POLYPUBLIE
Polytechnique Montréal

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL
UNIVERSITÉ D'INGÉNIERIE

Titre: Title:	Caractérisation des débordements d'égouts unitaires et évaluation de leurs impacts sur la qualité de l'eau au niveau des prises d'eau potable
Auteur: Author:	Anne-Sophie Madoux-Humery
Date:	2015
Type:	Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis
Référence: Citation:	Madoux-Humery, A.-S. (2015). Caractérisation des débordements d'égouts unitaires et évaluation de leurs impacts sur la qualité de l'eau au niveau des prises d'eau potable [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie. https://publications.polymtl.ca/2044/

Document en libre accès dans PolyPublie
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: PolyPublie URL:	https://publications.polymtl.ca/2044/
Directeurs de recherche: Advisors:	Michèle Prévost, & Sarah Dorner
Programme: Program:	Génie civil

Ce fichier a été téléchargé à partir de PolyPublie, le dépôt institutionnel de Polytechnique Montréal
This file has been downloaded from PolyPublie, the institutional repository of Polytechnique Montréal

https://publications.polymtl.ca

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

CARACTÉRISATION DES DÉBORDEMENTS D'ÉGOUTS UNITAIRES ET ÉVALUATION DE LEURS IMPACTS SUR LA QUALITÉ DE L'EAU AU NIVEAU DES PRISES D'EAU POTABLE

ANNE-SOPHIE MADOUX-HUMERY

DÉPARTEMENT DES GÉNIE CIVIL, GÉOLOGIQUE ET DES MINES

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION

DU DIPLÔME DE PHILOSOPIAE DOCTOR

(GÉNIE CIVIL)

NOVEMBRE 2015

© Anne-Sophie Madoux-Humery, 2015.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée :

CARACTÉRISATION DES DÉBORDEMENTS D'ÉGOUTS UNITAIRES ET ÉVALUATION DE LEURS IMPACTS SUR LA QUALITÉ DE L'EAU AU NIVEAU DES PRISES D'EAU POTABLE

présentée par : MADOUX-HUMERY Anne-Sophie

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de :

M. BARBEAU Benoit, Ph. D., président

Mme PRÉVOST Michèle, Ph. D., membre et directrice de recherche

Mme DORNER Sarah, Ph. D., membre et codirectrice de recherche

Mme DUCHESNE Sophie, Ph. D., membre

M. VANROLLEGHEM Peter, Ph. D., membre

DÉDICACE

À mes deux papas,

La force ne vient pas d'une capacité physique mais d'une volonté indomptable

M.K. Gandhi

REMERCIEMENTS

La rédaction d'une thèse se veut d'être rigoureuse et synthétique et les aspects scientifiques qui y sont présentés ne reflètent pas notre parcours personnel, notre évolution d'étudiant à jeune professionnel qui est souvent plus importante que la finalité. Cette section est très importante à mes yeux car ce projet n'aurait jamais pu aboutir sans la participation et l'influence d'un très grand nombre de personnes et je veux prendre le temps de les remercier.

Tout d'abord, j'aimerais remercier Dr Michèle Prévost, ma directrice de recherche, qui m'a accueilli au sein de son équipe, au départ pour un projet de fin d'études, puis pour une maitrise et finalement pour un doctorat. Ça a été un réel plaisir d'évoluer dans ton équipe; la confiance et le respect que tu octroies à chacun des membres en font une famille. Tu as su me guider dans cette aventure qu'est le doctorat et m'épauler lors des nombreux défis tant professionnels que personnels comme une mère l'aurait fait. Je te remercie sincèrement pour la confiance que tu m'as octroyée au cours de ces années. Tu m'as également permis d'élargir mes connaissances et mes horizons en m'associant à des contrats au cours desquels j'ai pu profiter de ton professionnalisme, de ton sens de l'éthique et de ton sens politique. Mille mercis pour ton enthousiasme, ton dynamisme, ta compréhension, ton désir de partager ton expertise et tes expériences. Je n'oublierai ni nos vendredi après-midis à évaluer des distances avec des petites règles sur ton écran d'ordinateur ni nos discussions Desigual !

Je tiens aussi à remercier ma codirectrice de recherche Dr Sarah Dorner qui m'a permis de voir les choses d'un autre œil. Beaucoup de gens te décrivent comme étant une personne avec une main de fer dans un gant de velours. J'ai, en effet, pu apprécier ton leadership, ton sens du détail, ton sens critique mais aussi ta disponibilité, ton écoute, ta compréhension et ta générosité. Merci de m'avoir fait confiance et de m'avoir soutenu tout au long de ce doctorat. Ton empathie et la confiance que tu octroies à tes étudiants leur permettent de transformer leurs faiblesses en forces. Merci également pour ces beaux moments passés en Nouvelle-Zélande !

Ce projet n'aurait jamais pu être réalisé sans les membres du personnel de la Chaire en Eau Potable et du Laboratoire de Génie de l'Environnement. Mille mercis à Yves Fontaine (mon nounours, le MacGyver des surverses) sans qui rien n'aurait été possible. Comme il le dit si bien, on a toujours besoin d'un homme pour réussir; il est donc l'homme de ce projet ! Merci Yves pour ton professionnalisme, ton ingéniosité, ton écoute, ton humour et ta bonne humeur en toutes

circonstances (sous la pluie, la neige, en pleine canicule, dans l'obscurité des égouts, dans les quartiers chauds de Laval … tu souris et tu chantes les Black Eyed Peas 'You gotta the feeling that tonight's gonna be a good night/ tonight the night night/go out and smah it'/it's overflow time). Par analogie, la femme de ce projet est Mélanie Rivard ! Merci Mél pour ton professionnalisme, ta créativité et ton organisation pour maximiser le rendement et la productivité au laboratoire, ta bonne humeur, ta disponibilité. Merci infiniment à vous deux d'avoir travaillé nuit et jour pour permettre à ce projet d'aboutir ! J'aimerais aussi remercier Mireille Blais pour sa bonne humeur et son écoute, Jacinthe Mailly et Julie Philibert, les piliers du laboratoire !, pour leurs nombreux conseils. Un immense merci à Denis Bouchard qui a toujours gardé le sourire en me voyant arriver avec mes dizaines d'échantillons, merci pour ta bonne humeur, ta compréhension et tes explications et enseignements en chimie. Un gros merci à Armelle Tisserand pour avoir participé aux échantillonnages pendant un long et orageux été. Je remercie aussi Shokoufeh Nour, Elise Deshommes, Romain Broséus, France Boisclair et Laura Razafinjanahary pour leur aide, leur gentillesse, leur générosité et leur support pendant toutes ces années. Un immense merci à Raymond Desjardins qui m'a permis de venir faire un échange universitaire à Poly, m'a donné des conseils pour m'intégrer et a toujours été là pour veiller au grain.

Je tiens aussi à remercier la contribution scientifique de mes collaborateurs et coauteurs. Je remercie tout particulièrement Dr Pierre Servais pour son intérêt 'microbiologique' exprimé envers mon projet, sa disponibilité pour l'analyse des données et la rédaction des articles, son sens critique, son sens du détail ainsi que son soutien lors des présentations au WQTC. Ça a été un honneur de discuter avec toi, de partager des repas et des apéros (même si j'étais très intimidée au début). Je te remercie pour ton soutien, tes appels skype, tes visites de Belgique, ton accueil lors de ma venue à Bruxelles. Je remercie également très chaleureusement Martine Galarneau pour son intérêt renouvelé tout au long du projet. Merci d'avoir partagé ton temps, ton expertise et ton enthousiasme. Merci également à Sylvain Houde pour toute l'aide, le soutien et l'expertise qu'il a partagé pour nous permettre d'installer nos équipements dans les égouts de la ville de Laval et d'échantillonner. Un immense merci à Dr Sébastien Sauvé pour avoir apporté une expertise 'chimique' à ce projet et m'avoir aidé à comprendre le comportement des pharmas dans les surverses et à Dr Khadija Aboulfadl pour avoir analysé ces centaines d'échantillons ! Un petit mot également pour remercier Julie Turcotte de son professionnalisme et de son dynamisme pour nous avoir aidés à régler les nombreux problèmes avec le matériel d'échantillonnage ainsi que Steve

McManus pour ses conseils lors des sessions internet sur Flowlink. Un gros merci à Étienne Bélanger pour ses conseils sur le matériel d'échantillonnage ! Un immense merci à Bernard Clément pour avoir passé du temps à donner un sens statistique à mes données !

Un énorme merci aux personnes avec qui j'ai partagé un bureau à Poly : Émilie (mon rayon de soleil, humble, généreuse et toujours positive) et quelque fois tes enfants ☺, Jean-Baptiste, Mathieu, Céline, Isabelle, Arash (cute and extravagant Iranian Canadian Australian man qui a toujours répondu oui aux apéros improvisés !). Je vous remercie sincèrement d'avoir accepté de partager votre espace de travail avec ma douzaine de paires de chaussures !

Je remercie également les différents étudiants que j'ai rencontrés et au contact desquels j'ai appris beaucoup de choses : Marie-Laure, Mohammed, Laurène, Laurent, Zakariae, Hossein, Hadis, Hugo, Amélie R., Natasha, Simon L. Simon V., Majdala, Cindy, Daniel.

Je tiens sincèrement à remercier ma famille, et particulièrement mes parents, car sans eux rien n'aurait été possible ! Vous avez toujours été là, m'avez toujours soutenue, réconfortée … même si parfois on ne voyait pas la lumière au bout du tunnel. Vous avez même passé la dernière semaine de rédaction chez moi, à me préparer de bons petits plats. Je vous remercie infiniment d'avoir accepté mon choix d'avoir immigré au Canada et de m'avoir suivi dans mon aventure doctorale. Un grand merci également à ma mamy qui m'a donné le goût des études dès mon plus jeune âge; à mon papa qui m'a transmis son esprit scientifique, qui est parti trop tôt mais qui je suis sûre est fier de moi; ma cousine Zabou, mes cousins (mon jumeau et ses frères)/petits-cousin(e)s (Maxime, Hugo, Louane…)/ma filleule Laly pour tous ces bons moments passés lors de mes passages en France (vous allez enfin pouvoir arrêter de me poser la question : mais quand est-ce que tu finis ?)

Merci à Pierre avec qui je suis venue vivre au Canada et qui m'a encouragée à poursuivre mes études afin de travailler dans un domaine qui me passionne.

Je tiens à écrire quelques mots pour mes amis avec qui j'ai partagé tant de bons moments et qui m'ont soutenue, épaulée dans les moments les plus difficiles. Sans vous, je n'y serai jamais arrivée ! Mille mercis à Amélie qui a toujours été là Sainte Binette ! et qui m'a fait rencontrer Viko !, Vanessa (minha querida) pour notre voyage/croisière au Brésil et nos nombreux amor à primeira vista, Evelyne (mon p'tit schtroumpf) pour tous ces fous rires au bureau et ces sessions shopping (et je n'écrirai rien de plus pour ne pas dévoiler tes secrets), Nico O. (le membre premier), Pascal (le doudou :-P) et Sandrine (mon kiwi !). C'est en pensant à toi que je me suis souvenue des paroles

de Walk on. Qui de mieux que Bono pour si bien résumer ce que vous représentez pour moi ? ‘And if the darkness is to keep us apart/And if the daylight feels like it's a long way off/And if your glass heart should crack/ Oh no, be strong/Walk on, walk on/What you got they can't steal it’. Des remerciements tout particuliers pour Félix et Clément, pour votre soutien indéfectible, votre compréhension, votre complicité, nos discussions/débats, nos apéros, nos soirées et festivals de musique.

Merci, merci à mes amis épicuriens Alicia, Jean-Yves, Éloise, Flo, Romain, Marcelo, Marcela, Laetitia M., Manue, Bénédicte, Nico F., Arnaud, Jérémy et Laetitia K. pour ces merveilleux moments au Canada, Belgique, France et Nouvelle-Zélande !

Une pensée toute particulière à mon entraineur Ghislain dont l’une des devises est Focus on where you want to go, not on what to fear, merci pour toute cette motivation et ces courbatures ainsi qu’à Laurent (le super ostéo) pour m’avoir littéralement remise sur pieds plusieurs fois.

Et je n’oublie pas ma super gang de zumba : Nancy, Caro, Véro, Sylvie, Hélène, Annie, Laurence, Marie Lou, Françoise, Geneviève, Caro, Marie! Merci pour toutes ces soirées à danser, se défouler, s’amuser ! Des câlins mouillés pour Viko, l’homme le plus généreux et le plus merveilleux du monde !

Je voudrais remercier Dr Benoit Barbeau pour avoir accepté de présider mon comité de thèse (et de choisir le restaurant ?) et aux Dr Sophie Duchesne, Dr Peter Vanrolleghem et Dr Robert Chapuis de participer à mon comité de thèse.

J’aimerais exprimer ma reconnaissance au CRSNG et aux partenaires de la chaire, soit la Ville de Montréal, Véolia et la Ville de Laval qui ont permis la réalisation de ces travaux.

RÉSUMÉ

Les eaux de surface, sources d'eau potable, sont fréquemment contaminées par des pollutions chimiques et microbiologiques. En milieu urbain dense, les contaminations en microorganismes pathogènes proviennent surtout des rejets d'eaux usées provenant d'émissaires de stations d'épuration, de raccordements croisés et de débordements d'égouts unitaires (DEU) ou sanitaires (DES) qui surviennent lorsque la capacité des réseaux d'égout et/ou des stations de récupération des ressources en eau (StaRRE) est dépassée. L'origine précise de ces contaminations mérite d'être déterminée afin de savoir si la pollution peut être réduite à la source pour protéger la qualité des sources d'eau potable et si l'usine de production de l'eau potable doit tenir compte de ces évènements pour définir et ajuster ses traitements. Malgré leur nature transitoire, les évènements de rejets d'eaux d'orage et de surverses peuvent constituer les conditions les plus critiques au niveau des sources d'eau potable et méritent d'être mieux caractérisés. Les rejets de surverse sont, en effet, connus pour avoir des impacts sur la qualité de l'eau du milieu récepteur en raison des contaminants microbiologiques, physico-chimiques et pharmaceutiques qu'ils contiennent. Ils ont également été identifiés comme ayant été une source de contamination de sources d'eau potable entrainant des épidémies.

L'objectif principal de ce projet de recherche est de caractériser les concentrations et les charges associées aux débordements d'égouts unitaires et d'évaluer le risque sanitaire sur des prises d'eau potables situées en aval de ces rejets. De manière plus détaillée, ce projet vise à (1) caractériser la variabilité intra-évènement des concentrations et des charges en *E. coli*, en matières en suspension (MES) et en produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) dans les eaux de débordements; (2) analyser la variabilité saisonnière des concentrations et des charges en *E. coli*, MES et PPSP dans les surverses; (3) identifier les sources des contaminants rejetés et estimer l'évolution de leur répartition sur les charges rejetées au cours des débordements et (4) évaluer l'impact des surverses sur la qualité microbiologique de l'eau au niveau des prises d'eau potable.

La première phase du projet de recherche était de caractériser la variabilité des concentrations et des charges en contaminants entre les évènements de surverse ainsi que d'identifier les sources des différents contaminants (*E. coli*, MES et PPSP) au niveau de deux trop-pleins OA et OB. Les concentrations en *E. coli* fluctuent d'environ 1 ordre de grandeur au cours des évènements. Les concentrations médianes mesurées dans OA et OB sont de $1{,}5\times10^{6}$ *E. coli*/100mL et

$5{,}1\times10^4$ *E. coli*/100mL respectivement. Les dynamiques des concentrations en *E. coli* sont directement liées à celles de la proportion des eaux de ruissellement ainsi qu'à l'heure à laquelle se déroule l'évènement, en raison des variations intrinsèques du contaminant. Les concentrations mesurées à la fin des évènements demeurent élevées avec une valeur moyenne de $6{,}1\pm4{,}6\times10^5$ *E. coli*/100mL et ce, malgré un facteur de dilution très élevé. *E. coli* provient majoritairement des eaux usées et dans une moindre mesure de la remise en suspension des dépôts. Les concentrations en MES suivent toujours la même tendance durant les évènements de surverse; elles sont significativement plus élevées au début des évènements qu'à la fin et leur augmentation initiale est liée à l'augmentation du débit. Les concentrations médianes mesurées dans les trop-pleins OA et OB sont de 136,0 mg MES/L et 167,0 mg MES/L respectivement. Les MES proviennent majoritairement des eaux usées et de la remise en suspension des dépôts. Les concentrations médianes sont de 4599,0 ng/L de caféine (CAF), 158,9 ng/L de carbamazépine (CBZ), 3659,0 ng/L d'acétaminophène (ACE) dans le trop-plein OA et de 300,8 ng CAF/L et 4,1 ng CBZ/L dans le trop-plein OB. Les PPSP ont démontré des tendances de variations très importantes, que ce soit durant les DEU ou entre les DEU et ces évolutions sont différentes entre les composés. Les concentrations en PPSP dépendent des dynamiques des concentrations dans les eaux usées et de la proportion d'eau de ruissellement. Les variations reflètent (1) des modes de consommation différents en fonction des composés, (2) des modes d'absorption par l'organisme ainsi que des modes d'excrétion différents en fonction des composés; soit majoritairement par les selles (CBZ), soit principalement par l'urine (CAF et ACE) et (3) la taille du bassin de drainage, qui influence le mélange et la dispersion des composés. Les PPSP proviennent majoritairement des eaux usées. La CBZ pourrait également provenir de la remise en suspension des dépôts. La CBZ nous apparait comme le composé ayant le plus de potentiel à être utilisé comme traceur d'eaux usées dans les DEU dans les réseaux d'assainissement puisqu'il s'agit du composé (1) le plus stable et le plus persistant parmi les composes étudiés et (2) le mieux corrélé avec *E. coli* et les MES en raison de son mode d'excrétion.

