



### **ACTIONS 3.1 ET 10.2 – DYNAMIQUE DE POLLUANTS EMERGENTS (PARABENES, TRICLOSAN ET TRICLOCARBAN) DANS LE CONTINUUM EAUX GRISES - MILIEU RECEPTEUR**

**THESE DE SIFAX ZEDEK**

*SOUS LA DIRECTION DE REGIS MOILLERON ET ADELE BRESSY*

## CONTEXTE

Les micropolluants sont un « challenge pour les systèmes aquatiques » comme l'ont dit (Schwarzenbach et al., 2006) dans le journal Science et comme le prouvent les différents plans Micropolluants du Ministère de l'Environnement, de l'Energie et de la Mer (2010, 2016). D'après ces auteurs, plusieurs thématiques de recherche concernant les micropolluants sont à développer : évaluer leur impact sur les milieux récepteurs, développer des technologies de traitement et réduire les émissions de micropolluants à la source (Schwarzenbach et al., 2006). Cette thèse vise à étudier ces questions à travers l'exemple des conservateurs et biocides utilisés dans les produits cosmétiques, mais aussi dans les produits pharmaceutiques et plus largement dans des produits courants de consommation : les parabènes (PB), le triclosan (TCS) et le triclocarban (TCC) (Bedoux et al., 2012; Haman et al., 2015). Ces substances sont problématiques du fait de leur large utilisation (Ficheux et al., 2015; Mintel database, 2015) et de leurs effets négatifs sur les écosystèmes aquatiques comme perturbateurs endocriniens ou inducteurs d'antibiorésistance (Brausch and Rand, 2011; Carey and McNamara, 2015; Gomez et al., 2005; Haman et al., 2015; SCCS, 2010; Yamamoto et al., 2011). L'occurrence de ces substances a été étudiée dans les eaux usées et les stations d'épuration (Bedoux et al., 2012; Gasperi et al., 2014; Haman et al., 2015) mais peu dans les eaux grises (Eriksson et al., 2009) et les eaux de surface en particulier en France (Botta et al., 2014). Ces substances ont été étudiées pour la première fois au Leesu lors de la thèse de (Geara-Matta, 2012) qui a mis en place une base de données sur les niveaux d'imprégnation dans les eaux résiduaires urbaines de deux agglomérations, Paris et Beyrouth, par temps sec, et qui a évalué l'efficacité des traitements présents dans différentes stations d'épuration : deux à Paris, une à Beyrouth. Ses travaux ont permis entre autre, et pour la première fois en France, d'estimer des flux annuels par équivalent habitant pour l'ensemble des composés suivis sur la base des concentrations mesurées dans les émissaires du réseau parisien.

Ces substances ont fait l'objet de controverses scientifiques (DeLeo and Sedlak, 2014; Halden, 2014a, 2014b) et d'une forte médiatisation, induisant des changements de pratiques. Suite à la prise de conscience par le grand public des dangers des parabènes évoqués dans une publication scientifique (Darbre et al., 2004), les parabènes qui étaient présents dans plus de 80 % des produits cosmétiques en 2010 (Fernandez et al., 2012) sont devenus de moins en moins fréquents (Mintel database, 2015) avec la multiplication des mentions « sans parabène » et l'essor des produits biologiques dans le champ des cosmétiques (Bressy et al., 2016b). Ces changements de pratiques sont également dus à des modifications récentes de la réglementation. En 2014, la Commission européenne a décidé de restreindre l'utilisation du TCS dans les produits cosmétiques (règlement n° 358/2014) alors qu'il était jusqu'alors autorisé à des concentrations maximales allant de 0,2 à 0,3 % selon le produit cosmétique considéré. Il est désormais interdit dans les mousses, les gels et les crèmes de rasage ainsi que les baumes après-rasage. En 2016, la réglementation s'est encore durcie avec la publication par la Commission européenne d'un règlement de non-approbation du TCS dans les produits biocides de la classe « type de produits 1<sup>1</sup> » (Décision d'exécution (UE) 2016/110 de la

<sup>1</sup> Produits biocides utilisés pour l'hygiène humaine, appliqués sur la peau humaine ou le cuir chevelu ou en contact avec celle-ci ou celui-ci, dans le but principal de désinfecter la peau ou le cuir chevelu -

<https://echa.europa.eu/fr/regulations/biocidal-products-regulation/product-types>

commission du 27 janvier 2016). La réglementation s'est également durcie pour les PB dans les cosmétiques (règlement n°1004/2014) avec un abaissement de la concentration maximale admissible à 0,14 % du BuP et du PrP et une interdiction de ces derniers dans les produits cosmétiques sans rinçage pour les enfants de moins de 3 ans. En dépit de ces travaux de recherche et ces changements de pratiques, des interrogations demeurent : (i) quant aux sources et au transfert des micropolluants jusqu'au milieu récepteur ; et (ii) sur les solutions possibles pour diminuer leurs rejets. En effet les travaux de (Botta et al., 2014) ont montré que ces substances se trouvaient en concentrations importantes dans les eaux de surface (de < LOQ à environ 1 µg.L<sup>-1</sup> dans les rivières françaises pour le méthylparabène) en dépit des abattements en station d'épuration forts évalués par (Geara-Matta, 2012), supérieurs à 97 %. Les solutions pour diminuer les rejets dans les milieux récepteurs peuvent en effet être de deux sortes : (i) à l'amont, et dans ce cas la question de l'origine de la contamination et de l'impact des habitudes de consommation sur la contamination du milieu récepteur se posent ; et (ii) à l'aval en améliorant les traitements d'épuration par l'intégration du traitement tertiaire, par exemple.

