact dans le filtre n° 58 est de 15 minutes et donc 50 % supérieur à ce qu'il est pour le filtre n° 56.

Tableau 5 Conditions de fonctionnement des filtres à CAG n° 56 et 58 à l'usine de Choisy-le-Roi, le 27.09.1989.

Table 5 *Operating conditions of the nr 56 and 58 GAC filters at the Choisy-le-Roi treatment plant (27th of September 1989).*

	Filtre n° 56	Filtre n° 58
Hauteur de CAG (m)	2,5	1,5
Vitesse de filtration (m/h)	10	6
Temps de contact (min)	10	15

Les biomasses bactériennes fixées dans les deux filtres sont reprises au tableau 6. La biomasse bactérienne est un peu supérieure dans le filtre n° 56 ; une stratification verticale de la biomasse bactérienne s'observe dans les deux filtres avec des valeurs décroissantes en fonction de la profondeur de CAG.

Tableau 6 Biomasse bactérienne fixée ($\mu\text{gC/ml}$) à différentes profondeurs dans les filtres à CAG n° 56 et 58 à Choisy-le-Roi (27.09.1989).

Table 6 *Fixed bacterial biomass ($\mu\text{gC/ml}$) at various depths in the nr 56 and 58 GAC filters at the Choisy-le-Roi treatment plant (27th of september 1989).*

	0 m	0,5 m	1 m	1,5 m
Filtre n° 56	8,5	7,9	6,7	6,3
Filtre n° 58	7,8	7,4	4,4	3,7

Le 27.09.89, l'exportation de bactéries du filtre n° 58 (1,5 m de CAG) est supérieure (170 000 bact/ml) à celle du filtre n° 56 (2,5 m de CAG) (117 000 bact/m), mais reste cependant faible en terme de carbone (cf. Exportation de bactéries).

Des dosages de COD, CODB, CODNB ont été effectués le 27.09.89 sur l'eau d'entrée alimentant les filtres à CAG, sur l'eau de sortie des filtres n° 56 et 58 ainsi que sur l'eau interstitielle prélevée à deux profondeurs intermédiaires dans le filtre n° 56. Ces derniers permettent de tracer le profil vertical de CODB dans le filtre 56 (*fig. 3*) ; celui-ci montre que la partie la plus importante de la biodégradation s'effectue dans la moitié supérieure du filtre, où la biomasse bactérienne fixée est plus importante (*tableau 6*). Si l'on compare la teneur en CODB des eaux de sortie des deux filtres (0,11 mgC/l pour le filtre 56 et 0,06 mgC/l pour le filtre 58), on voit que l'abattement de CODB est un peu plus important dans le filtre n° 58 (0,49 mgC/l pour le filtre n° 58 contre 0,44 mgC/l pour le filtre n° 56 alors que la biomasse moyenne fixée est légèrement supérieure dans le filtre 56 (*tableau 6*). Les abattements observés représentent 89 % pour le filtre 58, et 80 % pour le filtre 56 de la teneur en CODB de l'eau influente. Bien que cette différence soit à la limite de détection de la méthode, elle peut s'expliquer par un temps de contact plus élevé, 15 minutes pour le filtre 58 contre 10 minutes pour le filtre n° 56. La

figure 4 présente la relation entre le pourcentage d'abattement de COBD et le temps de contact pour les situations échantillonnées dans cette étude. Cette relation présente les mêmes tendances que celle obtenue précédemment et également présentée à la figure 4, avec des résultats d'expériences réalisées sur des pilotes de filtres biologiques à CAG et menées à l'usine de Neuilly-sur-Marne (BOUILLOT *et al.*, 1990 ; SERVAIS *et al.*, soumis). Ces relations mettent très clairement en évidence le rôle clef du temps de contact sur l'efficacité de la filtration biologique sur CAG.

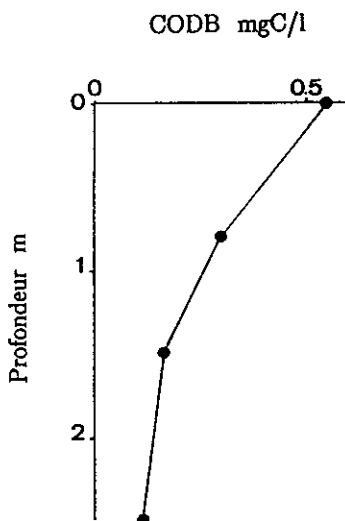


Figure 3 Profil vertical de COBD dans le filtre n° 56 le 27.09.1989.