La seconde phase du projet était de caractériser la variabilité saisonnière des contaminants. Nos résultats démontrent que les concentrations et les charges en contaminants rejetées durant les DEU de la fonte des neiges sont au moins aussi élevées que celles des autres saisons avec des concentrations moyennes par DEU de 3.0×10^6 *E. coli*/100mL, 4170 ng CAF/L, 240 ng CBZ/L et 7050 ng ACE/L. Les concentrations maximales en MES ont été observées durant les DEU de fonte

des neiges De plus, aucune différence significative n'a été observée entre les charges en *E. coli*, MES et PPSP entre les différentes saisons. Les résultats obtenus lors de cette étude contredisent la croyance générale selon laquelle la dilution par les eaux de ruissellement est tellement importante durant la fonte des neiges que les concentrations rejetées doivent être faibles. Le nombre de DEU lors de la fonte des neiges est deux fois moins élevé que lors des autres périodes de l'année mais leur durée est deux fois et demie plus longue que celle des autres saisons. Ces évènements se concentrent également sur une période relativement courte (2 à 3 semaines) et peuvent avoir un impact majeur sur la qualité de l'eau du milieu récepteur. Or, l'hiver correspond à la période la plus critique pour le traitement des pathogènes à l'usine de filtration.

La troisième phase du projet avait pour but d'évaluer les impacts des DEU sur la qualité microbiologique de l'eau du milieu récepteur. L'analyse des données de qualité d'eau des prises d'eau potable de la période 2002-2011 a mis en évidence une bonne qualité microbiologique de l'eau pour les prises d'eau DWI-1 et DWI-2 avec des concentrations médianes en *E. coli* de 20 UFC/100mL et 30 UFC/100mL respectivement. Toutefois, des concentrations de pointe en *E. coli* atteignant 510 and 1 000 UFC/100mL ont été observées aux deux prises d'eau. Une analyse utilisant la Maîtrise Statistique des Procédés a permis d'identifier les pointes de concentration en *E. coli* au niveau des prises d'eau potable à partir d'une base de données d'une décennie. Environ 80% de ces évènements de pointe étaient reliés à des DEU causés par des précipitations de plus de 10 mm ou par la fonte des neiges. Le suivi par temps de pluie a montré que les concentrations en *E. coli* pendant ou après les DEU augmentent significativement (1) aux prises d'eau potable, suggérant que le suivi spécifique des DEU doit être effectué afin de permettre la détection de concentrations de pointe en *E. coli*; (2) à proximité des rives, ce qui confirme l'emplacement des conduites de débordement près des berges et (3) au centre de la rivière, ce qui démontre les effets cumulatifs des DEU le long de la rivière. De plus, nos résultats montrent que l'échantillonnage hebdomadaire des concentrations en *E. coli* au niveau des prises d'eau sous-estime manifestement les concentrations en *E. coli* qui arrivent à la prise d'eau pendant et/ou après les DEU, comme en témoignent les fortes augmentations observées lors de l'échantillonnage ciblé. Par conséquent, le suivi hebdomadaire requis par la réglementation ne devrait pas être utilisé pour quantifier le risque à la prise d'eau par temps de pluie en milieu densément urbanisé. D'autre part, un échantillonnage ponctuel en période de risque, tel que réalisé au cours de cette étude, ne permet d'évaluer la durée de période à risque de contamination. Or l'ampleur de la contamination et la durée de la période de

contamination déterminent le risque à la prise d'eau. Une contamination prolongée augmente le risque de percée d'une contamination de l'eau traitée si les barrières de traitement n'étaient pas suffisamment efficaces.

Ce projet a également permis de mettre en évidence que même si les PPSP ont un fort potentiel d'utilisation comme traceur de DEU dans les rivières, les limites de détection actuelles ne permettent pas encore leur utilisation dans une rivière ayant un potentiel de dilution aussi élevé que celle étudiée (environ 1000). Toutefois, l'utilisation de ces composés serait utile dans une rivière ayant un potentiel de dilution moindre et des sources multiples de rejets en *E. coli* pour identifier les sources de contamination fécale humaine. Les développements des méthodes analytiques permettront d'en diminuer les seuils de détection et d'en augmenter la sensibilité.

Finalement, l'ensemble des résultats obtenus dans le cadre de ce projet de recherche a permis d'établir des recommandations sur la gestion des DEU. Des pratiques de gestion efficaces afin de réduire les volumes de débordement doivent être mises en place puisque la capture du volume total n'est faisable ni techniquement ni financièrement. La mise en place de contrôle en temps réel pour gérer les flux dans les conduites est nécessaire afin de réduire au maximum les volumes rejetés. La mise au point de nouveaux dispositifs de contrôle en temps réel (RTC) des matières solides dans les conduites d'égout doit être effectuée afin de permettre une gestion efficace des dépôts. De plus, le lavage hebdomadaire des rues demeure l'un des meilleurs moyens à ce jour pour diminuer l'accumulation des dépôts dans les conduites. La fonte des neiges ayant été identifiée comme une période critique pour la protection des prises d'eau potable, la limitation de la fréquence et de la durée des débordements durant cette période devrait apparaitre dans la règlementation. La neige devrait également être retirée des rues et déposée dans des dépôts à neige où le contrôle et le traitement des eaux de fonte pourraient être réalisés. Des travaux de curetage des zones à faible écoulement dans les égouts devraient être réalisés afin de limiter les dépôts et donc leur remise en suspension lors des DEU.

ABSTRACT

Drinking water sources in dense urban areas are frequently contaminated by chemicals and microbiological pollutants. Water quality fluctuations must be considered at the water intake in order to identify critical periods for adjusting treatment. Variations of water quality at the intake can be explained and predicted by the identification and characterization of the sources of contamination. Untreated or partially treated sewage is a major source of microbial contaminants discharged by plant effluents, bypasses and sanitary or combined sewer overflows (SSOs or CSOs), when the hydraulic capacity of the collection system and/or the wastewater treatment plant (WWTP) is exceeded. Overflow discharges are indeed known to have impacts on the water quality of the receiving environment due to microbiological, and physico-chemical and pharmaceutical contaminants therein. They were also identified as a source of contamination of drinking water sources causing outbreaks.

The main objective of this research project is to characterize concentrations and loads associated with combined sewer overflows and to assess the health risk for drinking water intakes located downstream of these discharges. On a more detailed level, this project sought to: (1) characterize the intra-event variability of *E. coli*, total suspended solids (TSS) and wastewater micropollutants (WWMPs) concentrations and loads in overflows; (2) analyze the seasonal variability of *E. coli*, TSS and PPCPs concentrations and mass loadings in overflows; (3) identify source processes (wastewater, runoff and sewer deposit resuspension) of contaminants discharged and assess their relative contribution to CSO loadings during events and (4) assess the impact of CSO on the microbiological river water quality at drinking water intakes (DWIs).

Firstly, the research project was initiate to characterize the variability of contaminant (*E. coli*, TSS and WWMPs) concentrations and loads within and across CSO events and to identify sources of these contaminants. *E. coli* concentrations generally varied over 1 order of magnitude during each event and median concentrations were 1.5×10^6 *E. coli*/100 ml and 5.1×10^4 *E. coli*/100ml in outfalls OA and OB respectively. Dynamics of *E. coli* concentrations were directly related to runoff proportion as well as the time of the day of the onset of overflows because of the intrinsic variation of the contaminant. Final event concentrations remain high with a mean value of $6.1 \pm 4.6 \times$ 105 *E. coli* / 100 ml, despite a very high dilution factor. *E. coli* comes primarily from raw sewage and the resuspension of in-sewer deposits to a lesser extent. TSS fluctuations for all events showed

the same dynamics; i.e. significantly higher concentrations were measured during the initial period of stormflow when the flow rate increased. Median concentrations were 136.0 mg TSS/L and 167.0 mg TSS/L in outfalls OA and OB respectively. TSS come primarily from raw sewage and in-sewer deposit resuspension. WWMP median concentrations were 4599.0 ng/L of caffeine (CAF), 158.9 ng/L of carbamazepine (CBZ) and 3659.0 ng/L of acetaminophen (ACE) in outfall OA and 300.8 ng CAF/ L and 4.1 ng CBZ/L in outfall OB. WWMPs demonstrated large variation patterns either during CSO or among CSO and these trends were different among contaminants. WWMP concentrations in CSOs depend on raw sewage concentration dynamics and the level of dilution with stormwater. Patterns of raw sewage concentrations of WWMPs vary over the course of the day because of (1) different consumption patterns; (2) different absorption patterns and different excretion modes; namely the predominance of excretion through the feces (CBZ) or through urine (CAF and ACE) and (3) the scale of the sewershed that influences mixing and dispersion. WWMPs come primarily from raw sewage although CBZ may also come from in-sewer sediment resuspension. CBZ appears in this study as the WWMP having the highest potential to be used as a tracer of raw sewage in large conveyance systems as this compound was (1) the most stable and most persistent among investigated compounds and (2) the best correlated with *E. coli* and TSS because of its excretion mode.

Then, the second phase of the project was to characterize contaminants seasonal variability. Our results demonstrate that CSO contaminant concentrations and mass loadings discharged during the snowmelt period are at least as high as those of other seasons with mean concentrations of 3.0×10^{6} *E. coli*/100ml, 4170 ng CAF/L, 240 ng CBZ/L and 7050 ng ACE/L. Maximum TSS concentrations were also measured in CSO occurring during snowmelt. Moreover, no significant seasonal difference was observed between *E. coli*, TSS and WWMP mass loadings among snowmelt, summer and fall. The results obtained in this study contradict the common belief that CSO concentrations and mass loadings are likely to be diluted by stormwater during the snowmelt. CSO events occurring during the snowmelt period are two times less frequent than during other periods of the year but are 2.5 times longer. These events are also concentrated on a relatively short period (2-3 weeks) and can have a major impact on the quality of the receiving water. However, winter is the most critical period for treatment of pathogens at the filtration plant.

The third phase of the project was to assess the impacts of CSO on the microbiological river water quality. Long-term monitoring data (2002-2011) at DWIs revealed good microbiological water

quality with *E. coli* median concentrations of 20 and 30 CFU/100mL for DWI-1 and DWI-2 respectively. However, *E. coli* concentration peaks reached up to 510 and 1000 CFU/100mL for both DWIs respectively. Statistical Process Control (SPC) analysis allowed to statistically identify *E. coli* peaks of concentrations in almost a decade of routine monitoring data at DWIs and almost 80% of these concentrations were linked to CSO discharges caused by precipitation exceeding 10 mm or spring snowmelt. Wet-weather monitoring showed that *E. coli* concentrations during or following CSO discharges increase significantly (1) at DWIs, suggesting that specific CSO event based monitoring has to be performed to allow the detection of *E. coli* peak concentrations; (2) close to river banks, confirming the location of outfalls close to shores and (3) at river center, demonstrating the cumulative impacts of CSOs along the river. Our results also show that bi-monthly *E. coli* monitoring at DWIs clearly underestimates *E. coli* concentrations arriving at DWI during and/or after CSO events, as evidenced by the large increases observed during event based sampling. Therefore, bi-monthly compliance monitoring should not be used to quantify the risk at DWIs during wet weather. On the other hand, grab sampling as performed during this study, even if done frequently, does not provide a satisfactory estimation of the duration of peak events that may challenge the treatment barriers and potentially lead to breakthrough.

This project also highlighted that although WWMPs have a high potential to be used as a tracer of CSO discharges in rivers, current detection limits do not allow their use in a river with a potential of dilution as high as the river studied (about 1,000). However, the use of WWMPs would be useful in a river having a lesser potential dilution and multiple emission sources in *E. coli* to identify sources of human fecal contamination. The developments of analytical methods will diminish detection limits and increase the sensitivity.

Finally, all the results obtained in the framework of this research project evidenced recommendations for the management of CSOs. Efficient management practices to reduce CSO volumes must be implemented, as capturing the entire volume is generally not technically or financially feasible. The introduction of real-time control to manage flows in the pipes is needed to minimize the volumes released. More attention has to be dedicated to the development of new devices for real-time control of solids in sewer pipes in order to enable effective management of in-sewer deposits. In addition, weekly washing of streets remains one of the best ways to date to reduce the accumulation of deposits in the pipes. Snowmelt has been identified as a critical period for drinking water sources protection. Thus, the limitation of the frequency and duration of

overflows during this period should appear in the regulation. Snow should also be removed from streets and deposited in snow deposits where the control and treatment of meltwater could be achieved. Specific work curettage in areas of low flow in the sewer should be made to limit the deposits and therefore their resuspension during CSOs.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE III

REMERCIEMENTS IV

RÉSUMÉ VIII

ABSTRACT XII

TABLE DES MATIÈRES XVI

LISTE DES TABLEAUX XXII

LISTE DES FIGURES XXIV

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XXVIII

LISTE DES ANNEXES XXX

INTRODUCTION 1

CHAPITRE 1 REVUE CRITIQUE DE LA LITTÉRATURE 6

1.1 Généralités sur les débordements d'eaux usées 6

1.1.1 Types de surverses 6

1.1.2 Problématique des débordements d'eaux usées 8

1.1.3 Réglementation et programmes de suivi des débordements d'eaux usées 11

1.1.3.1 États-Unis 11

1.1.3.2 Europe 13

1.1.3.3 Canada 15

1.2 Caractérisation des débordements d'eaux usées 23

1.2.1 Facteurs régissant les dynamiques des concentrations 23

1.2.2 Compositions physico-chimique et chimique 23

1.2.3 Contaminants microbiologiques 31

1.2.4 Produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) 31

1.2.5 Variabilités temporelles 32
1.2.6 Dépôts présents dans les conduites d'égouts 33
1.2.7 Caractérisation et quantification du 'first flush' 37
1.2.7.1 'First flush' déterminé à partir des concentrations 37
1.2.7.2 'First flush' déterminé à partir des charges 39
1.3 Impacts des débordements d'eaux usées 42
1.3.1 Impacts des débordements d'eaux usées sur le milieu récepteur 43
1.3.2 Impacts sur la santé humaine 46
1.3.2.1 Généralités 46
1.3.2.2 Cas connus de contamination de prises d'eau potable 47
CHAPITRE 2 OBJECTIFS DE RECHERCHE ET PLAN EXPÉRIMENTAL 50
2.1 Objectifs 50
2.2 Hypothèses de recherche 51
2.3 Méthodologie 51
2.3.1 Zone d'étude 51
2.3.1.1 Réseaux d'égouts et StaRRE 51
2.3.1.2 Rivière et prises d'eau potable 54
2.3.1.3 Surverses 55
2.3.2 Caractérisation de la variabilité temporelle des surverses 55
2.3.2.1 Trop-pleins échantillonnés 55
2.3.2.2 Échantillonnage des surverses 56
2.3.2.3 Échantillonnage des eaux usées 57
2.3.3 Évaluation de l'impact des surverses sur la qualité de l'eau de la rivière 57
2.3.3.1 Points d'échantillonnage en rivière 57

2.3.3.2 Types d'échantillonnage en rivière 57

2.3.4 Méthodes analytiques 58

2.3.5 Conservation des échantillons 59

CHAPITRE 3 ARTICLE 1 – TEMPORAL VARIABILITY OF COMBINED SEWER OVERFLOW CONTAMINANTS: EVALUATION OF WASTEWATER MICROPOLLUTANTS AS TRACERS OF FECAL CONTAMINATION 62

3.1 Introduction 64

3.2 Materials and methods 66

3.2.1 Study site 66

3.2.2 Sample collection 67

3.2.2.1 Raw sewage 67

3.2.2.2 CSO sampling 68

3.2.3 Analytical methods 69

3.2.4 Calculations and statistical methods 70

3.3 Results and Discussion 70

3.3.1 Concentrations in sanitary sewers in dry weather conditions 70

3.3.2 CSO characterization 75

3.3.2.1 CSO hydrographs 75

3.3.2.2 Temporal variations of concentrations in CSOs 75

3.4 Evaluation of suitable chemical indicators of fecal contamination in CSOs 83

3.5 Conclusions 85

CHAPITRE 4 ARTICLE 2 – TEMPORAL ANALYSIS OF *E. COLI* , TSS AND WASTEWATER MICROPOLLUTANT LOADS FROM COMBINED SEWER OVERFLOWS: IMPLICATIONS FOR MANAGEMENT 87