## OBJECTIFS ET METHODOLOGIE

---

Dans ce contexte, l'objectif global de ce travail de thèse était d'étudier la dynamique des parabènes, du triclosan et du triclocarban dans le réseau d'assainissement de leur émission jusqu'au rejet au milieu récepteur.

Le **premier objectif** était de déterminer *l'origine de la contamination des eaux usées domestiques* par les parabènes, le triclosan et le triclocarban, et de vérifier si les produits cosmétiques en sont la source majoritaire.

Le **deuxième objectif** était de *suivre ces micropolluants dans le réseau d'assainissement et d'étudier leur dynamique lors de l'épuration* des eaux usées, en particulier par charbon actif dont l'utilisation émerge comme traitement tertiaire. Ce suivi doit nous permettre d'étudier *l'évolution temporelle des flux de parabènes* dans les eaux usées domestiques *suite aux changements de pratiques* de consommation évoqués au paragraphe précédent.

Le **dernier objectif** était d'évaluer la *contamination du milieu récepteur* et d'évaluer les flux par temps sec et par temps de pluie qui en sont responsables. Pour étudier plus finement la dynamique en rivière, des membranes polymérique ont été utilisées comme échantillonneur passif pour étudier la spéciation et le devenir du triclosan et du triclocarban entre l'amont et l'aval de l'agglomération parisienne.

Ce travail de thèse s'est basé sur des campagnes d'échantillonnage qui suivent le continuum *maison - réseau d'assainissement - milieu récepteur*. Nous nous sommes d'abord intéressés à l'origine des parabènes, triclosan et triclocarban dans les eaux grises afin d'identifier d'éventuels leviers de limitation à la source de transfert de ces contaminants vers les eaux usées et *in fine* vers le milieu récepteur en collaboration avec Steven Deshayes dans le cadre de sa thèse (Deshayes, 2015). Ensuite, la dynamique des substances dans le réseau d'assainissement par temps sec et temps de pluie a été étudiée avec pour objectifs : (i) d'évaluer la contamination des eaux usées brutes, miroir des pratiques de consommation, et à son évolution depuis 2010 (Geara-Matta, 2012) ; et (ii) d'étudier l'efficacité des différentes étapes des traitements en station d'épuration (pré-traitements, traitements primaire et secondaire, traitement tertiaire par charbon actif), la partie sur le traitement tertiaire a été réalisée en collaboration avec la thèse de Romain Mailler (2015). Un volet sur la qualité des déversements par temps de pluie a également été mené. Enfin, la contamination des eaux de surface par les triclosan, triclocarban et parabènes a été étudiée. Dans cette partie une méthode d'échantillonnage passif a été optimisée pour le triclosan et le triclocarban.

## PRINCIPAUX RESULTATS

### 1. Contamination des eaux grises

La contamination des eaux grises par les TCS, TCC et PB a été peu étudiée dans la littérature. Les rares études qui s'y sont intéressées ont pour point faible d'avoir échantillonné un mélange d'eaux grises. En effet, (Eriksson et al. 2009, Andersen et al. 2007, Eriksson et al. 2003) ont étudié un mélange d'eaux issu des lavabos et douches alors que (Leal et al. 2010, Palmquist and Hanaeus 2005) ont étudié l'ensemble des eaux grises en mélange (lave-linge, douche, lavabo, cuisine). Cette absence de discrimination des eaux grises ne permet donc pas d'identifier l'eau grise responsable de la contamination. Ainsi dans l'optique d'une réduction à la source de la contamination, le premier objectif de cette étude était d'identifier quelles étaient les types d'eau grise les plus contaminés par les TCS, TCC et PB. Grâce à un protocole d'échantillonnage original faisant appel à des volontaires, nous avons pu évaluer les niveaux de contamination des eaux grises (Tableau 1). Toutes les eaux grises sont contaminées par le TCS et les PB. Les eaux de lave-linge sont les plus contaminées par les PB et le TCS. En effet, les eaux de lave-linge présentent les concentrations médianes les plus fortes quel que soit le composé considéré (excepté le PrP) avec des concentrations pour les PB à chaîne courte et le TCS de l'ordre de quelques  $\mu\text{g.L}^{-1}$ . En revanche, les eaux de vaisselle manuelle apparaissent les moins contaminées avec des concentrations médianes en PB et TCS de l'ordre de quelques  $\text{ng.L}^{-1}$  à quelques centaines de  $\text{ng.L}^{-1}$ . Nous avons ainsi pu identifier trois contributeurs majeurs (en flux) à la contamination des eaux grises par les PB et TCS : les eaux de douche, lave-linge et lave-vaisselle.