Vertical profile of biodegradable dissolved organic carbon in the nr 56 GAC filter (27th of September 1989).

CONCLUSION

Les observations réalisées lors de la mise en service de nouveaux filtres à CAG à l'usine de Choisy-le-Roi montrent que la colonisation de ce support solide par les bactéries est relativement lente. Elle nécessite, en terme de volume d'eau filtrée, de 30 à 50 10^3 m³/m² de filtre pour un filtre de 2,5 m de profondeur, ce qui représente quelques mois de fonctionnement aux vitesses de filtration habituellement utilisées. La biomasse bactérienne atteinte à l'équilibre biologique est de l'ordre de 7 µgC/ml de CAG. Durant la phase de colonisation, le processus de biodégradation prend progressivement le pas sur le processus d'adsorption pour éliminer la matière organique dissoute lors de la filtration. L'abattement du carbone organique dissous non biodégradable, dû au seul processus d'adsorption, passe de plus de 60 %, en début de période de colonisation, à moins de 15 %, après quelques mois. Durant cette phase transitoire de colonisation, les résultats montrent qu'il n'y a pas de problèmes de qualité de l'eau filtrée, ni en terme de concentration en carbone organique dissous biodégradable, ni en terme de teneur en bactéries libres.

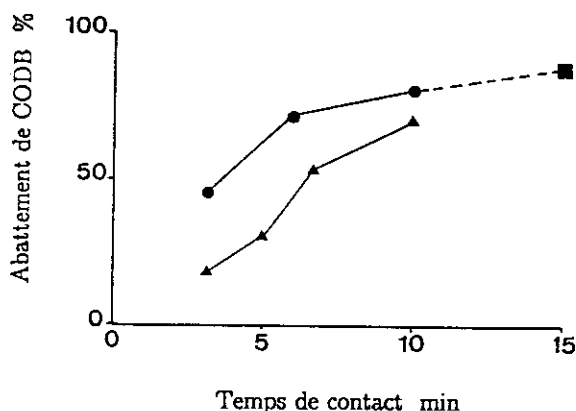


Figure 4 Relation entre le pourcentage de CODB abattu et le temps de contact. (●) Filtre 56 le 27.09.1989 à Choisy-le-Roi (18,6° C), (■) filtre 58 le 27.09.1989 à Choisy-le-Roi (18,6° C), (▲) résultats obtenus dans une étude sur pilote à Neuilly-sur-Mame (18 à 20° C) (BOUILLOT *et al.*, 1990 ; SERVAIS *et al.*, soumis).
Percentage of biodegradable dissolved organic carbon plotted against contact time.
 (●) Observations on nr 56 filter at Choisy-le-Roi (France) treatment plant (27th of September 1989 – 18,6° C), (■) observations on nr 58 filter at Choisy-le-Roi (France) treatment plant (27th of September 1989 – 18,6° C), (▲) observations during a pilot study of GAC filters at Neuilly-sur-Mame treatment plant (18-20° C) (BOUILLOT *et al.*, 1990 ; SERVAIS *et al.*, submitted).

La comparaison de filtres, fonctionnant dans des conditions différentes de hauteur de CAG et de vitesse de filtration, confirme à l'échelle industrielle les résultats précédemment obtenus sur pilotes quant à l'importance du paramètre temps de contact sur l'efficacité de la filtration biologique sur CAG. De ce point de vue, les temps de contact appliqués aux deux filtres étudiés, soit 10 et 15 minutes, permettent une bonne efficacité de la filtration dans les conditions de température de septembre 1989, soit 18,6° C.

Cette étude de la filtration biologique sur CAG montre l'intérêt de ce type de traitement pour la réduction de la matière organique dissoute, et plus particulièrement de sa fraction biodégradable dans les filières de production d'eau potable.

REMERCIEMENTS

Cette étude a été réalisée pour le compte du Syndicat des Eaux d'Ile-de-France. Gilles BILLEN est chercheur qualifié au Fonds National de la Recherche Scientifique (Belgique).