4.1 Introduction 88

4.2 Materials and Methods 90
4.2.1 Study site 90
4.2.2 Sample collection 91
4.2.3 Analytical Methods 92
4.2.4 Calculations 92
4.2.4.1 Determination of flowrate 92
4.2.4.2 Loads and Event Mean Concentrations (EMCs) 93
4.2.4.3 Statistical methods 93
4.2.4.4 Source apportionment model 94
4.3 Results and Discussion 95
4.3.1 Temporal load variations in CSOs 95
4.3.1.1 Within event variations 95
4.3.1.2 Inter-event variations 98
4.3.2 Source contribution in CSOs 100
4.3.2.1 Identification of apportionment processes 100
4.3.2.2 Temporal variations of source contribution 102
4.3.3 Implications for CSO management 104
4.3.4 Conclusions 106
CHAPITRE 5 ARTICLE 3 – THE EFFECTS OF COMBINED SEWER OVERFLOW EVENTS ON RIVERINE SOURCES OF DRINKING WATER 108
5.1 Introduction 110
5.2 Materials and methods 112
5.2.1 Study area 112
5.2.2 Sampling program 113
5.2.3 Analytical methods 116

5.2.4 Calculations and statistical methods 116

5.3 Results 117

5.3.1 Long-term monitoring 117

5.3.2 Short-term monitoring 120

5.3.3 Bi-monthly monitoring 121

5.3.3.1 Dry weather conditions 121

5.3.3.2 Wet weather conditions 122

5.3.4 CSO event based monitoring 124

5.4 Discussion 126

5.4.1 Comparison of sampling strategies 126

5.4.2 Vulnerability of DWIs 128

5.5 Conclusions 129

CHAPITRE 6 DISCUSSION 131

6.1 Caractérisation de la variabilité intra-évènement des DEU et identification des sources des contaminants 132

6.1.1 E. coli 133

6.1.2 Matières en suspension (MES) 134

6.1.3 Produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) 135

6.1.4 Utilisation des PPSP comme traceur d'eaux usées 136

6.1.5 Choix d'un indicateur de suivi des DEU en rivière 137

6.2 Caractérisation de la variabilité saisonnière 138

6.3 Bilan sur les stratégies de contrôle des DEU 140

6.4 Impacts des DEU sur la qualité microbiologique du milieu récepteur 142

6.4.1 Mise en évidence des pointes de concentration aux prises d'eau 142

6.4.2 Évaluation générale de l'impact des DEU 143

6.4.3 Évaluation spécifique des impacts des DEU 143

CHAPITRE 7 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 146

BIBLIOGRAPHIE 151

ANNEXES 173

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1: Données sur les populations connectées à des réseaux d'assainissement combinés et sur les surverses de différents pays 9

Tableau 1.2: Système de pointage pour les points de débordement des égouts unitaires 17

Tableau 1.3: Conditions de délivrance des autorisations transitoires et temporaires de rejet.....18

Tableau 1.4: Concentrations des paramètres physico-chimiques dans les DEU.....25

Tableau 1.5: Concentrations des métaux dans les DEU.....26

Tableau 1.6: Concentrations des composés organiques dans les DEU 27

Tableau 1.7: Concentrations des paramètres microbiologiques dans les DEU.....28

Tableau 1.8: Concentrations en caféine (CAF), carbamazépine (CBZ) et acétaminophène (ACE) mesurées dans les affluents de StaRRE.....30

Tableau 1.9 : Impacts des contaminants présents dans les eaux de débordements sur le milieu récepteur - Adapté de Chambers et al. (1997); Lijklema et al. (1993); Suárez and Puertas (2005); USEPA (2004).....45

Tableau 2.1 : Objectifs spécifiques et hypothèses de recherche du projet 52

Tableau 2.2 : Approche expérimentale développée pour valider (ou invalider) les hypothèses de recherche ainsi que les articles associés 60

Table 3.1 : Duration, discharged volume, flowrate, precipitations, duration of antecedent dry period (ADP) and return period (RP) characterizing the sampled CSO events at outfalls O-A and O-B in fall (F), snowmelt period (SM) and summer (S) 77

Table 5.1 : Tiered sampling program 114

Table 5.2: Number of events when *E. coli* concentrations measured at DWIs (2002-2011) exceeded the UCL (127 *E. coli*/100mL at DWI-1 and 197 *E. coli*/100mL at DWI-2) during snowmelt (SM) period and rainy period (precipitation >10mm/24 hours).....119

Table 5.3: Median, mean and CV values of *E. coli* and CAF concentrations for short-term monitoring at sampling points – Dry weather conditions 121

Table 5.4: Duration, discharged volume, flowrate and *E. coli* event mean concentration (EMC) characterizing sampled CSO events at outfall OA 127

Table 5.5: Flux of *E. coli* (MPN/3h) transported by the river at DWI-1 in wet weather and released at OA for different studied CSO events 127

Table A1- 1 : Dilution factor 176

Table A1-2 : Microbiological parameters concentrations observed in CSOs (min-max values (median, mean or EMC)) 180

Table A1-3: Concentrations (in µg/L) of caffeine (CAF), carbamazepine (CBZ) and acetaminophen (ACE) measured in influents of wastewater treatment plants and reported in the literature (min-max, median or mean value) 182

Table A2-1 : Impact of EMC on each of the responses 193

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Représentation d'une conduite de débordement d'égout unitaire (DEU) – tiré d'USEPA (2004) 7

Figure 1.2 : Représentation d'une conduite de réseau pluvial – tiré d'USEPA (2004) 7

Figure 1.3 : Détermination graphique des First Flush Massiques (FFM) – tiré de Kayhanian and Stenstrom (2008) 41

Figure 2.1: Carte de la zone d'étude (A) et de la zone d'échantillonnage (B) 54

Figure 2.2: Fréquence de débordements (%) des TP situés en amont des prises d'eau potable (2009-2011).....55

Figure 3.1 : Box-plots of pollutant concentrations measured in sewersheds A and B (SA and SB) (in dry weather conditions (DW)) as well as in CSOs (OA and OB) in wet weather for different season (F: Fall; SM: Snowmelt; S Summer): A. *E. coli*; B. TSS; C. CBZ; D. CAF; E.ACE; F. THEO. Box plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to minimum and maximum values. The number of samples is indicated at the top of each box and ND corresponds to Non Detect samples 73

Figure 3.2 : Hourly flowrate (panels A and B) and concentrations in the influent of the WWTP: A. *E. coli* in Log scale; B. TSS and TOC; C. WWMPs (CAF, THEO, ACE and CBZ) 74

Figure 3.3 : Concentrations and dilution of pollutants and fluctuations of the flowrate during three overflow events in OA in fall (A1 event), snowmelt (A6 event) and summer (A9 event). (1) *E. coli* (first panel); (2) TSS and TOC (second panel); CAF, ACE and CBZ (third panel); dilution factor (fourth panel) 78

Figure 3.4 : Daily pattern of CSO concentrations for each event at OA (Fall in red, Snowmelt in green and Summer in blue). A. *E. coli*; B. TSS; C. CAF; D. CBZ. Median concentration of grab samples collected in SA in dry weather conditions is indicated by the black solid line 81

Figure 3.5: Percentage of CSO duration above detection limit (calculated as duration of the sampled CSO events that exceed the surface water detection limit of all sampled events ×100) in surface waters for *E. coli*, CAF, CBZ and ACE given a potential dilution factor. Grey lines

correspond to a dilution factor calculated for the summer (S), the fall (F) and the snowmelt (SM) 84

Figure 4.1: Maps of (A) the study area and (B) the sampling area 91

Figure 4.2: (A) Fluctuations of the flowrate and the dilution factor during an overflow event occurring in fall (event 7). Variations of estimated mass fluxes as a function of the flowrate during the flowrate rising limb (grey diamond) (from t=0 to t=108 minutes) and falling limb (empty square) (from t=109 to t=200 minutes), (B) *E. coli* (due to analytical difficulties, *E. coli* loads are only represented for some samples for the falling phase), (C) TSS, (D) CBZ, (E) CAF, (F) ACE. The proportion of stormwater, i.e dilution factor, during CSO events was calculated using CBZ as a reference tracer as detailed elsewhere (Madoux-Humery et al., 2013).....97

Figure 4.3: Box-plots of contaminant loads measured in CSOs for different seasons (SM: Snowmelt (n=713); S: Summer (n=657); F: Fall (n=1022 but $n_{E.\ coli}$=875). (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF, (D) CBZ, (E) THEO, (F) ACE 99

Figure 4.4: EMCs of contaminants measured in CSOs (black squares), daily mean concentrations in the influent (circles) and in the effluent (gray diamonds – empty gray diamonds are *E. coli* daily mean concentrations without UV disinfection) of the WWTP versus the mean flowrate in Log-Log plots. (A) *E. coli*, (B) CAF, (C) TSS, (D) CBZ, (E) ACE, (F) THEO. Asterisks denoted significant regression (* for p<0.1 and ** for p<0.05). Black crosses represented the samples published by Phillips et al. (2012).....101

Figure 4.5: Contributions (%) of wastewater (dark grey) and the mix of runoff and in-sewer deposits (light grey) to CSO contaminant loads as a function of the cumulative fraction of volume discharged. (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF, (D) CBZ, (E) ACE, (F) THEO 103

Figure 5.1: Maps of (A) the study area and (B) the sampling area 112

Figure 5.2: Quality control chart of long-term *E. coli* monitoring at DWI-1 (A) and DWI-2 (B) from 2002 to 2011. Observations in blue were identified by the SPC analysis as common data and points in red are above the UCL.....118

Figure 5.3 : Box-plot of *E. coli* concentrations (in log scale) measured at DWI-1 (in white) and at DWI-2 (in grey): A. in dry weather (DW) and in wet weather (WW) conditions; B. in the

snowmelt period (SM) (data from November 15th to April 15th), in dry weather (DW) conditions and during precipitations (P). Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5 120

Figure 5.4: Box-plots of *E. coli* concentrations (in log scale) during dry weather (white) and wet weather (dark grey). A. Longitudinal profiles in the river center at B1-C, DWI-1, B2-C, B3-C and DWI-2. B. Transversal profiles at bridges B2 (B2-L, B2-C, B2-R) and B3 (B3-L, B3-C, B3-R). Asterisks * denote significant difference (p<0.05) and ** highly significant difference (p<0.01) between dry and wet weather conditions (Non parametric statistical analysis performed on non log-transformed data). Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5 123

Figure 5.5: Box-plots of *E. coli* concentrations (in log scale) at bridges B2 (B2-L, B2-C, B2-R) (left panel) and B3 (B3-L, B3-C, B3-R) (right panel) during wet weather (dark grey boxes). *E. coli* concentrations measured during specific CSO event-based monitoring: CSO#1 (orange square), CSO#2 (blue triangle), CSO#3 (yellow circle), CSO#4 (red diamond) and CSO#5 (green cross). Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5 125

Figure 6.1: Schéma résumant le projet de recherche 132

Figure A1-1: Variations of flow rate (black line) and precipitations (grey series) over time in various seasons: A. OA event in fall, A2; B. OA event in snowmelt period, A5; C. OA event in summer, A7; D. OB event in summer, B1. 179

Figure A1-2 : Map of the study area 184

Figure A1-3 : Monthly frequency of CSO events expressed as the ratio of all monthly events versus all events (2007-2011) (CSO frequency data were provided by the Ministry of Municipal Affairs, Regions and Land Occupancy) 185

Figure A1-4 : Schematic representation of the overflow A (OA): A. profile view; B. plan view 186

Figure A1-5 : Schematic representation of the overflow B (OB) (profile view) 187

Figure A2-1 : Responses vs EMC at the mean of Log Flow.....189

Figure A2-2 : Concentrations of pollutants and fluctuations of the flowrate during an overflow event in snowmelt (#1). (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF, CBZ and ACE. 190

Figure A2-3: Cumulative percentage of load discharged versus cumulative fraction of discharged volume. (A) E. coli, (B) TSS (C) CAF, (D) CBZ, (E) ACE, (F) THEO.....191

Figure A2-4 : Box-plots of pollutant loads measured in CSOs for different events. (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF; (D): CBZ; (E) THEO, (F) ACE. The number of interpolated values (n) is indicated in box A 192

Figure A3-1 : River monthly flowrate data from 2002 to 2011. Box-plots show the 25th and the 75th percentile (box), median values (squares in the box), outliers (circles) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. 195

Figure A3-2 : Box plots of *E. coli* concentrations (in log scale) measured at DWI-1 (in white) and DWI-2 (in grey) during different seasons (W: winter, SM: snowmelt, S: summer and F: fall) 196

Figure A3-3: Box-plots of CAF concentrations during dry weather (white) and wet weather (dark grey). A. Longitudinal profiles in the river center at B1-C, DWI-1, B2-C, B3-C and DWI-2. B. Transversal profiles at bridges B2 (B2-L, B2-C, B2-R) and B3 (B3-L, B3-C, B3-R)....197

Figure A3- 4 : *E. coli* and CAF concentrations measured during the bi-monthly monitoring in the river, in wet-weather 198

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

ACE	Acetaminophen/Acétaminophène
BFI	Bactéries fécales indicatrices
CAF	Caffeine/Caféine
CBZ	Carbamazepine/Carbamazépine
CCME	Conseil Canadien des Ministres de l'Environnement
CF	Coliformes fécaux
CME	Concentrations moyenne par évènement
CMPE	Concentration moyenne partielle par évènement
COV	Composés organiques volatiles
CSO	Combined Sewer Overflow
CT	Coliformes totaux
DBO	Demande biochimique en oxygène
DCO	Demande chimique en oxygène
DES	Débordement d'égout sanitaire
DEU	Débordement d'égout unitaire
DWI	Drinking water intake
EUTP	Égout unitaire par temps de pluie
EMC	Event mean concentration
FIB	Fecal indicator bacteria
HA	Hydrocarbure aliphatique
HAP	Hydrocarbures aromatiques polycycliques
MAMROT	Ministère des Affaires Municipales et de l'Occupation du Territoire
MDDELCC	Ministère du Développement Durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les Changements Climatiques
MDDEP	Ministère du Développement Durable, de l'Environnement et des Parcs
MES	Matières en suspension
MFFR	Mass First Flush Ratio
MP	Micropolluants

MPN	Most Probable Number
MSP	Maîtrise Statistique des Procédés
MVES	Matières volatiles en suspension
$N\text{-}NH_4^+$	Azote ammoniacal
NPDES	National Pollutant Discharge Elimination System
Nt	Azote total
NTK	Azote Kjeldhal
OER	Objectifs environnementaux de rejets
OPQE	Objectifs provinciaux de qualité de l'eau
PEMC	Partial Event Mean Concentration
Pt	Phosphore total
PWQO	Provincial Water Quality Objectives
PPSP	Produits pharmaceutiques et de soins personnels
RESAEU	Règlement sur les effluents des systèmes d'assainissement des eaux usées
RFFM	Ratio des 'first flush' massique
RUTP	Rejets urbains par temps de pluie
SD	Sewer deposit
SOMAE	Suivi des ouvrages municipaux d'assainissement des eaux
SPC	Statistical Process Control
StaRRE	Station de récupération des ressources de l'eau
THEO	Theophylline/Théophylline
TP	Trop-plein
TSS	Total suspended solids
US EPA	United States Environmental Protection Agency
VSS	Volatile Suspended Solids
WWMP	Wastewater Micropollutant
WWTP	Wastewater Treatment Plant

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE 1 – SUPPLEMENTARY MATERIAL OF PUBLICATION #1.....173

ANNEXE 2 - SUPPLEMENTARY MATERIAL OF PUBLICATION #2 188

ANNEXE 3 - SUPPLEMENTARY MATERIAL OF PUBLICATION #3 194

INTRODUCTION

Mise en contexte

L'intégrité de la chaine de traitement de l'eau potable est essentielle à la production d'eau potable saine. En ce sens, les Plans de Protection de l'Eau ou Water Safety Plans sont reconnus comme étant l'approche la plus efficace permettant la production et la distribution en continu d'eau potable minimisant les risques de santé publique (WHO, 2011). Ces plans visent à contrôler la qualité de l'eau potable en réduisant les risques de contaminations microbiologique et chimique ainsi que de défaillance à chacune des étapes de la filière de production d'eau potable et ce, de la source d'eau au robinet du consommateur. Cette approche multi-barrières (source, traitement, réseau) est donc basée sur le principe que, si une barrière fait défaut, les autres demeurent efficaces, permettant ainsi de continuer à garantir une eau saine aux consommateurs. La protection des sources d'eau de surface et souterraine destinées à l'alimentation en eau potable est la première étape de cette approche multi-barrières. Cette barrière essentielle a pour objectif de limiter les risques de contaminations de l'eau brute par des contaminants anthropiques rendant le traitement de l'eau potable plus complexe, voire inefficace. De plus, une amélioration de la qualité de l'eau brute permet de garantir la pérennité des installations de traitement déjà en place.