**Tableau 1 : Concentrations dans les différents échantillons (médianes –d10 – d90) (tableau issu du projet Cosmet'eau incluant les résultats de la thèse de Sifax Zedek)**

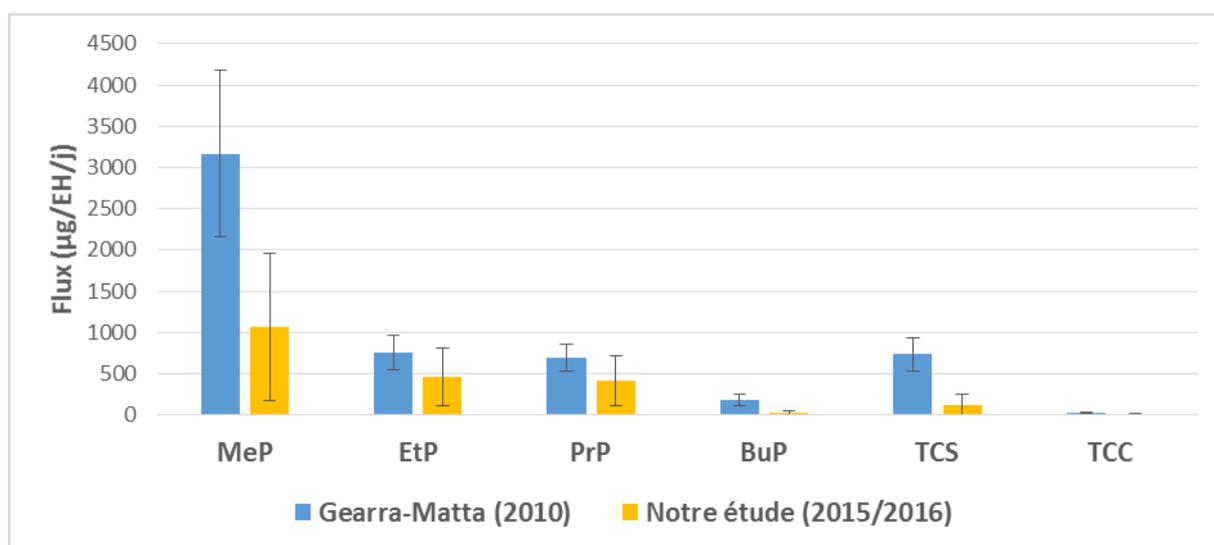
Médiane (d10 – d90)	MeP (ng/L)	EtP (ng/L)	PrP (ng/L)	TCS (ng/L)	TCC (ng/L)
Eaux grises (n=46)	1930 (160 - 1 950 000)	300 (29 - 40 000)	390 (3 - 65 000)	590 (40 - 4 300)	50 (12 - 1 200)
Émissaires (n=43)	2 800 (1 600 – 5 000)	1 200 (760 – 2 700)	1 000 (760 – 2 000)	101 (<LQ- 1 000)	41 (<LQ- 72)
RUTP (n=23)	1 000 (290 – 2 900)	280 (66 – 910)	285 (76 – 740)	47 (26 – 110)	33 (7,6 – 41)
Rejets EU (n=13)	38 (22 - 47)	14 (0,1 -53)	23 (5,3 – 70)	78 (41 – 110)	6,8 (4,7 <sup>10</sup> )
Seine amont Paris (n=8)	5,3 (4,3 – 9,3)	1,1 (1,0 – 1,8)	1,8 (1,3 – 2,6)	16 (9,2 – 50)	1,8 (1,1 – 2,0)
Seine aval Paris (n=8)	18 (7,0 – 132)	6,0 (2,7 – 36)	5,4 (2,4 – 41)	17 (5,5 – 58)	2,8 (2,3 – 3,8)

À la suite de ces premiers résultats, nous avons voulu identifier de manière précise quelle était l'origine de la contamination des eaux de lave-linge et douche. Plusieurs sources potentielles ont été étudiées : l'eau du robinet, la baignoire/le lave-linge, les produits utilisés et enfin les volontaires/vêtements. Pour cela un nouveau protocole a été développé. Il consistait à décomposer ces eaux en quatre échantillons distincts. Au regard des décompositions effectuées, le linge est apparu comme la source majoritaire de contamination des eaux de lave-linge par les PB avec des contributions allant de 79 % pour l'isoBuP à 98 % pour le MeP et le PrP. Dans le cas des eaux de douche, les volontaires et les produits apparaissent comme les principales sources de contamination en PB. Pour le TCS, les contributeurs majoritaires sont la baignoire (59 %) et le volontaire (29 %) alors que pour le TCC ce sont la baignoire (36 %) et les produits (61 %). L'étude exploratoire sur les eaux vannes a montré qu'elles sont contaminées par les TCS, TCC et PB à des concentrations plus faibles que dans les eaux grises, de quelques dizaines de  $\text{ng.L}^{-1}$  (EtP, PrP et TCC) à quelques centaines de  $\text{ng.L}^{-1}$  (MeP et TCS). Le flux de PB émis dans les eaux vannes est négligeable comparé à celui émis dans les eaux grises (< 4 %) tandis que le flux de TCS émis dans les eaux vannes représente près de 35 % du flux des eaux grises. Ces résultats permettent de

hiérarchiser les leviers sur lesquels jouer dans un objectif de réduction à la source des substances étudiées dans les eaux domestiques.