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BABLON G., VENTRESQUE C., DAMEZ F., 1986. Combine Use of Ozone and BAC in a Large Treatment Plant. *Water Supply*, 4 : 3-35.
- BABLON G., VENTRESQUE C., ROY F., 1987. Evolution of organics in a potable water treatment system. *Aqua*, 2 : 110-113.
- BILLEN G., JOIRIS C., WIJNANT J., GILLAIN G., 1980. Concentration and microbial utilization of small organic molecules in the Scheldt estuary, the Belgian coastal zone of the North Sea and the English Channel. *Coast. Mar. Sci.*, 11 : 279-294.
- BOUILLOT P., BILLEN G., SERVAIS P., TRANCHART J.L., 1990. Biological contactors in the treatment of surface water to produce drinking water : design and operating data. *AWWA annual conference Proc. June 17-21 Cincinnati*, p. 1987-1992.
- BOURBIGOT M., 1981. Filtration biologique sur charbon actif utilisée en second étage de traitement. *Tribune du Cebedeau*, 448 : 131-143.
- HOBBIE J.E., DALEY J.J., JASPER S., 1977. Use of Nuclepore filters for counting bacteria by fluorescence microscopy. *Appl Environ. Microbiol.*, 33 : 1225-1228.
- HUBERT L., ZIMMER G., SONTHEIMER H., 1989. Powdered or granular activated carbon for micropollutant removal. *Aqua*, 38 : 118-130.
- JANSSENS J.G., MEHEUS J., DIRICKX J., 1985. Ozone Enhanced Biological Activated Carbon Filtration and its Effect on Organic Matter Removal and in Particular on AOC Reduction. *Water Sci. Tech.*, 17-6/7 : 1055.
- Le CHEVALLIER M.W., McFETERS G.A., 1990. Microbiology of activated carbon. In : *Drinking water Microbiology*, G.A. McFeters, ed., Springer Verlag. p. 104-119.
- LEE M.C., SNOEYINCK V.L., CRITTENDEN J.C., 1981. Activated Carbon Adsorption of Humic Substances. *Journal AWWA*, 73 : 440.
- McFETERS G.A., CAMPER A.K., Le CHEVALLIER M.W., BROADAWAY S.C., DAVIES D.G., 1987. Bacteria attached to granular activated carbon in drinking water. *EPA Environmental Research Brief*, June, 1987 : 1-5.
- POIREL B., MERCIER M., LULIC D., 1989. Conception de nouveaux contacteurs biologiques à charbons actifs en grains. *Eau Industrie Nuisances*, 27, 33-36.
- PRÉVOST M., DESJARDINS R., ARCOUETTE N., DUCHESNE D., COALLIER J., 1989. Full Scale Evaluation of Biological Activated Carbon Filtration for the Treatment of Drinking Water. *WQTC AWWA Annual Conference*, Philadelphia, November : 11-16.
- RITTMAN E., SNOEYINCK V.L., 1984. Achieving biologically stable drinking water. *Journal AWWA*, 76 : 106-114.
- RIZET M., COUTE A., 1981. Evaluation des micro-organismes des milieux granulaires utilisés pour la filtration des eaux de surface. *T.S.M. L'eau*, juin 1981 : 371-379.
- ROBERTS P.V., SUMMERS R.S., 1982. Performance of granular Activated Carbon for Total Organic Carbon Removal, *Journal AWWA*, 74 : 113.

- SERVAIS P., BILLEN G., HASCOET M.C., 1987. Determination of the biodegradable fraction of dissolved organic matter in waters. *Water Res.*, 21 : 445-450.
- SERVAIS P., ANZIL A., VENTRESQUE C., 1989. Simple method for the determination of biodegradable dissolved organic carbon in water. *Appl. Environ. Microbiol.*, 55 : 2732-2734.
- SERVAIS P., BILLEN G., VENTRESQUE C., BABLON G., 1991. Microbial activity in granular activated carbon filters at the Choisy-le-Roi treatment plant. *Journal AWWA*, 83 (2) : 62-68.
- SONTHEIMER H., 1979. Process Engineering Aspects in the Combination of Chemical and Biological Oxidation. In: *Oxidation Techniques in Drinking Water Treatment*, ed. W. Kuhn and H. Sontheimer. EPA-570/9-79-020.
- WEBER W.J., PIRBAZARI M., NELSON G.L., 1978. Biological growth on activated carbon : an investigation by scanning electron microscopy. *Envir. Sci. Technol.*, 12 : 817-819.
- WERNER P., HAMBSCH B., 1986. Investigations on the Growth of Bacteria in Drinking Water. *Water Supply*, 4 (3) : 227-232.