Les eaux de surface sont des sources d'approvisionnement en eau potable généralement moins bien protégées naturellement que les eaux souterraines. Cette ressource est, en effet, vulnérable aux éléments naturels ainsi qu'aux pollutions anthropiques de sources urbaine, industrielle et agricole. La fluctuation de la qualité microbiologique des eaux de surface en fonction de la pluviométrie a été documentée. En effet, des épisodes de contamination fécale d'eau de rivière par des indicateurs fécaux (e.g. coliformes fécaux, *E. coli*) et des pathogènes (*Cryptosporidium*, *Giardia* et *Campylobacter*) ont été reportés pendant et après des évènements pluvieux (Atherholt et al., 1998; Kistemann et al., 2002; Signor et al., 2005). Des éclosions de maladies d'origine hydrique ont été reliées à des épisodes de détérioration de la qualité microbiologique de l'eau par temps de pluie (Curriero et al., 2001; Nichols et al., 2009; Rose et al., 2000) et à des disfonctionnements du traitement de l'usine de production d'eau potable combinés à ces mêmes conditions (Auld et al., 2004; Jagai et al., 2015; Mac Kenzie et al., 1994; O'Neil et al., 1985).

En milieu urbain, les eaux de surface sont fréquemment contaminées par des pollutions microbiologiques et chimiques. Ce problème s'intensifie d'ailleurs avec l'accroissement de la densité des populations humaines, le développement des industries et la vétusté des infrastructures (Environment Canada, 2001a). Les principales sources de contamination fécale sont : (1) les rejets d'eaux usées traitées ou non traitées par l'intermédiaire des émissaires de stations de récupération des ressources de l'eau (StaRRE) ainsi que des émissaires de débordements d'égouts unitaires (DEU) (aussi appelés surverses) ou des réseaux d'égouts pluviaux (appelés raccordements croisés) et (2) le ruissellement urbain et les rejets d'eaux pluviales par l'intermédiaire d'émissaires d'égouts pluviaux. Les débordements d'eaux usées par l'intermédiaire des conduites de surverse et les rejets d'eaux pluviales par l'intermédiaire d'émissaires d'égouts pluviaux sont des rejets sporadiques qui n'ont lieu que lors d'épisodes de pluie ou de fonte des neiges.

En dépit de leur caractère sporadique, les rejets urbains par temps de pluie peuvent entrainer des effets immédiats ainsi que différés et de nature chronique sur le milieu récepteur en raison de la répétition des phénomènes (Parent-Raoult & Boisson, 2007). Les différentes études, menées depuis les années 1960, ont permis d'évaluer l'origine et les ordres de grandeur des concentrations et des flux de certains types de polluants présents dans les rejets urbains par temps de pluie (House et al., 1993; Lee & Bang, 2000; Parent-Raoult & Boisson, 2007) en se concentrant sur la caractérisation des paramètres tels que la DBO_5, la DCO, les MES, les nutriments et les métaux (House et al., 1993; Lee & Bang, 2000; Makepeace et al., 1995). Plus récemment, des études sur les polluants prioritaires tels que les pesticides, les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et les composés organiques volatiles (COV) ont également été menées (Becouze-Lareure, 2010; Gasperi et al., 2008; Gasperi et al., 2011; Gasperi et al., 2012b). L'ensemble des études a démontré qu'il était très difficile voire même impossible de caractériser un rejet-type, en termes de concentrations ou de masses, chaque rejet dépendant du type de réseau, de l'origine des eaux et de l'utilisation du territoire (Chambers et al., 1997; House et al., 1993; Lijklema et al., 1993). La pollution des rejets urbains par temps de pluie a été évaluée comme étant, en général, beaucoup plus importante dans les réseaux unitaires (collection des eaux usées et pluviales combinées) que dans les réseaux séparatifs (réseau pluvial indépendant du réseau de collection des eaux usées) en termes de paramètres physico-chimiques et microbiologiques. Par exemple, les charges annuelles en MES et en DBO_5 rejetées par des égouts combinés ont été évaluées comme étant respectivement 1,5 et 2 fois plus élevées que celles des égouts pluviaux (Bachoc, 1992; Saget, 1994). De plus, les

concentrations en coliformes fécaux et totaux dans les débordements d'égouts unitaires (DEU) ont été évaluées comme étant respectivement d'un à 1,5 ordres de grandeur supérieures à celles mesurées dans les rejets pluviaux (Geldreich, 1996). La comparaison de différentes études permet également de conclure que les concentrations en *E. coli* dans les DEU sont plus élevées d'approximativement 2 ordres de grandeur que celles des rejets pluviaux (Marsalek & Rochfort, 2004; McCarthy, 2008; Olivieri et al., 2007; Passerat et al., 2011). Les eaux de débordement sont également des sources significatives de parasites, notamment *Cryptosporidium* et *Giardia* (Arnone & Walling, 2006; Gibson III et al., 1998; USEPA, 2004).

Malgré le caractère sporadique des surverses, la pollution microbiologique observée dans les DEU peut devenir la source principale de concentrations de pointe en pathogènes dans le milieu récepteur au niveau de prises d'eau potable en milieu urbain lorsque les traitements mis en place aux StaRRE sont adéquats pour l'abattement de la contamination microbiologique. Les maladies infectieuses causées par les bactéries pathogènes, les virus et les parasites sont le risque sanitaire le plus important et le plus répandu qui est transmis par l'intermédiaire de l'eau potable (WHO, 2011). Les paramètres microbiologiques sont donc à considérer en priorité dans le domaine de la protection des sources d'eau potable. Les exigences de traitement des usines de filtration en Amérique du Nord sont d'ailleurs déterminées à partir des concentrations moyennes de paramètres microbiologiques à l'eau brute tels que *Cryptosporidium* (USEPA, 2010) ou *E. coli* (MDDEP, 2005).

Cette thèse s'intéresse d'abord à l'évaluation de la contribution de la contamination microbiologique rejetée par les DEU au niveau des prises d'eau. Toutefois, l'utilisation d'indicateurs de contamination fécale comme *E. coli* ne permet pas de préciser la source de la contamination fécale et ces indicateurs sont influencés par les conditions environnementales qui déterminent leur devenir (mortalité, survie et croissance). Pour répondre à cette préoccupation, les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse contribuent également à l'évaluation du potentiel d'indicateurs chimiques pour confirmer la source humaine d'une contamination fécale. En effet, des études récentes ont mis en évidence le potentiel de molécules issues des produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) et un intérêt grandissant pour les PPSP a été observé depuis le début des années 2000 en raison du développement des techniques analytiques permettant leur quantification. Environ 4 000 composés pharmaceutiques pour les humains et à usage vétérinaire sont hydrosolubles (Beausse, 2004). Le comportement de chaque molécule est

unique en raison de ses caractéristiques intrinsèques de biodégradation, de photo-dégradation et d'adsorption sur les sédiments dans le milieu récepteur. Les PPSP peuvent nous renseigner sur (1) la contamination fécale humaine récente avec l'analyse de composés rapidement dégradables tels que l'acétaminophène (ACE) (Guérineau et al., 2014), (2) la contamination plus ancienne à l'aide de composés persistants comme la carbamazépine (CBZ) (Gasser et al., 2011; Kuroda et al., 2009) et (3) la contribution des DEU par rapport à celle des StaRRE en utilisant des composés facilement dégradés dans les StaRRE tels que la caféine (CAF) (Monteiro & Boxall, 2010). La caféine est le composé qui a été le plus étudié en tant que traceur potentiel des eaux usées (Buerge et al., 2003; Glassmeyer et al., 2005; Sauvé et al., 2012). Son utilisation comme marqueur quantitatif de la contamination des eaux de surface par des rejets eaux usées provenant de StaRRE et de DEU a été jugée pertinente dans les lacs, et particulièrement dans les rivières (Buerge et al., 2006). Des corrélations ont également été faites entre la caféine et les coliformes fécaux (Peeler et al., 2006; Wu et al., 2008).

Il nous apparait évident qu'une étude détaillée de la caractérisation des débordements d'égouts unitaires est nécessaire ainsi que l'évaluation de leurs impacts sur le milieu récepteur, en particulier les prises d'eau potable, à l'aide d'indicateurs microbiologiques et chimiques.

Structure de la thèse

Cette thèse est divisée en 5 chapitres. Une revue de littérature présente, tout d'abord, au chapitre 1 les différents aspects réglementaires reliés aux DEU ainsi qu'un bilan de la caractérisation des polluants rejetés et de leurs impacts sur le milieu récepteur et plus particulièrement sur les prises d'eau potable. Les objectifs du projet sont ensuite dressés au chapitre 2 ainsi que les hypothèses de recherche et la méthodologie. Les résultats sont décrits sous forme d'articles scientifiques aux chapitres 3, 4 et 5. La variabilité temporelle des concentrations en *E. coli* et PPSP est analysée au cours de plusieurs surverses afin d'évaluer le potentiel des PPSP comme traceurs de contamination fécale au niveau des prises d'eau potable (Chapitre 3) (article publié dans Water Research). Les sources des contaminants rejetés sont identifiées au chapitre 4. L'évolution de leur répartition au cours des DEU est également estimée pour évaluer leurs impacts sur les stratégies potentielles de traitement des eaux de débordement (article publié dans Environmental Science : Processes and Impacts). Les impacts de surverses sur la qualité microbiologique du milieu récepteur sont ensuite

étudiés au chapitre 5. Une évaluation des protocoles routiniers de suivi microbiologique à estimer les pointes de concentration en *E. coli* au niveau des prises d'eau potable est également réalisée (article publié dans Water Research). Finalement, une discussion générale est présentée (Chapitre 6) et est suivie des conclusions et recommandations (Chapitre 7).

CHAPITRE 1 REVUE CRITIQUE DE LA LITTÉRATURE

La première partie de cette revue de littérature présente la problématique récurrente des débordements d'eaux usées ainsi que des exemples de programmes mis en place pour caractériser et diminuer les rejets. Une synthèse des concentrations analysées dans des surverses et des charges rejetées est ensuite présentée. Enfin, nous nous intéresserons aux impacts des surverses et à la prédiction des concentrations rejetées dans le milieu récepteur par le suivi d'indicateurs microbiologiques, physico-chimiques et chimiques.

1.1 Généralités sur les débordements d'eaux usées

1.1.1 Types de surverses

Dans l'ensemble des pays développés et principalement dans les villes importantes, la majorité des systèmes d'égouts existants sont des systèmes unitaires (ou combinés) (Fletcher & Deletic, 2008; USEPA, 2004; Veenstra et al., 1997) leur implantation coûtant moins cher que les réseaux séparatifs. Ces réseaux interceptent les eaux usées d'origines domestique, commerciale et/ou industrielle ainsi que les eaux de ruissellement durant les pluies (Marsalek & Chocat, 2002). Les intercepteurs acheminent l'ensemble de ces eaux usées à la station de traitement des eaux usées (StaRRE) pour qu'elles puissent y être traitées avant d'être envoyées dans le milieu récepteur (USEPA, 2004).

Le dimensionnement des réseaux unitaires ne prend pas en compte les débits maximaux d'origine domestique car ils sont beaucoup moins importants que les débits pluviaux maximaux (Brière, 2006). Lorsque la capacité du réseau de collecte et/ou de la StaRRE est atteinte par temps de pluie (épisodes de pluie ou de fonte des neiges), le mélange d'eaux usées sanitaires et de ruissellement est rejeté dans le milieu récepteur, sans traitement préalable, par l'intermédiaire de trop-pleins du réseau d'égouts (Figure 1.1). On parle ici de débordements d'égouts unitaires (DEU).

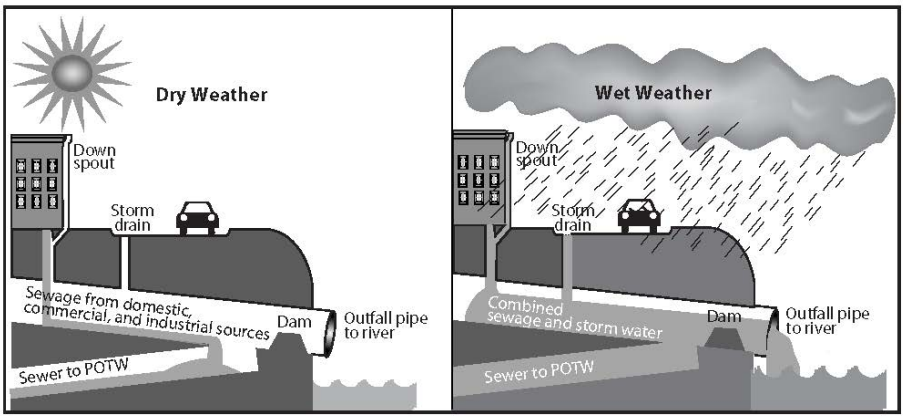

Figure 1.1 : Représentation d'une conduite de débordement d'égout unitaire (DEU) – tiré d'USEPA (2004)

Il existe également des débordements du réseau d'égout sanitaire (aussi appelé domestique). Dans ce cas, le réseau d'égout n'achemine que les eaux usées domestiques à la station d'épuration auxquelles s'ajoute l'infiltration des eaux souterraines et de ruissellement. Un réseau pluvial parallèle canalise les eaux de ruissellement lors des périodes de pluie et de fonte des neiges pour les rejeter, en général, sans traitement dans le milieu récepteur (Figure 1.2). Ce type de réseau permet d'amener des eaux usées de charges constantes à la StaRRE que ce soit par temps sec ou de pluie diminuant ainsi les coûts de traitement (Veenstra et al., 1997). Des épisodes de débordements d'égouts sanitaires (DES) sont principalement dus à l'infiltration de l'eau souterraine ou d'eaux de ruissellement ou à des problèmes d'opération ou d'obstruction sur le réseau sanitaire (USEPA, 1996, 2004).

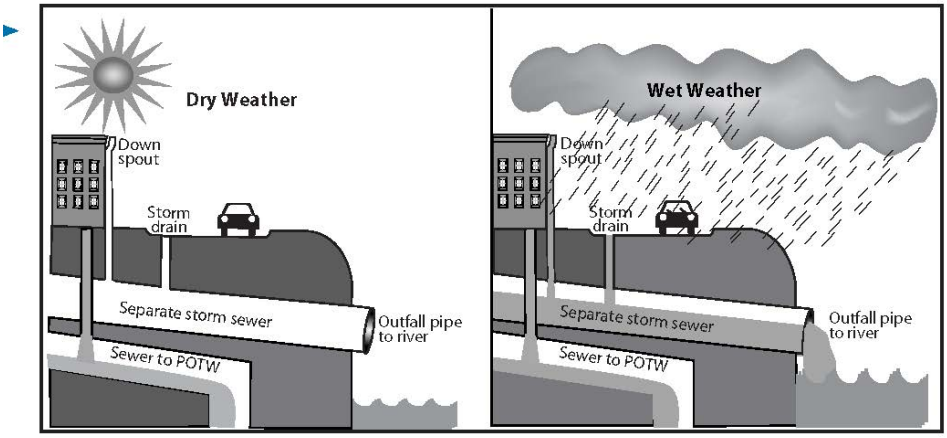

Figure 1.2 : Représentation d'une conduite de réseau pluvial – tiré d'USEPA (2004)

1.1.2 Problématique des débordements d'eaux usées

En 1970 au Royaume-Uni, un rapport technique sur les "Storm Overflows and the Disposal of Strorm Sewage" a conclu que l'élimination des débordements par l'augmentation de la capacité des égouts unitaires ou par la construction d'égouts séparatifs entrainerait des coûts prohibitifs (Marsalek et al., 1993). A la suite de ce bilan, le développement des villes européennes s'est accompagné de l'implantation d'égouts combinés et la majorité de la population européenne est raccordée à des réseaux combinés (Agg & Derick, 1990) comme l'illustrent les données du Tableau 1.1.

Aux États-Unis, la construction de réseaux d'égouts combinés n'est plus permise depuis les années 50. Toutefois, ce type de réseau représente environ 25% de l'ensemble des réseaux d'égouts américains et dessert 40 millions de personnes (USEPA, 2004). Au Canada, environ 76% de la population est raccordée à un système d'assainissement (Nelligan, 2008) mais la proportion de réseaux combinés/séparatifs n'est pas documentée (Chambers et al., 1997). Depuis le milieu des années 1950, la plupart des municipalités canadiennes se sont dotées de réseaux séparatifs (Environment Canada, 2001a) et Waller (1969) avait estimé que 6,7 millions de canadiens étaient raccordés à un réseau combiné.

On retrouve donc des systèmes d'égouts unitaires ainsi que des structures de débordement dans la majorité des pays développés et des grandes villes (Tableau 1.1).