## 2. Contamination des eaux usées

L'étude de l'ensemble des émissaires de l'agglomération parisienne permet de conclure que les eaux usées sont toujours contaminées par les TCS, TCC et PB (Tableau 1). En effet, sur la base des concentrations moyennes, les flux journaliers moyens varient de 1064  $\mu\text{g.EH}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le MeP à 13  $\mu\text{g.EH}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le TCC. La comparaison des flux journaliers moyens émis en 2010 à ceux que nous avons obtenus en 2015/2016 (Figure 1) permet d'observer une diminution des flux émis vers le réseau d'assainissement d'un facteur compris entre 2 et 3 pour le MeP, l'EtP, le PrP et le TCC et d'un facteur 6-7 pour le BuP et le TCS. Les changements de formulation des produits cosmétiques expliquent en partie cette diminution. Par exemple, les PB sont désormais remplacés par d'autres conservateurs comme la méthylisothiazolinone, l'acide benzoïque, l'alcool benzylique, etc. Un impact des réglementations mises en place est également à prendre en compte. En effet, la réglementation n'a cessé de se durcir depuis 2014 que ce soit pour le TCS (règlement n° 358/2014 et Décision d'exécution (UE) 2016/110 de la commission du 27 janvier 2016) ou les PB (règlement n°1004/2014).



**Figure 1 : Comparaison des flux journaliers par équivalent-habitant dans l'ensemble des émissaires en 2010 (Gearra-Matta, 2012) et notre étude (2015/2016)**

Le suivi des concentrations en TCS et PB au niveau de chaque étape de traitement de la STEP Seine Centre nous a permis d'identifier au cours de quelle étape les contaminants sont le plus abattus. Dans le cas du TCS, c'est l'étape de traitement primaire (décantation physico-chimique lamellaire) qui contribue majoritairement à son abattement. Dans le cas des PB, c'est au cours du premier étage du traitement biologique (Biofor 1) que les PB sont abattus avec en sortie du Biofor 1 toutes les concentrations sous la LOQ ou très proches de cette dernière. La majorité des PB dissous est donc abattue au cours du traitement secondaire.

L'efficacité épuratoire des STEP Seine Centre et Seine Aval a été suivie au travers de plusieurs campagnes (7 pour la STEP SEC et 3 pour la STEP SAV). Les traitements appliqués dans les deux STEP permettent un abattement élevé des PB (> 95 % dans le cas des PB à chaîne courte). L'abattement du TCS est quant à lui plus faible avec selon l'hypothèse considérée, un abattement moyen sur SEC compris entre 54 et 75 %. Cependant, l'abattement n'étant pas total, les TCS, TCC et PB sont rejetés de manière continue dans l'environnement. En effet, dans les rejets des STEP Seine Centre et Seine Aval, le TCS et MeP sont observés dans respectivement 73 et 55 % des rejets

suivis avec une concentration moyenne de 138 ng.L<sup>-1</sup> (TCS) et 70 ng.L<sup>-1</sup> (MeP). Quant à l'EtP et au PrP, ils sont observés dans respectivement 27 et 45 % des rejets à des concentrations moyennes de 39 ng.L<sup>-1</sup> et 34 ng.L<sup>-1</sup>, respectivement. Le BuP n'a lui jamais été quantifié dans aucun échantillon de rejet de STEP.

Pour limiter les rejets de STEP dans le milieu récepteur, l'installation de traitement tertiaire est une solution possible permettant d'améliorer l'abattement des contaminants. Nous avons étudié un pilote de traitement tertiaire (Carboplus®) utilisant du charbon actif. Deux types de charbon ont été étudiés : en poudre et en micro-grain. Dans le cas du charbon actif en poudre, les PB ont été abattus à plus de 70 % tandis que le TCS présente des abattements plus faibles compris entre 18 et 29 %. Dans le cas du charbon actif micro-grain, des abattements plus faibles ont été observés pour les PB. Les MeP, EtP et TCS présentent des abattements modérés respectivement de 28-77 %, 20-85 % et 30-38 %. Le TCC s'est avéré mieux abattu par ce procédé avec des rendements épuratoires de 63 à 86 %.