Tableau 1.1: Données sur les populations connectées à des réseaux d'assainissement combinés et sur les surverses de différents pays

Pays	Population connectée à l'assainissement	Réseaux combinés		Surverses		Références
		Réseaux combinés/sanitaires (nombre ou % du réseau complet)	Population connue	Nombre de TP/surverses	Volumes rejetés estimés	
Europe						
Allemagne	92%	70%				Butler and Davies (2011)
Belgique	90%	ND		4 300 TP[a]		OCDE (2007a)
Danemark	87%	45%				Marsalek et al. (1993); OCDE (2007b)
Espagne	80%	82%				Ellis (1989); OCDE (2004a)
France Paris Lyon	91%	70%	 10 millions 1,2 millions	 200 TP 370 TP		Butler and Davies (2011) Even et al. (2007) Fletcher and Deletic (2008)
Pays-Bas	97%	90%		15 000 TP		Butler and Davies (2011); OCDE (2003)
Royaume-Uni	96%	70%				Butler and Davies (2011)
Suède	94%	14%				Ellis (1989); OCDE (2004b)
États-Unis DEU	77%	25%	 40 millions	 9 348 TP égouts combinés (60 000 évènements/an)	 $4\times10^9 m^3$/ année	Ellis (1989) USEPA (2004)

Tableau 1.1: Données sur les populations connectées à des réseaux d'assainissement combinés et sur les surverses de différents pays (suite)

Pays	Population connectée à l'assainissement	Réseaux combinés		Surverses		Références
		Réseaux combinés/sanitaires (nombre ou % du réseau complet)	Population connue	Nombre de TP/surverses	Volumes rejetés estimés	
DES		20 400 réseaux sanitaires	164 millions	23 000-75 000 évènements/an	1-4,5×10^7 m^3/ année	USEPA (2004)
Canada Vancouver (Colombie Britannique) Ottawa (Ontario) Province de Québec	76%		6,7 millions	52 (100-150 surverses/an) 18 4 310 (48 748 DEU en 2009)	21,2×10^6 m^3/ année 405 000 m^3/ année	Chambers et al. (1997); City of Ottawa (2010); Hall et al. (1998); MAMROT (2010); MDDEP (2007a); Nelligan (2008); Waller and Novak (1980)

a Évaluation réalisée sur un tiers du territoire flamand uniquement

ND : Non déterminé

1.1.3 Réglementation et programmes de suivi des débordements d'eaux usées

L'échantillonnage des DEU est une pratique relativement complexe et n'est, en général, réalisé que pour répondre à des objectifs de recherche précis (Chambers et al., 1997; Fletcher & Deletic, 2008). Le suivi routinier des DEU est effectué, dans le meilleur des cas, par le suivi des mesures du niveau de l'eau de surverse dans la conduite de débordement, mais plus généralement par une indication de la présence ou non de surverse pendant une période donnée. Toutefois, certains programmes de suivi et de surveillance des surverses existent et quelques-uns sont présentés ici.

1.1.3.1 États-Unis

Aux États-Unis, la Loi sur l'Eau Propre ou 'Clean Water Act' s'appliquait essentiellement dans les années 70 et 80 aux rejets ponctuels traditionnels tels que les effluents de StaRRE et les rejets des industries. Cette loi impose, par exemple, des normes de rejets concernant la DBO_5, les MES et le pH aux effluents des usines équipées de traitement secondaire. Un financement de l'ordre de 100 milliards de dollars entre 1970 et 1995 a permis que 99% des 16 000 StaRRE puissent fournir au minimum un traitement secondaire respectant ces normes. De plus, un Programme National de Prétraitement[1] a été mis en place afin de réduire à la source les charges en polluants toxiques des industries et de diminuer les interférences au niveau du traitement des StaRRE. En 1999, 1 500 StaRRE ont mis en place ce programme, contrôlant les rejets d'environ 30 000 industries (USEPA, 2004).

A partir des années 1980, des programmes s'adressant spécifiquement aux rejets par temps de pluie se sont développés. Ils concernaient les surverses d'égouts sanitaires et combinés, les eaux de ruissellement ainsi que les fermes de production intensive (plus de 1 000 têtes de bétails, ou plus de 30 000 poules, par exemple) déversant des charges importantes de polluants dans les eaux de ruissellement (USEPA, 2004).

De plus, la Stratégie Nationale de Contrôle des Surverses d'égouts combinés[2] de 1989 a établi que les débordements d'égouts unitaires et sanitaires représentaient des points de rejets nécessitant

---

[1] Taduction personnelle de 'National Pretreatment Program'

[2] Taduction personnelle de 'National CSO Control Strategy'

l'octroi de permis par le National Pollutant Discharge Elimination System (NPDES). Ainsi, toutes les conduites de débordement existantes et futures doivent être identifiées et une demande d'autorisation de rejets doit être acceptée par le NPDES. Les objectifs de cette Stratégie sont (1) d'éliminer les débordements ayant lieu par temps sec qui ne sont pas autorisés par la Loi; (2) de limiter le nombre d'évènements de surverses par temps de pluie afin de respecter les normes de qualité du Clean Water Act et (3) de diminuer les impacts sur le milieu récepteur et la santé humaine. En 2004, 828 permis avaient été émis, réglementant les rejets de 9 348 trop-pleins localisés dans 32 états (USEPA, 2004).

Afin d'accélérer la mise en application de la Stratégie, la politique de contrôle des débordements d'égouts unitaires[3] a été mise en place en 1994. Cette politique fournit aux autorités les pouvoirs de mettre en application et de respecter les différents règlements ainsi que leurs exigences (USEPA, 1996).

Les objectifs, pour les villes ayant des permis délivrés par le NPDES pour leurs conduites de débordement, sont de (1) mettre en place les mesures de contrôle des surverses ne nécessitant pas d'études d'ingénieries ou de constructions majeures ('Nine Minimum Controls') et (2) développer un plan de contrôle à long terme[4]. Une étude des différentes mesures de contrôle des débordements doit être réalisée sur chaque ouvrage afin de déterminer la solution la plus performante et la plus viable financièrement permettant de répondre aux normes du Clean Water Act.

La mise en place de ces politiques a permis de localiser et de caractériser les trop-pleins ainsi que de réaliser de nombreux suivis et caractérisation de rejets de surverses (USEPA, 1999). Par exemple, 25 états ont équipé les trop-pleins d'enregistreurs en continu permettant de déterminer le nombre, la durée et le volume de surverse Le coût global de la mise en place de cette stratégie a été évalué à 100 milliards de dollars (Field, 2002).

Depuis 2008, l'US Environmental Protection Agency intensifie ses travaux sur les impacts et les conséquences des changements climatiques sur les ressources en eau (Goulding & Hu, 2009) et publie des recommandations (USEPA, 2008a, 2012). L'impact des changements climatiques sur les mesures d'atténuation mises en place pour diminuer les débordements a par exemple été étudié

[3] Traduction personnelle de 'Combined Sewer Overflows control policy'

[4] Traduction personnelle de 'Long-term Control Plan'

dans les régions des Grands Lacs et de la Nouvelle-Angleterre. Les projections à long-terme (>30 ans) des précipitations suggèrent que la fréquence des débordements dépassera les capacités des mesures de mitigation mises en place, entrainant une augmentation des volumes rejetés dans les Grands Lacs (USEPA, 2008b). En Nouvelle-Angleterre, les projections n'ont pas pu être déterminées en raison du manque de données. L'évaluation de l'impact des changements climatiques nécessite un plus grand nombre d'analyses détaillées et spécifiques à chaque site bénéficiant de mesures d'atténuation (USEPA, 2008b).

1.1.3.2 Europe

La Directive Cadre européenne (2000/60/CE), mise en vigueur le 22 décembre 2000, établit un cadre législatif de protection des eaux de surface, souterraines et côtières. L'objectif ultime de cette directive est "d'atteindre un bon état écologique et chimique de toutes les eaux communautaires d'ici à 2015" (Commission européenne, 2010). Afin d'y parvenir, chaque état membre doit prendre des mesures permettant "(1) la prévention et la réduction de la pollution, (2) la promotion d'une utilisation durable de l'eau, (3) la protection de l'environnement, (4) l'amélioration de l'état des connaissances des écosystèmes aquatiques et (5) l'atténuation des effets des inondations et des sécheresses" (Commission européenne, 2010).

Chaque état membre devait produire pour 2004 des études permettant de caractériser les eaux en termes d'incidence de l'activité humaine et d'identifier les zones nécessitant une protection spéciale de captage intense. La révision de ces études devait être réalisée pour 2013, puis tous les 6 ans. De plus, des plans de gestion ainsi que des programmes de mesures devaient être réalisés en 2009 et devront être mis en œuvre en 2012. Les objectifs de ces plans sont de :

- " prévenir la détérioration, améliorer et restaurer l'état des masses d'eau de surface, atteindre un bon état chimique et écologique de celles-ci au plus tard fin 2015, et réduire la pollution due aux rejets et émissions de substances dangereuses;
- protéger, améliorer et restaurer l'état des eaux souterraines, prévenir leur pollution, leur détérioration et assurer un équilibre entre leurs captages et leur renouvellement
- préserver les zones protégées" (Commission européenne, 2010).

France

Afin de respecter la Directive cadre européenne sur l'eau, la France doit prévoir des plans de suppression des principales sources de pollution, ce qui inclut les DEU. De nombreuses études ont donc été réalisées afin (1) de caractériser les concentrations et les charges rejetées par les DEU (Becouze-Lareure, 2010; Cladière et al., 2011; Dembélé, 2010; Garnaud, 1999; Gasperi et al., 2008; Gasperi et al., 2011; Gasperi et al., 2010; Gasperi et al., 2006; Gasperi et al., 2012b; Gonzalez, 2001; Kafi et al., 2008; Rocher et al., 2004) et (2) d'évaluer ou de prédire leurs impacts. Un certain nombre de mesures ont déjà été prises pour diminuer la fréquence des surverses. A Paris, par exemple, le Syndicat Interdépartemental pour l'Assainissement de l'Agglomération Parisienne a mis en place des tunnels de rétention et des bassins de stockage dans le réseau d'égouts (Passerat et al., 2011) et l'abattement de contaminants tels que les paramètres physico-chimiques et les polluants prioritaires par un pilote de floculation lestée a été testé (Gasperi et al., 2012a).

De plus, un suivi minimum des égouts unitaires incluant les StaRRE et les DEU est requis (République Française, 1995) et a pour objectif d'évaluer les volumes et charges rejetés dans le milieu récepteur. Le suivi des ouvrages de débordement dépend de la charge en DBO_5 par temps sec. En effet, si la charge est :

- inférieure à 120 kg O_2/j alors aucun suivi n'est requis,
- comprise entre 120 et 600 kg O_2/j, les périodes principales d'occurrence de DEU doivent être déterminées. En général, le nombre de trop-pleins à étudier est très important et afin de limiter les coûts, des modèles du réseau d'égouts sont développés. Afin d'estimer les volumes rejetés, des sondes de niveaux sont installées et une relation entre le niveau et le débit est exprimée par site. Seules les conduites de débordement dont le volume total rejeté lors d'une surverse est supérieur à 70% du volume total annuel seront équipées de sondes de mesure en continu afin de limiter les coûts à investir,
- supérieure à 600 kg O_2/j, un suivi continu des évènements en termes de débits est requis ainsi qu'une estimation des charges en matières en suspension et en demande chimique en oxygène. Des turbidimètres et spectromètres UV-VIS sont installés dans les conduites et permettent un suivi en continu des paramètres physico-chimiques tels que les MES, DCO, COT, COD et $N\text{-}NO_3^-$ grâce à des corrélations préalablement déterminées. En effet, depuis le début des années 2000, plusieurs groupes de recherche à travers le monde ont étudié

l'utilisation d'une ou de plusieurs sondes de turbidité ou de spectrométrie UV-VIS comme substitut des mesures directes (Fletcher & Deletic, 2007; Gruber et al., 2004, 2005; Lacour et al., 2009a; Métadier & Bertrand-Krajewski, 2011b; Ruban et al., 2008). De nouvelles méthodologies ont également été développées pour estimer et diminuer les incertitudes de mesures (Fletcher & Deletic, 2007; Lepot et al., 2013; Métadier & Bertrand-Krajewski, 2011a; Muschalla et al., 2008; Ruban et al., 2008). Les mesures en continu de la turbidité peuvent être utilisées comme outil d'aide de gestion de la maintenance et de la remise en état de conduites d'égouts ainsi qu'à la mise en place de contrôles en temps réel ou de modélisations (Lacour et al., 2009b; Lacour et al., 2011; Lacour & Schütze, 2011).

1.1.3.3 Canada

Règlementation

Au Canada, la Stratégie pancanadienne sur la gestion des effluents d'eaux usées municipales a été approuvée le 17 février 2009 et ratifiée par la majorité des provinces, à l'exception du Québec, de Terre-Neuve-Labrador ainsi que du territoire du Nunavut. Cette stratégie préconisait des normes de performances nationales applicables à tous les effluents de StaRRE : une DBO_5 de 25 mg/L, une concentration en MES de 25 mg/L et une concentration en chlore résiduel total de 0,02 mg/L. Ces normes sont entrées en vigueur le 1er janvier 2015 dans le Règlement sur les effluents des systèmes d'assainissement des eaux usées (RESAEU) (Gouvernement du Canada, 2015).

La réglementation canadienne impose désormais la construction de réseaux d'égouts séparatifs; en Ontario, ce règlement s'applique déjà depuis 1985 (Government of Ontario, 1994a). Les objectifs sont de ne plus surcharger les réseaux existants pour ne pas accentuer le nombre de DEU et de limiter les variations importantes de débit et de charge au niveau des StaRRE afin de maintenir un rendement d'élimination constant (Brière, 2006; Conseil Canadien des Ministres de l'environnement (CCME), 2009; Government of Ontario, 2008; USEPA, 2004).

Débordements d'égouts unitaires (DEU)

Afin de limiter les DEU, la Stratégie s'appuie sur l'interdiction d'émission de permis de construction de nouveaux égouts unitaires par les gouvernements provinciaux. Dans le cas d'extension ou de redéveloppement de réseaux unitaires existants, ces travaux ne devront pas augmenter la fréquence des DEU. De plus, les DEU et DES par temps sec ne sont plus tolérés à

l’exception de la période de fonte des neiges et de cas d’urgence. Les égouts existants peuvent être remplacés ou réhabilités et l’objectif principal est que l’ensemble des débordements soit éliminé grâce à la prise de mesures correctives. Le respect des normes nationales de rejets ainsi que le développement d’un plan à long terme visant à réduire les débordements d’égouts unitaires pour respecter les objectifs de la province doivent être réalisés dans sept ans (Conseil Canadien des Ministres de l'environnement (CCME), 2009).

La gestion des débordements est intégrée à celle des effluents d’eaux usées des StaRRE. Une autorisation de rejet doit être demandée pour les ouvrages de rejets d’eaux usées : StaRRE et points de débordement. La durée du permis dépendra du risque que les ouvrages représentent et du plan d’amélioration du système d’assainissement ou de toute mesure à prendre pour réduire les impacts des rejets. Le niveau de risque associé à l’effluent de la StaRRE dépend (1) du volume rejeté, (2) de la DBO_5, (3) des concentrations en chlore résiduel et ammoniac et (4) de la localisation du rejet (Gouvernement du Canada, 2015). Le niveau de risque associé à chaque ouvrage de débordement est déterminé en utilisant un système de pointage selon les critères de risque établi par le Règlement qui sont : (1) la proportion de débit; (2) le nombre de rejets; et (3) la localisation des points de rejets (Tableau 1.2). Le système de pointage consiste à attribuer des points pour chaque ouvrage de débordements à l’exception de ceux ayant un traitement permettant l’enlèvement des matières solides et/ou la désinfection. La durée des permis octroyés permettant les rejets temporaires dépend de l’impact estimé des ouvrages et du niveau de risque des DEU en fonction de celui des StaRRE (Tableau 1.3). Après cette date, les correctifs devront avoir été effectués au niveau des StaRRE et des ouvrages de débordement.

Il est intéressant de noter que les prises d’eau potable ont été retirées des critères associés au facteur des eaux dans lesquelles l’effluent est rejeté suite à la période de consultation de la Stratégie. Les prises d’eau potable ne sont donc plus prises en compte dans l’analyse du risque que posent les DEU. La Stratégie avait également indiqué qu’aucune prise d’eau potable ne devrait se trouver en aval de points de débordements.