Les rejets de STEP ne sont pas la seule source de contamination du milieu récepteur. Les rejets urbains par temps de pluie ou déversoir d'orage peuvent constituer une source importante de contamination pour le milieu récepteur lorsque les capacités des réseaux et des bassins de stockage sont dépassées. Au travers de l'étude que nous avons menée sur les déversoirs d'orage de Clichy, La Briche et Alma, nous avons mesuré des concentrations importantes en PB (jusqu'à quelques µg.L<sup>-1</sup>) et en TCS (jusqu'à quelques centaines de ng.L<sup>-1</sup>). À titre d'information, en 2014, le volume déversé par le déversoir d'orage de Clichy était de 6 733 700 m<sup>3</sup> et 4 646 700 m<sup>3</sup> pour le déversoir d'orage La Briche (SIAAP 2014). La combinaison des rejets de STEP et des déversoirs d'orage va pouvoir fortement impacter la qualité du milieu récepteur et dans notre cas la qualité de la Seine.

### 3. Contamination des eaux de surface

Ce travail sur la Seine était un travail exploratoire sur un nombre limité de points et de campagnes. Il visait à évaluer la contamination du milieu récepteur et l'impact des rejets urbains. Un deuxième objectif était de valider l'utilisation des membranes polymériques comme échantillonneur passif pour les TCS et TCC.

Nous avons montré que la Seine en aval de Paris est contaminée en parabènes à des concentrations de 18 ng.L<sup>-1</sup> (MeP), 6,0 ng.L<sup>-1</sup> (EtP) et 5,4 ng.L<sup>-1</sup> (PrP), en TCS (17 ng.L<sup>-1</sup>) et en TCC (2,8 ng.L<sup>-1</sup>). Ces concentrations augmentent entre l'amont et l'aval de Paris d'un facteur entre 1 et 6. Cette augmentation est liée (i) aux rejets de STEP dont les moyennes des concentrations sont 10 fois plus élevées que dans la Seine pour les parabènes, 2 fois plus élevées pour le TCS et 6 fois plus élevées pour le TCC ; et (ii) aux RUTP dont les concentrations moyennes comparées à celles dans la Seine sont plus de 100 fois plus élevées pour les parabènes, 6 fois plus élevées pour le TCS et 17 fois plus élevées pour le TCC. Une des perspectives de ce travail est d'évaluer les flux annuels de ces rejets de STEP et de RUTP afin de les comparer aux flux transitant en amont et en aval de Paris dans la Seine. Mieux connaître l'importance des différents flux peut permettre aux opérationnels de jouer sur les leviers d'action les plus adaptés.

En ce qui concerne les échantillonneurs passifs, la méthode développée dans le cadre du projet Cosmet'eau a été appliquée avec succès à la Seine pour mesurer la fraction « échantillonneur passif disponible » du TCS et du TCC. Cette fraction est comprise entre 7 % (TCC) et 12 % (TCS) en amont de Paris, et entre 22 % (TCC) et 35 % en aval de Paris. Ces données doivent être complétées par d'autres campagnes.

## CONCLUSION

---

En dépit de la toxicité des TCS, TCC et PB, et bien que la législation sur l'utilisation de ces composés se soit durcie récemment (règlements n°1004/2014 et n° 358/2014 de la Commission Européenne, Décision d'exécution (UE) 2016/110 de la commission du 27 janvier 2016), ils

demeurent autorisés dans l'Union Européenne dans de nombreux produits. De plus, ils ne font l'objet d'aucun suivi réglementaire dans l'environnement. Afin de fournir aux collectivités et pouvoirs publics des éléments leur permettant de déterminer à quels niveaux ils pourraient agir pour diminuer les rejets de TCS, TCC et PB dans l'environnement, cette thèse a étudié ces molécules des émissions domestiques jusqu'à la Seine.

Grâce à un protocole d'échantillonnage original faisant appel à des volontaires, nous avons pu identifier trois contributeurs majeurs à la contamination des eaux grises par les PB et TCS : les eaux de douche, lave-linge et lave-vaisselle. Les décompositions effectuées ont permis d'identifier le linge comme la source majoritaire de contamination des eaux de lave-linge par les. Dans le cas des eaux de douche, les volontaires et les produits apparaissent comme les principales sources de contamination en PB. Pour le TCS, les contributeurs majoritaires sont la baignoire (59 %) et le volontaire (29 %) alors que pour le TCC ce sont la baignoire (36 %) et les produits (61 %).

L'étude de l'ensemble des émissaires de l'agglomération parisienne confirme la contamination des eaux usées par les TCS, TCC et PB avec des flux journaliers moyens allant de  $1064 \mu\text{g.EH}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le MeP à  $13 \mu\text{g.EH}^{-1}.\text{j}^{-1}$  pour le TCC. La comparaison des flux journaliers moyens émis en 2010 (Geara-Matta, 2012) et ceux que nous avons obtenus en 2015/2016 montre une diminution des flux émis vers le réseau d'assainissement d'un facteur compris entre 2 et 3 pour le MeP, l'EtP, le PrP et le TCC et d'un facteur 6-7 pour le BuP et le TCS. Les changements de formulation des produits cosmétiques ainsi que l'apparition de nouvelles réglementations expliquent en partie cette diminution.