Tableau 1.2: Système de pointage pour les points de débordement des égouts unitaires

Facteurs	Critères	Points
La proportion de l'estimation du débit moyen par temps sec qui circule dans l'égout unitaire au point de débordement par rapport à l'estimation du débit moyen par temps sec rejeté à partir du point de rejet final (%)	≥ 50%	35 points
	≥ 25% et < 50%	25 points
	≥ 10% et < 25%	15 points
	<10%	10 points
Nombre de rejets à partir du point de débordement	>25 rejets	35 points
	> 15 rejets et ≤ 25 rejets	25 points
	> 5 rejets et ≤ 15 rejets	15 points
	5 rejets ou moins	5 points
Eaux dans lesquelles l'effluent est rejeté à partir du point de débordement (la somme de tous les points s'applique)	Zone de récolte de mollusques dans un rayon de 500 m de tout point d'entrée où l'effluent est rejeté dans les eaux à partir du point de débordement	20 points
	Frayère ou zone fréquentée par une espèce aquatique qui est une espèce protégée, ou une zone où on l'y retrouve, dans un rayon de 500 m de tout point d'entrée où l'effluent est rejeté dans les eaux à partir du point de débordement	10 points
	Baie enclavée, estuaire, lac, milieu humide naturel ou réservoir	10 points

Tableau 1.3: Conditions de délivrance des autorisations transitoires et temporaires de rejet

Nombre de points alloués au rejet de la StaRRE (P_{StaRRE})	**Nombre de points alloués aux rejets des DEU (P_{DEU})**	**Année d'échéance du permis de rejet**
$P_{StaRRE} \geq 70$	$P_{DEU} < P_{StaRRE}$ [a]	2020
$50 \leq P_{StaRRE} < 70$	$P_{DEU} < P_{StaRRE}$ [a]	2030
$P_{StaRRE} < 50$	na	2040
$P_{StaRRE} \geq 50$	$P_{DEU} \geq P_{StaRRE}$ [b]	

a : pour chacun des points de débordement

b : pour au moins un des points de débordement

na : ne s'applique pas

Ontario

Le gouvernement de l'Ontario a produit, en 1994, les directives concernant les ouvrages de traitement des eaux usées rejetées dans les eaux de surface (Government of Ontario, 1994a). Une documentation complémentaire qui règlemente le contrôle des DEU par des trop-pleins du système d'assainissement précise les objectifs et les valeurs cibles que les systèmes de contrôle des égouts combinés doivent atteindre (Government of Ontario, 1994b). Les buts établis sont (1) l'interception et le traitement de tous les débits par temps sec ainsi que de 90% des débits par temps de pluie pour une période de 7 mois débutant après la période de fonte des neiges; et (2) la réduction des impacts des DEU sur la santé humaine et la vie aquatique. Un accent particulier a été porté sur les plages puisque les objectifs provinciaux de qualité de l'eau[5] (OPQE) concernant les concentrations en *E. coli* dans les zones récréatives (e.g. 100 *E. coli*/100mL) doivent être respectés au minimum dans

[5] Traduction personnelle de Provincial Water Quality Objectives (PWQO)

95% des cas pour une période de 4 mois (du 1er juin ou 1er septembre) (Government of Ontario, 1994a, 1994b).

Les mesures minimales permettant la diminution des DEU sont (1) le développement d'un plan de prévention et de contrôle de la pollution (fertilisants, engrais, huiles et graisses, matières flottables par exemple); (2) le développement et la mise en application d'un programme d'inspections et de maintenance des réseaux d'égouts unitaires et des trop-pleins; ainsi que d'un programme de contrôle des matières flottables; (3) la maximisation de l'utilisation du système d'assainissement pour intercepter les débits de temps de pluie et; (4) la maximisation de l'utilisation du débit à la StaRRE pour traiter le débit de temps de pluie (Government of Ontario, 1994b). De plus, le niveau minimal de traitement requis lors d'épisodes de pluie est celui d'un traitement primaire au niveau de la StaRRE ainsi qu'au niveau des unités de traitement décentralisées. Si les DEU sont localisés dans des zones récréatives, une désinfection de l'effluent sera nécessaire (Government of Ontario, 1994b).

Québec

- Règlementation

Même si le Québec n'a pas ratifié la stratégie pancanadienne pour la gestion des effluents d'eaux usées municipales, le Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les Changements Climatiques (MDELCC) a la volonté de s'assurer que les nouveaux projets de traitement des eaux usées d'origine domestique respecteront, au minimum, les normes établies par la Stratégie. Le règlement sur les ouvrages municipaux d'assainissement des eaux usées (ROMAEU), entré en vigueur le 11 janvier 2014, impose des normes minimales de rejet de 25 mg/L pour la DBO_5 et de 25 mg/L pour la concentration en MES. Des exigences de rejet plus sévères pourraient s'appliquer s'ils étaient jugées nécessaires par une analyse plus poussée avec l'établissement d'objectifs environnementaux de rejet (OER) tenant compte de la capacité de support du milieu récepteur. Ces normes ne s'appliquent qu'aux rejets de StaRRE et non aux débordements d'eaux usées (Gouvernement du Québec, 2015).

- Programme de Suivi des Ouvrages Municipaux d'Assainissement des Eaux (SOMAE)

Les exigences et les objectifs de rejets ont été déterminés par le Ministère des Affaires Municipales et de l'Occupation du Territoire (MAMOT) pour chaque ouvrage de débordement. Ce dernier a mis en place le programme SOMAE pour le Suivi des Ouvrages Municipaux d'Assainissement des Eaux qui compile les données des StaRRE et des ouvrages de débordement. Les performances des StaRRE et des ouvrages de débordement sont évaluées chaque année afin de vérifier le respect des exigences et objectifs de rejet. Les exigences de rejet d'un ouvrage de surverse ont été déterminées en fonction de la « performance attendue de l'ouvrage au moment de sa conception ou suite à des interventions sur les ouvrages ou sur les réseaux d'égouts dont ils sont dépendants » et elles viennent « préciser les limitations imposées à chaque ouvrage face aux débordements » (MAMROT, 2010).

Il est à noter que seuls les débordements de situation d'urgence (U) seront tolérés pour un ouvrage de débordement raccordé à un réseau domestique neuf. De plus, les DEU ainsi que les dérivations de StaRRE sont interdits par temps sec (Gouvernement du Québec, 2015). En revanche, les exigences sont minimales pour les ouvrages raccordés à un réseau d'égout unitaire puisque les DEU en situation d'urgence (U), de fonte des neiges et de pluie avec ruissellement sont tolérés (UPF) (MDDELCC, 2015).

Les objectifs de rejet ont quant à eux été déterminés en tenant compte de la capacité de support du milieu récepteur à partir des objectifs environnementaux de rejet (OER).

Objectifs environnementaux de rejet (OER)

Les objectifs environnementaux de rejet (OER) permettent de déterminer les concentrations et les charges de contaminants pouvant être rejetées dans un milieu aquatique sans compromettre les usages de l'eau (MDDEP, 2008). Ils donnent donc une indication du nombre maximal de débordements qui pourrait être accepté sans compromettre la qualité du milieu récepteur et ne représente pas une obligation. Les OER correspondent en général à un nombre de débordements inférieur à celui qui est exigé.

Les facteurs selon lesquels les OER sont déterminés sont (1) les caractéristiques du rejet (concentration, débit, toxicité globale de l'effluent), (2) les caractéristiques du milieu récepteur (qualités naturelle et actuelle du plan d'eau, vulnérabilité et capacité de dilution ainsi que

d'assimilation du plan d'eau) et (3) le niveau de qualité nécessaire pour le maintien des usages de l'eau. En effet, différents critères de qualité pour prévenir la contamination de l'eau et des organismes aquatiques, pour protéger la vie aquatique chronique ainsi que le faune terrestre piscivore et/ou pour permettre le maintien des activités récréatives et esthétiques ont été déterminés dans le cas des rejets continus (MDDEP, 2008).

Dans le cas des DEU, une méthode de calcul global aurait dû être utilisée pour tenir compte des sources multiples de rejets sur un tronçon prédéterminé (MDDEP, 2007b). Des valeurs de concentrations et de débits de rejet auraient dû être posées pour déterminer les charges rejetées et évaluer leur impact mais nous ne disposons pas d'informations ou d'exemples précis sur la détermination des OER pour les DEU. Par exemple, dans le cas des ouvrages de débordement des municipalités de Montréal et Laval se déversant dans la rivière des Prairies, les OER ont été calculés pour respecter les usages récréatifs (plage, centre de Kayak, marina), l'approvisionnement en eau potable et la vie aquatique (frayères). On remarque que les OER sont beaucoup plus stricts que les exigences de rejets. En général, les surverses ne sont permises que dans des cas d'urgence (U) ou de fonte des neiges (F). Les DEU peuvent être permis pour certains trop-pleins en cas de précipitation et de fonte mais leur fréquence demeure limitée lors de la période estivale (de mai à octobre) (entre 3 à 12 surverses selon les conduites).

Relevés des données de surverse

Le programme SOMAE compile les données de débordement par ouvrage. Une fiche mensuelle est disponible pour chaque ouvrage et indique le nombre de débordements ainsi que la cause : pluie, fonte des neiges, urgence ou autre (travaux par exemple). L'ouvrage de surverse peut être équipé d'un système de télémétrie qui enregistre en temps réel si le réseau surverse au niveau de ce TP. Cet équipement permet de compiler le nombre et la durée des surverses. Pour ces ouvrages, une visite mensuelle sera réalisée par l'équipe technique de la municipalité. 48% des 4 310 ouvrages de surverses répertoriés sont munis d'un enregistreur (MAMROT, 2010). Pour les 52% restants, l'ouvrage est simplement équipé d'un repère (contenant témoin ou bloc repère). Lors du débordement, ce repère sera déplacé par le passage de l'eau. Ce repère sera replacé lors de la visite hebdomadaire et un évènement de surverse sera compilé par l'équipe technique. La vérification n'étant faite qu'une fois par semaine, plusieurs évènements de surverses auraient pu avoir lieu durant cette semaine mais un seul sera reporté. Une grande approximation est donc faite sur le

nombre de surverses compilées pour les trop-pleins non équipés d'enregistreurs dans le programme SOMAE.

Le nombre de débordements inscrits dans les fiches mensuelles provient donc, soit des informations mesurées en temps réel par les enregistreurs, soit des employés de la ville venus vérifier le repère. Il faut remarquer que la définition d'un débordement concerne une période de 24 heures (de 1h à minuit). Pour un trop-plein équipé de télémétrie, si une surverse a lieu de 22h à 4h, alors deux débordements seront comptabilisés. De plus, si plusieurs débordements de courte durée ont lieu la même journée, alors ils ne seront comptabilisés que comme un seul évènement. Comme pour les déversements aux StaRRE, des avis de déversement doivent être rédigés et envoyés directement au MDELCC lors d'un déversement d'eaux usées non traitées d'une période de plus de 48 heures.

En 2009, 48 748 débordements ont été comptabilisés dans SOMAE pour un total de 4 310 ouvrages répertoriés sur 740 StaRRE. La majorité de ces surverses (77%) ont été associées aux précipitations et à la fonte des neiges, 15% à une situation urgente, 6% à des événements qualifiés de 'autre' et 2% se sont déroulées par temps sec (MAMROT, 2010).

Les DEU par temps sec auraient dû être éliminés pour 2007 en vertu de la Politique Nationale de l'Eau mais cet objectif n'a toujours pas été atteint pour plusieurs municipalités (MAMROT, 2013; MDDEP, 2002). De plus, même si 91% des ouvrages de surverses respectent les exigences du MAMOT, ces exigences sont minimales ou modestes pour les ouvrages situés sur des réseaux unitaires ou pseudo-domestiques puisque seules les surverses par temps sec ne sont pas tolérées et que la fréquence est illimitée en période de fonte des neiges. Or, le niveau d'enlèvement des microorganismes pathogènes au niveau de l'usine de production d'eau potable est moins élevé en eau froide qu'en eau chaude (Payment et al., 2000). La volonté du MAMOT devrait plutôt être (1) qu'aucun débordement ne survienne, ou (2) que le nombre annuel de débordements respecte les objectifs environnementaux de rejet (OER) en incluant la période de la fonte des neiges.

1.2 Caractérisation des débordements d'eaux usées

Les objectifs de cette partie sont de (1) présenter les facteurs régissant les dynamiques des concentrations en contaminants durant un débordement; (2) résumer les données de concentrations des paramètres chimiques, physico-chimiques et microbiologiques analysées dans les surverses et; (3) décrire les variations temporelles des concentrations au cours des DEU.

1.2.1 Facteurs régissant les dynamiques des concentrations

Les concentrations en contaminants des eaux de DEU résultent de différents phénomènes : (1) la dilution des eaux sanitaires par les eaux pluviales; (2) la contribution interne des eaux usées par la remise en suspension de dépôts ou sédiments des réseaux d'assainissement et; (3) la contribution externe du ruissellement (Gromaire et al., 2001).

Les concentrations en contaminants que l'on retrouve dans les DEU et qui proviennent des eaux sanitaires varient énormément d'un réseau à l'autre. Une première estimation du pourcentage d'eaux sanitaires dans les surverses avait montré que la quantité d'eaux usées ne représentait que 3 à 5% de la quantité totale de l'eau rejetée (USEPA, 1996). Ce pourcentage dépend de la configuration du réseau, de l'intensité et de la durée des précipitations (Hall et al., 1998; USEPA, 1996). Les concentrations en contaminants des DEU sont influencées par la quantité et le type de polluants présents dans les eaux sanitaires, par le zonage du bassin de drainage, par la proportion d'eaux de ruissellement ainsi que par la durée entre deux évènements de surverse (Hall et al., 1998; USEPA, 1996). Les concentrations rejetées varient d'un bassin hydrographique à l'autre, d'un évènement à l'autre dans le même bassin ainsi qu'au cours d'un même évènement. Elles dépendent aussi des saisons et des caractéristiques des épisodes de ruissellement (Environment Canada, 2001b).

1.2.2 Compositions physico-chimique et chimique

L'étude des DEU est plus complexe que celle des eaux de ruissellement en raison des difficultés d'accès et d'installation d'équipements (Chambers et al., 1997; Environment Canada, 2001b). Cependant, de plus en plus de données concernant la caractérisation des eaux d'égouts sanitaires par temps de pluie et des eaux de surverses sont disponibles. Les DEU ont, en général, été caractérisés par la combinaison de paramètres globaux de pollution habituellement utilisés pour le

suivi des affluents de StaRRE tels que les MES/MVES, la matière organique et les nutriments et pour celui des eaux de ruissellement tels que les métaux, les hydrocarbures et les composés organiques (HAP, HA, COV). Les MES, la DBO et la DCO ainsi que d'autres paramètres physico-chimiques sont très utilisés comme substitut de la fraction particulaire fine pour caractériser les distributions de vitesse de sédimentation. Les distributions de taille de particules et de vitesse de sédimentation sont nécessaires à la détermination de technologies appropriées permettant le contrôle et le traitement des DEU (Andoh, 2010).

La caractérisation des DEU en termes de concentrations de paramètres physico-chimiques communs a fait l'objet de beaucoup d'études (Chambers et al., 1997). Les résultats de ces études sont résumés au Tableau 1.4 ainsi que ceux concernant la caractérisation de métaux au Tableau 1.5 et des composés organiques au Tableau 1.6.