L'efficacité épuratoire des STEP de Seine Centre et Seine Aval a été comparée. Les traitements appliqués dans les deux STEP permettent un abattement élevé des PB (> 95 % dans le cas des PB à chaîne courte). L'abattement du TCS est quant à lui plus faible compris entre 54 et 75 %. Ces abattements contribuent aux rejets de TCS, TCC et PB dans le milieu récepteur. En effet, dans les rejets des STEP Seine Centre et Seine Aval, le TCS et MeP ont été mesurés à des concentrations moyennes de  $138 \text{ ng.L}^{-1}$  (TCS) et  $70 \text{ ng.L}^{-1}$  (MeP). Quant à l'EtP et au PrP, ils présentent des niveaux moyens de  $39 \text{ ng.L}^{-1}$  et  $34 \text{ ng.L}^{-1}$ , respectivement. Néanmoins la mise en place de traitement tertiaire tel que le pilote Carboplus® que nous avons étudié est une solution envisageable pour limiter le transfert des PB, TCS et TCC en Seine. En effet, dans le cas où Carboplus® fonctionnait avec du charbon actif en poudre, les PB étaient abattus à plus de 70 % par rapport à la qualité du rejet actuel, tandis que le TCS présentait des abattements compris entre 18 et 29 %. Dans le cas du charbon actif micro-grain, des abattements plus faibles ont été observés pour les PB : 28-77 % (MeP), 20-85 % (EtP) et le TCS (30-38 %). Le TCC est mieux abattu par ce procédé avec des rendements épuratoires de 63 à 86 %.

L'étude des rejets urbains par temps de pluie (déversoirs d'orage) a permis de confirmer qu'ils constituaient une source importante de contamination pour le milieu. L'étude que nous avons menée sur les déversoirs d'orage de Clichy, La Briche et Alma a mis en évidence des concentrations importantes en PB (jusqu'à quelques  $\mu\text{g.L}^{-1}$ ) et en TCS (jusqu'à quelques centaines de  $\text{ng.L}^{-1}$ ).

Ainsi la Seine est contaminée par les PB avec des concentrations entre  $13 \text{ ng.L}^{-1}$  (MeP) et  $2,2 \text{ ng.L}^{-1}$  (PrP), en TCS ( $41 \text{ ng.L}^{-1}$ ) et en TCC ( $2,6 \text{ ng.L}^{-1}$ ). Ces concentrations augmentent entre l'amont et l'aval de Paris d'un facteur environ 2. Cette augmentation est liée (i) aux rejets de STEP dont les moyennes des concentrations sont 10 fois plus élevées que dans la Seine pour les parabènes, 2 fois plus élevées pour le TCS et 6 fois plus élevées pour le TCC, et (ii) aux RUTP dont les concentrations moyennes comparées à celles dans la Seine sont plus de 100 fois plus élevées pour les parabènes, 6 fois plus élevées pour le TCS et 17 fois plus élevées pour le TCC.

Une perspective de ce travail est d'évaluer les flux annuels des rejets de STEP et de RUTP afin de les comparer aux flux transitant en amont et en aval de Paris dans la Seine. Mieux connaître l'importance des différents flux permettrait aux opérationnels de déterminer des leviers d'action adaptés. Enfin, effectuer un bilan des flux à l'échelle de l'agglomération en partant des eaux domestiques pour arriver au milieu récepteur est également une perspective de ce travail.

## REFERENCES

---

- Bedoux, G., Roig, B., Thomas, O., Dupont, V., Le Bot, B., 2012. Occurrence and toxicity of antimicrobial triclosan and by-products in the environment. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 19, 1044–1065. <https://doi.org/10.1007/s11356-011-0632-z>
- Botta, F., Alliot, F., Dulio, V., Lestremau, F., Chevreuil, M., 2014. Parabens in water and sediment: occurrence in river and lakes in different rural and urban environments. Presented at the 24. SETAC Europe annual meeting “Science across bridges, borders and boundaries,” Bâle, SUISSE.
- Brausch, J.M., Rand, G.M., 2011. A review of personal care products in the aquatic environment: Environmental concentrations and toxicity. *Chemosphere* 82, 1518–1532. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2010.11.018>
- Bressy, A., Carré, C., Caupos, É., de Gouvello, B., Deroubaix, J.-F., Deutsch, J.-C., Mailler, R., Marconi, A., Neveu, P., Paulic, L., Pichon, S., Rocher, V., Severin, I., Soyer, M., Moilleron, R., 2016. Cosmét’eau—Changes in the personal care product consumption practices: from whistle-blowers to impacts on aquatic environments. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 23, 13581–13584. <https://doi.org/10.1007/s11356-016-6794-y>
- Carey, D.E., McNamara, P.J., 2015. The impact of triclosan on the spread of antibiotic resistance in the environment. *Front. Microbiol.* 5. <https://doi.org/10.3389/fmicb.2014.00780>
- Darbre, P.D., Aljarrah, A., Miller, W.R., Coldham, N.G., Sauer, M.J., Pope, G.S., 2004. Concentrations of parabens in human breast tumours. *J. Appl. Toxicol.* 24, 5–13. <https://doi.org/10.1002/jat.958>
- DeLeo, P.C., Sedlak, R.I., 2014. Comment on “On the Need and Speed of Regulating Triclosan and Triclocarban in the United States.” *Environ. Sci. Technol.* 48, 11021–11022. <https://doi.org/10.1021/es503494j>
- Deshayes, S., 2015. Identification des sources de phtalates et d’alkylphénols (polluants émergents) en milieu urbain et compréhension des processus d’élimination. University of Paris-Est.
- Eriksson, E., Andersen, H.R., Madsen, T.S., Ledin, A., 2009. Greywater pollution variability and loadings. *Ecol. Eng.* 35, 661–669. <https://doi.org/10.1016/j.ecoleng.2008.10.015>
- Fernandez, X., Merck, Florence, Kerdudo, A., 2012. Conservateurs pour cosmétiques - Généralités et conservateurs antimicrobiens. *Tech. Ing.* 1–21.
- Ficheux, A.S., Wesolek, N., Chevillotte, G., Roudot, A.C., 2015. Consumption of cosmetic products by the French population. First part: Frequency data. *Food Chem. Toxicol.* 78, 159–169. <https://doi.org/10.1016/j.fct.2015.01.016>
- Gasperi, J., Geara, D., Lorgeoux, C., Bressy, A., Zedek, S., Rocher, V., El Samrani, A., Chebbo, G., Moilleron, R., 2014. First assessment of triclosan, triclocarban and paraben mass loads at a very large regional scale: Case of Paris conurbation (France). *Sci. Total Environ.* 493, 854–861. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2014.06.079>
- Geara-Matta, D., 2012. Flux et sources des parabènes, du triclosan et du triclocarban en milieux urbains denses : comparaison entre Paris et Beyrouth. Université Paris-Est, Champs-sur-Marne.
- Gomez, E., Pillon, A., Fenet, H., Rosain, D., Duchesne, M.J., Nicolas, J.C., Balaguer, P., Casellas, C., 2005. Estrogenic Activity of Cosmetic Components in Reporter Cell Lines: Parabens, UV Screens, and Musks. *J. Toxicol. Environ. Health A* 68, 239–251. <https://doi.org/10.1080/15287390590895054>
- Halden, R.U., 2014a. Response to Comment on “On the Need and Speed of Regulating Triclosan and Triclocarban in the United States.” *Environ. Sci. Technol.* <https://doi.org/10.1021/es5041333>
- Halden, R.U., 2014b. On the Need and Speed of Regulating Triclosan and Triclocarban in the United States. *Environ. Sci. Technol.* 48, 3603–3611. <https://doi.org/10.1021/es500495p>
- Haman, C., Dauchy, X., Rosin, C., Munoz, J.F., 2015. Occurrence, fate and behavior of parabens in aquatic environments: A review. *Water Res.* 68, 1–11. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2014.09.030>
- Mintel database, 2015. Global market research and market insight.
- SCCS, 2010. Opinion on triclosan Antimicrobial Resistance 56.
- Schwarzenbach, R.P., Escher, B.I., Fenner, K., Hofstetter, T.B., Johnson, C.A., von Gunten, U., Wehrli, B., 2006. The Challenge of Micropollutants in Aquatic Systems. *Science* 313, 1072. <https://doi.org/10.1126/science.1127291>
- Yamamoto, H., Tamura, I., Hirata, Y., Kato, J., Kagota, K., Katsuki, S., Yamamoto, A., Kagami, Y., Tatarazako, N., 2011. Aquatic toxicity and ecological risk assessment of seven parabens: Individual and additive approach. *Sci. Total Environ.* 410, 102–111. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2011.09.040>

## VALORISATION

---

### Publications

- Gasperi, J.; Geara-Matta, D.; Lorgeoux, C.; Bressy, A.; Zedek, S.; Rocher, V.; El Samrani, A.; Chebbo, G.; Moilleron, R., First assessment of triclosan, triclocarban and paraben mass loads at a very large regional scale: case of Paris conurbation (France), *Sci Total Environ*, 2014, 493, 854-861.
- Mailler, R.; Gasperi, J.; Coquet, Y.; Deshayes, S.; Zedek, S.; Cren-Olivé, C.; Cartiser, N.; Eudes, V.; Bressy, A.; Caupos, E.; Moilleron, R.; Chebbo, G.; Rocher, V., Study of a large scale powdered activated

carbon pilot: removals of a wide range of emerging and priority micropollutants from wastewater treatment plant effluents, *Water Research*, 2015, 72, 315-330.