Tableau 1.4: Concentrations des paramètres physico-chimiques dans les DEU

Pays	Type conduite	Échantillonnage			Concentrations							Références
		Type	Nomb.	Fréq.	MES (mg/L)	DBO (mgO_2/L)	DCO (mgO_2/L)	Pt (mg/L)	Nt (mg/L)	NTK (mg/L)	$N\text{-}NH_4^+$ (mg/L)	
EU	DEU	nr	V	nr	1-4 420 (127)[c] (n=995)	3,9-696 (43)[c] (n=501)		0,1-20,8 (0,7)[c] (n=43)		0-82,1 (3,6)[c] (n=373)		USEPA (2004)
	DES	nr	V	nr	10-348 (91)[c] (n=27)	6-413 (42)[c] (n=22)		(2)[c]				
EU	DEU	P	1TP 4E	2	50-794 (321)[a]	15-155 (76)[a]	76-887 (323)[a]				0,39-1,44 (0,9)[a]	Bailey (2007)
EU	DEU	P	nr	nr	86,8[a] (n=188)	24,2[a] n=190)		0,815[a] (n=189)			0,831[a] (n=54)	Soonthornnonda and Christensen (2008)
CA	DEU	nr	nr	nr	190	41		1,4	83			Waller and Novak (1980)
CA	DEU	nr	nr	nr	59	60		1,9			3,8	Chambers et al. (1997)
CA	DEU	C-P	7TP	~ 10	59-190	47-75					2,2-3,8	Hall et al. (1998)
RU	DEU	nr	nr	nr	176-647 (425)[a]	43-225 (90)[a]	250-530 (380)[a]	6,5-14,0 (10)[a]	2,1-28,5 (8,3)[a]		3,1-8,0 (6)[a]	Ellis (1989)
PB	DEU	nr	nr	nr	105-320	40-124	148-389	2,1-5,0				House et al. (1993)
AL	DEU	nr	nr	nr	45-55	12-82	80-230	1,8-2,7	6,7-16,3		3,8-11,7	Marsalek et al. (1993)
FR	EUTP	C	27 EV	nr	174-403 (279)[c]	116-244 (158)[c]	286-633 (432)[c]			15-35 (25)[c]		Kafi et al. (2008)
FR	DEU	C	1TP 12E	1 fois	110-830							Passerat et al. (2011)
ES	DEU	P	1TP	7EV	160-411	70-171	134-540	0,5-4,6		13,2-33	5,2-12,8	Diaz-Fierros T et al. (2002)
ES	DEU		5P	46 EV	561-1 722[e] (229-733)[d]	341-792[e] (166-389)[d]	569-1 717[e] (293-834)[d]					Suárez and Puertas (2005)

Pays - ÉU : États-Unis; CA : Canada; RU : Royaume-Uni; PB : Pays-Bas; AL : Allemagne; FR : France, ES : Espagne
Type de conduite - DEU : débordement égout unitaire; DES : débordement égout sanitaire; EUTP : égout unitaire par temps de pluie
Type d'échantillonnage - P : ponctuel; C : composite / Nomb.: Nombre d'échantillonnage; V : variable / Nombre échantillons - TP : trop-plein; E : échantillons; EV : évènement; P : point; nr : non rapporté; Concentrations - min-max; a : moyenne arithmétique; b : moyenne géométrique; c : médiane; d : EMC; e : maximum

Tableau 1.5: Concentrations des métaux dans les DEU

Pays	Type conduite	Échantillonnage			Concentrations				Références
		Type	Nombre	Fréq.	Cadmium (µg/L)	Cuivre (µg/L)	Plomb (µg/L)	Zinc (µg/L)	
ÉU	DEU	nr	V	nr	0,16-30 (2)[c] (n=401)	10-1 827 (40)[c] (n=346)	5-1 013 (48)[c] (n=438)	10-3 740 (156)[c] (n=442)	USEPA (2004)
	DES	nr	V	nr				(159)[c]	
ÉU	DEU	P	1TP 4E	2		6-44 (19)[a]	20-24 (21,5)[a]	3-2 540 (91)[a]	Bailey (2007)
ÉU	DEU	P	nr	nr	2,4[a] (n=189)	26,8[a] n=190)	41,3[a] n=190)	103[a] (n=190)	Soonthornnonda and Christensen (2008)
CA	DEU	nr	nr	nr	3,2	77	89	81	Chambers et al. (1997)
CA	DEU	C-P	7 TP	~ 10		60-150	17-83	41-236	Hall et al. (1998)
RU	DEU	nr	nr	nr			80-450 (250)[a]	100-1 070 (870)[a]	Ellis (1989)
PB	DEU	nr	nr	nr			40-100	40-50	House et al. (1993)
AL	DEU	nr	nr	nr			10-100	60-400	Marsalek et al. (1993)
FR	EUTP	C	27E V	nr	0,64-2,03 (1,20)[c]	66-231 (130)[c]	55-289 (98)[c]		Kafi et al. (2008)
FR	EUTP DEU	C	14PT	23E	< 1-2,1 (< 1)[c] (23%)	38-1 180 (68)[c] (100%)	10-117 (39)[c] (100%)	248-3 525 (682)[c] (100%)	Gasperi et al. (2008)
ES	DEU	P	1TP	7EV			0,4-14	44-88	Diaz-Fierros T et al. (2002)
DK	DEU	C	1TP	1EV	0,28	75	19,2	nr	Birch et al. (2011)

Pays - ÉU : États-Unis; CA : Canada; RU : Royaume-Uni; PB : Pays-Bas; AL : Allemagne; FR : France; ES : Espagne; DK : Danemark
Type de conduite - DEU : débordement égout unitaire; DES : débordement égout sanitaire; EUTP : égout unitaire par temps de pluie
Type d'échantillonnage - P : ponctuel, C : composite / Nombre d'échantillonnage - V : variable / Nombre échantillons - TP : trop-plein; E : échantillons; EV : évènement; P : point; Fréq. : fréquence d'échantillonnage
nr : non rapporté
Concentrations - min-max; a : moyenne arithmétique; b : moyenne géométrique; c : médiane; d : EMC; e : maximum

Tableau 1.6: Concentrations des composés organiques dans les DEU

Pays	Type conduite	Échantillonnage			Concentrations							Références
					HAP					HA	COV	
		Type	Nombre	Fréquence	Totaux (µg/L)	CHRY µg/L	B(a)P (µg/L)	FLUO (µg/L)	B(b)F (µg/L)	totaux (µg/L)	CHL (µg/L)	
CA	DEU	C-P	7 TP	~ 10		0,055-0,306	0,04-0,24				1,7-5,3	Hall et al. (1998)
FR	EUTP	C	27EV	nr	1,04-4,81 (2,12)[c]					68-276 (168)[c]		Kafi et al. (2008)
FR	EUTP DEU	C	14P	23EV		<0,02-0,33 (0,14)[c] (69%)	<0,01-0,24 (0,06)[c] (92%)	0,04-0,05 (0,14)[c] (100%)	<0,02-0,24 (0,08)[c] (92%)		1,1-3,0 (1,8)[c] (100%)	Gasperi et al. (2008)
FR	EUTP	C	6BD	7EV	1,38-4,85[c]							Gasperi et al. (2006)
DK	DEU	C	1TP	1EV	17,35	0,76	1,6	2	3,1		<0,02	Birch et al. (2011)

Pays-: ÉU : États-Unis; CA : Canada; RU : Royaume-Uni; PB : Pays-Bas; AL : Allemagne; FR : France; ES : Espagne
Type de conduite - DEU : surverse égout combiné; SES : surverse égout sanitaire; ECTP : égout combiné par temps de pluie; BD : bassin de drainage
Type d'échantillonnage - P : ponctuel; C : composite / Nombre d'échantillonnage - V : variable / Nombre échantillons - TP : trop-plein; E : échantillons; EV : évènement; P : point;
Composés - CHRY : chrysène; B(a)p : benzo(a)pyrène; FLUO : fluoranthène; B(b)F : benzo(b)fluoranthène; CHL: chloroforme
nr : non rapporté
Concentrations - min-max; a : moyenne arithmétique; b : moyenne géométrique; c : médiane; d : EMC; e : maximum

Tableau 1.7: Concentrations des paramètres microbiologiques dans les DEU

Pays	Type conduite	Échantillonnage			Concentrations							Références
		Type	Nombre	Fréquence	CT (UFC ou MPN/100mL)	CF (UFC ou MPN/100mL)	*E. coli* (UFC ou MPN/100mL)	Entero (UFC ou MPN/100mL)	*Crypto* (ooc /100L)	*Giardia* (kystes /100L)	Autres (UFC/100 mL sauf indication)	
ÉU	DEU	nr	V	nr		$3\text{-}4.10^7$ ($2{,}15.10^5$)[c] (n=603)						(USEPA, 2004)
	DES	nr	V	nr		(5.10^5)[c]				nr		
ÉU	DEU	P-C	3TP 5E	5					0-3 000 (2 013)[b] (80%)	3 750-114 000 (28 681)[b] (100%)		(States et al., 1997)
ÉU	DEU	P	1TP 2-3E	5		$3.10^3\text{-}8{,}5.10^4$ ($2{,}7.10^4$)[b] (100%)			250-40 000 (6036)[b] (100%)	9 000-283 000 (35 402)[b] (100%)		Gibson III et al. (1998)
ÉU	DEU	C	3TP 1E	2	$3{,}1.10^5\text{-}5{,}7.10^6$ (10^6)[b]	$3{,}4.10^4\text{-}4{,}3.10^5$ (10^5)[b]	$900\text{-}7.10^4$ (2.10^4)[b]	$1{,}1.10^4\text{-}3.10^5$ ($3{,}6.10^4$)[b]	59-100 (85)[b] (12%)	200-30 000 (3700)[b] (96%)		Arnone and Walling (2006)
ÉU	DEU	P	1TP 4E	2		$6{,}6.10^3\text{-}2.10^5$ ($9{,}6.10^4$)[a]						(Bailey, 2007)
ÉU	DEU	P	1TP 1E	1	>30 000	>30 000	positif	>30 000		186 000	S : >30 000 Cf : 3000 Ai : 5000 Ac :8 000	Donovan et al. (2008)
ÉU	DEU	P	nr	nr		$7{,}3.10^5$[a] (n=59)	$1{,}4.10^5$[a] (n=53)					Soonthornnonda and Christensen (2008)
ÉU	BS	P	6E	6							AV : 6.10^4 - 10^6 virus/L ($5{,}35.10^5$)[b] (100%)	Fong et al. (2010)
CA	DEU	nr	nr	nr		10^6*						Chambers et al. (1997); Waller and Novak (1980)
CA	DEU	nr	nr	nr		$3{,}9.10^5$*						Chambers et al. (1997)
CA	DEU	nr	nr	nr			$2{,}8.10^4\text{-}1{,}1.10^6$					Marsalek et al. (1996)

Tableau 1.7: Concentrations des paramètres microbiologiques dans les DEU (suite)

Pays	**Type conduite**	**Échantillonnage**			**Concentrations**							**Références**
		Type	**Nombre**	**Fréquence**	CT (UFC ou MPN/100mL)	CF (UFC ou MPN/100mL)	*E. coli* (UFC ou MPN/100mL)	Entero (UFC ou MPN/100mL)	*Crypto* (ooc /100L)	*Giardia* (kystes /100L)	Autres (UFC/100 mL sauf indication)	
CA	DEU	nr	nr	nr			$(1,4.10^6)^a$					Marsalek and Rochfort (2004)
RU	DEU	nr	nr	nr			10^5-10^8*					Ellis (1989)
CS	DEU	P	55E	nr	$8,0.10^4$-$14,8.10^6$ $(5,7.10^5)^a$	$4,0.10^4$-$1,15.10^6$ $(3,9.10^5)^a$						Kim et al. (2005)
FR	DEU	C	1TP 12E	1			$3,8.10^5$-$6,4.10^6$ $(1,5.10^6)^a$ (77% attaché aux MES)	$1,2.10^5$-$1,2.10^6$ $(4,0.10^5)^a$				Passerat et al. (2011)

Pays - ÉU : États-Unis; CA : Canada; RU : Royaume-Uni; PB : Pays-Bas; AL : Allemagne; FR : France; ES : Espagne; CS : Corée du Sud
Type de conduite - DEU : débordement égout unitaire; DES : débordement égout sanitaire; EUTP : égout unitaire par temps de pluie; BS : bassin de rétention de DEU
Type d'échantillonnage - P : ponctuel; C : composite / Nombre d'échantillonnage - V : variable / Nombre échantillons - TP : trop-plein; E : échantillons; EV : évènement; P : point;
nr : non rapporté
Concentrations - min-max; a : moyenne arithmétique; b : moyenne géométrique; c : médiane; d : EMC; e : maximum; * : MPN/100mL

Tableau 1.8: Concentrations en caféine (CAF), carbamazépine (CBZ) et acétaminophène (ACE) mesurées dans les affluents de StaRRE

Pays	**Nombre d'affluent**	**Suivi : Freq. (F)/ Nombre d'éch. (E)**	**Type échantillonnage**	**CAF (µg/L)**	**CBZ (µg/L)**	**ACE (µg/L)**	**Références**
ÉU	1	nr	nr	0,63			Yu and Chu (2009)
ÉU	1	nr	26hHGS	107,7[a]			Teerlink et al. (2012)
CA	14	nr	C (24h)		0,7[c] 1,9[e]		Metcalfe et al. (2003)
CA	1	F:1	24hFPC		0,356 ±0,006[a] 0,369 ±0,005 [a]		Miao and Metcalfe (2003); Miao et al. (2005)
CA	2	nr	P	32,89[a] 47,03[e]	0,25[a] 0,62[e]		Daneshvar et al. (2012)
CN	4	F:1	P	3,4-6,6			Sui et al. (2010)
ROK	3	12 E	P	9,75-36,86 22,9[a]	0,0025-0,45 0,15[a]	13,05-56,94 27,1[a]	Choi et al. (2008)
ES	3	8 E	24hFPC		0,570-0,710 1[e]		Jelic et al. (2011)
ES	2	F:5	nr	0,420-40,12	0,060-0,480		Pedrouzo et al. (2007)
ES	4	NR	24hFPC	0,22-11,44 2,805[a]	<LOD-2,15 0,31[a]		(Santos et al. 2007)
ES	5	2 ans	C (24h)	0,019- 18,17 (0,215 – 5,52)[a]	0,014 - 1,59 (0,085 - 0,274)[a]	0,003 - 4,234 (0,027-0,282)[a]	Bueno-Martínez et al. (2012)
WB	19	24 E	24hFPC C (24h)		0,120-1,55 0,419[a]		Terzic et al. (2008)
CH	13	16 E	C (24h)	7-73			Buerge et al. (2003)
RU	3	1 semaine	nr		1,24-1,83		Zhou et al. (2009)
AL	1	F:5	24hFPC	147 ±76[a]			Ternes et al. (2001)
AL	nr	nr	C (24h)	230[a] 640[e]	1,78[a] 3,8 [e]		Heberer (2002)
FR	21	32 S	24hFPC	4[a] 4[c]		178,7 [a] 200[c]	Soulier et al. (2011) Martin Ruel et al. (2012)

Pays - EU: Etats-Unis; CA: Canada; CN : Chine; ROK: République de Corée; ES: Espagne; WB: Région des Balkans occidentaux (Bosnie-Herzégovine, Croatie et Serbie); CH: Suisse; RU: Royaume-Uni; AL: Allemagne; FR: France
Type d'échantillonnage - P: ponctuel; C: composite; HGS: Échantillonnage ponctuel à toutes les heures; FPC: Échantillonnage composite proportionnel au débit
Concentrations - min-max; a: moyenne arithmétique; b: moyenne géométrique; c: médiane; d: EMC; e: maximum

1.2.3 Contaminants microbiologiques

Les concentrations en Bactéries Fécales Indicatrices (BFI) mesurées dans les surverses varient de plusieurs ordres de grandeur (Tableau 1.7). Le suivi des concentrations en parasites a également été réalisé et des concentrations variant entre 59 et 4.10^4 oocystes de *Cryptosporidium* et entre 200 et 3.10^5 kystes de *Giardia* ont été reportées (Tableau 1.7). Plus récemment, des concentrations moyennes en adénovirus de $5,4.10^5$ virus/L ont été mesurées dans les DEU (Fong et al., 2010). Les disparités dans les gammes de concentrations reflètent les différences de durée de l'évènement pluvieux, d'intensité de la pluie, des caractéristiques des bassins de drainage, des procédures d'échantillonnage (nombre d'échantillons collectés et fréquence de prélèvement) et du type d'échantillon prélevé (ponctuel/composite) (Tableau 1.7). Plusieurs des études reportées au Tableau 1.7 ont observé des corrélations entre les concentrations de paramètres physico-chimiques, de métaux et de concentrations en BFI à partir d'échantillons appariés (Passerat et al., 2011; Soonthornnonda & Christensen, 2008). Ces corrélations peuvent être utilisées pour estimer la contribution des eaux usées, des eaux de ruissellement, des eaux souterraines ou des dépôts présents dans les égouts aux concentrations mesurées dans les DEU (Passerat et al., 2011; Soonthornnonda & Christensen, 2008). Cependant, les concentrations en BFI dans les surverses sont généralement plus élevées que celles mesurées dans les eaux usées traitées (Passerat et al., 2011) et peu de données concernant les dynamiques des BFI dans les surverses sont disponibles. Des données supplémentaires sont donc nécessaires pour mieux comprendre les variations des concentrations en BFI dans les DEU.

1.2.4 Produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP)

Les PPSP ont fréquemment été détectés en eaux de surface et souterraine (e.g. Petrie et al. (2014) et Focazio et al. (2008)) ainsi que dans les eaux usées traitées et nontraitées (e.g. Petrie et al. (2014), Roig (2010) et Monteiro and Boxall (2010)). En revanche, peu d'études concernant l'occurrence des micropolluants organiques dans les DEU ont été effectuées. Les études sur la caractérisation des concentrations mesurées dans les affluents des StaRRE sont nombreuses et peuvent être utilisées pour estimer les concentrations dans les DEU. Un bilan des concentrations de trois PPSP (caféine (CAF), carbamazépine (CBZ) et acétaminophène (ACE)) fréquemment retrouvés dans les affluents de StaRRE a été reporté au Tableau 1.8. Les concentrations présentées varient selon une

large gamme de valeurs en raison de la diversité des méthodes analytiques et des stratégies d'échantillonnage employées. On remarque, par exemple, que (1) différentes méthodes d'échantillonnage ont été utilisées (échantillon ponctuel, composite et composite proportionnel au débit) et (2) différentes fréquences et durées de suivi ont été proposées dans les protocoles d'échantillonnage (Miège et al. (2009) et Tableau 1.8). Tel que précédemment discuté par Ort et al. (2010), le type d'échantillonnage, la fréquence et la durée de suivi peuvent tous influencer les concentrations en PPSP mesurées.