- Mailler, R.; Gasperi, J.; Coquet, Y.; Buleté, A.; Vuilliet, E.; Deshayes, S.; Zedek, S.; Mirande-Bret, C.; Eudes, V.; Bressy, A.; Caupos, E.; Moilleron, R.; Chebbo, G.; Rocher V., Removal of a wide range of emerging pollutants from wastewater treatment plant discharges by micro-grain activated carbon in fluidized bed as tertiary treatment at large pilot scale, *Sci Total Environ*, 2016, 542, Part A, 983-996.
- Rocher V., Mailler R., Gasperi J., Coquet Y., Nauleau F., Rousselot O., Azimi S., Deshayes S., Zedek S., Eudes V., Bressy A., Caupos E., Moilleron R., Chebbo G., Elimination des polluants émergents dans les rejets de STEP. Partie 1 - Etude du procédé CarboPlus® à l'échelle du prototype. *Techniques Sciences et Méthodes*, 2016, 3, 12-26.

## Communications

- Removal of Emerging Micropollutants from WWTP Discharges: Is Activated Carbon Adsorption Suitable for Wastewater Application? Mailler R., Gasperi J., Coquet Y., Cren-Olivé, C., Cartiser, N., Zedek S., Deshayes S., Bressy A., Caupos E., Moilleron R., Chebbo G., Rocher V., *International Conference on Environmental Science and Technology*, (Houston, USA), juin 2014 (Orale).
- Loads of parabens, triclosan and triclocarban in greywater: are PCPs the main source of pollution?, S. Zedek, A. Bressy, S. Deshayes, V. Eudes, E. Caupos, R. Moilleron, *25th Annual Meeting SETAC Europe*, (Barcelone, Espagne), 3-7 May 2015 (Affiche).
- Removal of emerging micropollutants from wastewater discharges by powdered and micro-grain activated carbons - Case study of the CarboPlus® process, R. Mailler, J. Gasperi, Y. Coquet, S. Deshayes, S. Zedek, S. Buleté, E. Vuilliet, V. Eudes, A. Bressy, E. Caupos, R. Moilleron, G. Chebbo, V. Rocher, *25th Annual Meeting SETAC Europe*, (Barcelone, Espagne), 3-7 May 2015 (Orale).
- Parabens and triclosan: from greywater to surface water at the Paris conurbation scale, R. Moilleron, A. Bressy, J. Gasperi, D. Geara, C. Lorgeoux, V. Rocher, S. Zedek, S. Deshayes, V. Eudes, *9th IWA Specialist Conference on Assessment and Control of Micropollutants and Hazardous Substances in Water (Singapore)*, 22-25 November 2015 (Affiche)
- Triclosan, triclocarban and parabens in greywater: identification of their sources, S. Zedek, A. Bressy, S. Deshayes, V. Eudes, E. Caupos, R. Moilleron, *26th annual meeting of Society of Environmental Toxicology and Chemistry (SETAC) Europe* (Nantes, France), 22-26 May 2016 (Orale).
- River contamination by biocides: passive sampling development and application to Paris conurbation, B. Bonnaud, S. Zedek, E. Caupos, R. Moilleron, A. Bressy, *Energy and environment knowledge week (E2KW), Paris (France)*, 28-29 October 2016 (Orale)
- Development and calibration of polymeric membranes as passive sampler to evaluate the triclosan and triclocarban contamination of the Seine River. Bressy, A., Bonnaud, B., Caupos, E., Mazerolles, R., Zedek, S., Moilleron, R. (2017). *16<sup>th</sup> International Conference on Chemistry and the Environment*, 18 - 22 June 2017, Oslo, Norway. (Affiche)
- An overview of the parabens, triclosan and triclocarban contamination in the continuum greywater – surface water. Bressy, A., Zedek, S., Mazerolles, R., Caupos, E., Mailler, R., Neveu, P., Rocher, V., Moilleron, R. (2017). *16<sup>th</sup> International Conference on Chemistry and the Environment*, 18 - 22 June 2017, Oslo, Norway. (Affiche)
- Domestic micropollutants, a diffuse industrial pollution - Part 1 : from greywater to receiving water. Moilleron, R., Bergé, A., Deshayes, S., Zedek, S., Eudes, V., Bressy, A. (2017). *16<sup>th</sup> International Conference on Chemistry and the Environment*, 18 - 22 June 2017, Oslo, Norway. (Affiche)
- Les changements de pratiques, drivers de la contamination des eaux urbaines par les produits cosmétiques. Bressy, A., Bonnaud, B., Carre, C., Caupos, E., de Gouvello, B., Deroubaix, J.-F., Deutsch, J.-C., Marconi, A., Neveu, P., Paulic, L., Rocher, V., Severin, I., Soyer, M., Waldman, P., Zedek, S., Moilleron, R., (2016). *Colloque Aquaterritorial, Mulhouse*, 22-22 septembre 2016. (Affiche)

## CONTACTS

---

**Régis MOILLERON** : moilleron@u-pec.fr

**Adèle BRESSY** : adele.bressy@enpc.fr