Les travaux de Phillips et al. (2012) ont été la première étude ayant publié les concentrations en PPSP mesurées dans les eaux de surverse non traitées. Ils ont étudié la contribution relative d'hormones stéroïdiennes et de plusieurs PPSP provenant de DEU et d'effluents de StaRRE. La dilution par les eaux de ruissellement a été identifiée comme étant le facteur principal contrôlant les concentrations en PPSP dans les DEU et a également été associée à une augmentation de la charge hydraulique et à la diminution de la performance du traitement biologique de la StaRRE.

Les concentrations dans les DEU dépendant des concentrations des eaux usées et des eaux de ruissellement, un suivi des concentrations au niveau de la StaRRE ainsi qu'au niveau de la conduite de débordement par temps de pluie apparait nécessaire. La comparaison entre les charges rejetées par les DEU et la StaRRE permettra également d'évaluer la contribution des DEU à la charge annuelle en contaminants rejetés dans le milieu récepteur.

1.2.5 Variabilités temporelles

Toutes les études dans lesquelles plusieurs échantillons ont été prélevés durant un DEU ont mis en évidence une variation significative des concentrations au cours de l'évènement.

Les protocoles expérimentaux ayant une fréquence de prélèvement rapprochée et une durée de suivi importante permettent de suivre l'évolution des concentrations durant une surverse. Les auteurs ont observé soit aucune évolution, soit une diminution des concentrations (Bailey, 2007; Suárez & Puertas, 2005) au cours des évènements. De plus, dans la majorité des études ayant observé des variations des concentrations, un pic des concentrations en contaminant a été remarqué durant les 15, 30 ou 60 premières minutes de l'évènement (Bailey, 2007; Diaz-Fierros T et al., 2002; Gupta & Saul, 1996b; Passerat et al., 2011).

Les hypothèses posées permettant d'expliquer les augmentations des concentrations des paramètres physico-chimiques et microbiologiques dans les surverses sont : (1) la remise en suspension de dépôts, également appelés sédiments, accumulés dans les égouts lors de l'augmentation du débit et (2) le lessivage et le transport des particules par le ruissellement des surfaces urbaines. Les concentrations en MES suivent en général l'évolution du débit. La charge en polluants lors du "first flush" dépend (1) de l'intensité maximale de la pluie; (2) de la durée de la période sèche précédant la surverse; et (3) de la durée de l'évènement de pluie (Gupta & Saul, 1996b).

Afin de suivre l'évolution des concentrations en contaminants dans les DEU, il apparait nécessaire d'effectuer des prélèvements avec une fréquence rapprochée, surtout lors des 30 premières minutes. Une meilleure caractérisation des concentrations en contaminants présents dans les DEU est nécessaire afin : (1) d'évaluer l'impact écotoxicologique des contaminants sur le milieu récepteur (Fent et al., 2006); (2) de concevoir des procédés de contrôle et de traitement des DEU; et (3) d'estimer les concentrations de pointe au niveau des prises d'eau potable, concentrations qui permettent de fixer les exigences de traitement afin de faire face au pire cas de qualité de l'eau entrant dans l'usine de traitement (Dorner et al., 2006).

1.2.6 Dépôts présents dans les conduites d'égouts

Les DEU sont des sources de pollution pour le milieu récepteur car elles rejettent des eaux usées non traitées, mais également des dépôts qui se forment dans la majorité des réseaux d'égouts. Par exemple, dans l'étude d'Harremoës (1982), l'appauvrissement en oxygène du milieu récepteur suite à un DEU a été en partie causé par la demande chronique et retardée qui est exercée par les sédiments des égouts et qui représente 35% de la demande totale.

Les dépôts se forment à cause des caractéristiques des conduites (taille, forme, pente), de leur localisation dans le réseau, de discontinuités hydrauliques, notamment une vitesse d'écoulement trop faible (inférieure à la vitesse de décantation des particules), et des caractéristiques des particules (Ashley & Crabtree, 1992; Ashley et al., 2000; Bertrand-Krajewski et al., 1998; Field et al., 2003).

Les dépôts peuvent être classés selon 5 types : (1) le type A, qui correspond à un dépôt grossier au fond du collecteur, peu organique et qui représente généralement, en termes de masse, le dépôt le plus important; (2) le type B, qui est similaire au type A mais bétonné par l'addition de matière

grasse, de bitume ou de ciment en une masse solide; (3) le type C, défini comme étant un dépôt fin, mobile et organique se situant à l'interface eau-sédiments; (4) le type D étant un biofilm bactérien accroché aux parois des conduites autour du niveau d'eau moyen; et (5) le type E, qui est composé de dépôts organiques et de minéraux à grains fins et que l'on trouve principalement dans les réservoirs de stockage des eaux de ruissellement (Crabtree, 1989). Aucun prélèvement n'est en général effectué sur le dépôt de type B, qui est immobile, ainsi que sur le type E, qui est retrouvé dans les réservoirs et non dans les conduites.

Le contenu en matière organique de la couche C est beaucoup plus élevé que celui de la couche A, avec des concentrations en DCO et DBO_5 pouvant être jusqu'à 25 fois et 8 fois plus importantes, respectivement (Ahyerre, 2001; Ashley & Crabtree, 1992; Crabtree, 1989). La couche organique C s'accumule par temps sec dans le réseau d'égouts au niveau de l'interface eau-sédiments, dans des zones où la contrainte de cisaillement est inférieure 0,5 N/m^2 (Ahyerre, 2001; Ahyerre et al., 2001a; Crabtree, 1989; Verbanck, 1995). L'érosion de cette couche se produit progressivement avec les augmentations de débits et s'intensifie avec chaque augmentation de la contrainte de cisaillement (Ahyerre et al., 2001b). Même si l'érosion a lieu durant la totalité de l'évènement pluvieux, les flux en MES plus élevés sont rejetés avec le débit maximal et ont été observés jusqu'à 30 minutes après le pic (Chebbo et al., 2001). Cette couche a été reconnue comme étant la source principale des particules érodées retrouvées dans les DEU, et plus particulièrement dans le 'first flush' (Ahyerre et al., 2000; Arthur & Ashley, 1998; Crabtree, 1989). Sa remise en suspension contribue de manière significative aux concentrations et aux charges mesurées durant les DEU. Cette contribution peut, en effet, atteindre, dans certaines circonstances, jusqu'à 80% des charges totales en MES, en MVES ainsi qu'en entérocoques et jusqu'à 70% des charges totales en *E. coli* (Chebbo et al., 2001; Gasperi et al., 2010; Gromaire et al., 2001; Passerat et al., 2011). La contribution des sédiments peut varier de 10 à 70% d'un évènement pluvieux à l'autre en fonction de l'intensité de la pluie (Gasperi et al., 2010).

Le biofilm (ou type D) a également un contenu organique et métallique élevé, les métaux provenant essentiellement des eaux de ruissellement (cadmium, plomb et zinc notamment) (Ahyerre, 2001; Chebbo et al., 2001; Gromaire et al., 2001). Les égouts peuvent donc être considérés comme des réacteurs physico-chimiques affectant la qualité des DEU.

Les dépôts sont, également, des réservoirs à fortes concentrations en bactéries, virus et protozoaires se concentrant principalement sur la couche organique, source de nutriments (Arthur et al., 1996; Ashley & Dabrowski, 1995; Rechenburg et al., 2006). Des concentrations moyennes en coliformes fécaux de $2{,}8.10^3$MPN/g ont été mesurées dans les dépôts et la capacité des coliformes et des streptocoques fécaux à survivre et à se multiplier dans les sédiments pendant au moins 9 jours a été démontrée (Ellis & Yu, 1995). Les concentrations en indicateurs microbiologiques peuvent également augmenter d'un facteur 2 entre le temps sec et la surverse lors de la remise en suspension des sédiments (Ellis & Yu, 1995). Des DEU déclenchés par des fortes intensités de pluie entrainent des concentrations en bactéries et parasites plus élevées que des évènements déclenchés par des pluies de faible intensité mais plus longs puisqu'ils entrainent le décrochage de l'ensemble du dépôt organique.

La teneur en matière organique est un des facteurs déterminant dans la rétention des composés pharmaceutiques dans les sols (C. F. Williams et al., 2006). Tel que montré précédemment, la couche des dépôts au niveau de l'interface eau-sédiments a une haute teneur en matière organique, faisant des dépôts, des réservoirs potentiels de PPSP. La carbamazépine est considérée comme ayant une affinité modérée avec les sédiments en raison de son faible coefficient de partage octanol-eau (Kow), mais l'estimation du partitionnement[6] ne peut pas juste dépendre de ce coefficient (Scheytt et al., 2005). En effet, ce mécanisme dépend également de la teneur en matière organique, du degré de dissociation des PPSP et des mécanismes de sorption tels que l'affinité électrochimique et l'interaction hydrophobique (Drillia et al., 2005; C. F. Williams et al., 2006; Williams et al., 2009; Yamamoto et al., 2009). La carbamazépine a précédemment été analysée dans des sédiments (da Silva et al., 2011; Löffler et al., 2005; M. Williams et al., 2006), incluant des sédiments sableux à faible teneur en matière organique (Scheytt et al., 2005), et également des sols (Chefetz et al., 2008; Drillia et al., 2005; Kinney et al., 2006a; C. F. Williams et al., 2006), des biosolides (Gottschall et al., 2012; Kinney et al., 2006b; Miao et al., 2005), du charbon activé (Ternes et al., 2002), des boues activées (Jelic et al., 2011; Stamatelatou et al., 2003) ainsi que des colloïdes (Maskaoui & Zhou, 2010). La carbamazépine a été présentée comme étant un composé non mobile une fois qu'il a été adsorbé sur la couche de terre arable (Oppel et al., 2004). Toutefois, les solides peuvent par la suite être entrainés par les eaux de ruissellement et transportés jusqu'aux cours d'eau

[6] Traduction personnelle de 'partitionning'

où la désorption de la carbamazépine peut avoir lieu. L'association de la carbamazépine avec la matière organique permet d'améliorer la mobilité du composé formé, qui peut se déplacer entre la couche végétale et le sous-sol et par la suite être lessivé vers les sédiments de rivière (Oppel et al., 2004). L'acétaminophène n'a pas souvent été détecté dans les sédiments, probablement en raison de sa transformation quasi immédiate au contact des sédiments (Löffler et al., 2005). Cependant, l'acétaminophène a néanmoins été détecté dans des sols (Kinney et al., 2006a; M. Williams et al., 2006), des particules décantables de StaRRE (Lahti & Oikari, 2011) ainsi que, plus récemment, dans des sédiments de rivière (da Silva et al., 2011) et de canal (Guérineau et al., 2014). Les concentrations en acétaminophène dans les sédiments peuvent augmenter avec la présence proche de rejets d'eaux usées (Guérineau et al., 2014). Des concentrations en caféine ont déjà été mesurées dans les sols (Kinney et al., 2006a), les sédiments (Lin et al., 2010; M. Williams et al., 2006) et les biosolides (Miao et al., 2005). Le processus de sorption de la caféine sur les sédiments minéraux a été étudié comme étant irréversible (Lin et al., 2010) mais ce composé a été suspecté d'avoir une mobilité élevée après une sorption avec des sols à haute teneur organique (Zhang et al., 2013).

La variabilité importante de la remise en suspension des dépôts dépend du bassin de drainage, de la configuration du réseau d'égout, de l'intensité de la pluie et de la période précédente de temps sec.

Les dépôts étant des réservoirs potentiels pour les contaminants microbiens et chimiques, des études sont nécessaires pour évaluer (1) les concentrations en contaminants pathogènes pouvant être remises en suspension et (2) les composés chimiques comme traceur de contamination humaine afin d'évaluer le risque sanitaire associé aux DEU.

Peu d'informations concernant les processus dynamiques d'*E. coli*, des MES et des PPSPs au cours de DEU sont disponibles. Ces données sont toutefois nécessaires pour évaluer la réponse du système en cas de changements au sein du bassin de drainage, tels que la mise en place de pratiques de gestion optimale ou d'unités satellites de traitement. La remise en suspension des dépôts contribue aux charges totales en MES rejetées tout au long du débordement, et non seulement durant les premières 30 minutes (Gromaire et al., 2001). Toutefois, à notre connaissance, des études similaires n'ont pas encore été réalisées sur les paramètres microbiologiques ni sur les PPSP. Les concentrations et charges mesurées dans les DEU fournissent des indications sur les concentrations et charges potentielles qui seraient rejetées par la StaRRE en cas d'échec du traitement. De plus,

l'analyse temporelle des charges rejetées par les DEU est nécessaire pour évaluer les stratégies de contrôle et de traitement des DEU.

1.2.7 Caractérisation et quantification du 'first flush'

Le 'first flush' est un concept étudié depuis les années 1970, principalement pour les paramètres caractéristiques des eaux de ruissellement, notamment les matières en suspension, les métaux, les huiles et graisses ainsi que les nutriments, et il continue d'être grandement débattu. Le concept de 'first flush' a été développé pour évaluer la concentration ou la charge principale en polluants rejetée lors de la première partie d'un évènement qui devra être (1) traitée immédiatement par des pratiques de gestion optimales telles que des bassins de décantation ou (2) retenue dans des réservoirs ou tunnels afin d'être traitée par la suite à la StaRRE. Une meilleure connaissance du phénomène du 'first flush' permettrait d'améliorer la conception des pratiques de gestion optimales ou les stratégies de développement à faible impact afin de respecter les critères de rejets aux milieux récepteurs. Le 'first flush' peut être associé aux concentrations ou aux masses rejetées en fonction des différentes définitions, des objectifs de contrôle et/ou des normes de rejets dans le milieu récepteur.

1.2.7.1 'First flush' déterminé à partir des concentrations

Dans le cas des concentrations, le 'first flush' est généralement associé à une concentration en contaminants significativement plus élevée au début de l'évènement qu'à la fin (Colston, 1974) et ce phénomène a souvent été observé, tel que discuté à la section précédente. Deux formes typiques de l'évolution des concentrations pendant la surverse peuvent être observées : les concentrations en contaminants observées durant la surverse sont (1) soit inférieures ou égales à celles de l'égout par temps sec et le pic des concentrations précède celui de débit (Type A), ou (2) soit supérieures à celles de l'égout par temps sec et le pic des concentrations coïncide avec celui de débit (Type B) (Gupta & Saul, 1996a; Thornton & Saul, 1986). Pour le type A, le pic de concentrations en MES ou en métaux précédant le pic de débit est certainement causé par le lessivage des polluants accumulés sur les routes ou dans les égouts par les premières eaux de ruissellement et qui précède l'arrivée du flux principal de débit dans la surverse (Lee & Bang, 2000). Le type B a été observé lorsque la période sèche précédant l'évènement avait duré plus de 3 jours ou si l'intensité de pluie maximale était supérieure à 6-7 mm/h (Thornton & Saul, 1986, 1987).

Le concept de ‘first flush’ saisonnier a également été développé et correspond au rejet de concentrations ou de masses significativement plus élevées lors des premiers épisodes de pluie d’une saison pluvieuse par rapport aux concentrations ou charges de la fin de la saison. Ce phénomène a, par exemple, été rapporté en Californie où l’hiver pluvieux est précédé de plusieurs mois sans aucune précipitation (Lee et al., 2004); toutefois, une période de temps sec d’au moins 100 jours est nécessaire (Lee et al., 2004; Stenstrom & Kayhanian, 2005).

Le phénomène de ‘first flush’ est aussi spécifique à la pluviométrie et au bassin drainé. De nombreuses études ont mis en évidence, dans les années 70-80, que le phénomène de ‘first flush’ a régulièrement lieu dans les égouts combinés (Thornton & Saul, 1986, 1987). Des épisodes de ‘first flush’ des concentrations n’ont pas lieu pour tous les évènements de surverse au sein d’un même réseau ni dans tous les réseaux. Plus le bassin de drainage est petit, plus l’occurrence du ‘first flush’ pourrait être fréquente (Gupta & Saul, 1996a; Thornton & Saul, 1986). En général, les ‘first flush’ sont observés durant la première heure suivant le début de la pluie. Or, plus la superficie du bassin de drainage est importante, plus le temps de séjour sera élevé; ou plus le bassin de drainage est complexe, plus il est composé d’une multitude de sous-bassins de temps séjours différents limitant la possibilité d’un ‘first flush’. Lee and Bang (2000) ont, par exemple, observé ce phénomène dans des réseaux drainant moins de 100 hectares et constitués de plus de 80% de surfaces imperméables. En effet, le ruissellement sur de larges surfaces imperméables accroit les vitesses de l’eau et intensifie le transport de polluants (Stenstrom & Kayhanian, 2005). Plusieurs études ont rapporté des ‘first flush’ reliés au ruissellement sur des stationnements ou des autoroutes (Chow et al., 2011; Han et al., 2006a; Ma et al., 2002; Sansalone & Buchberger, 1997; Sansalone & Cristina, 2004).

De nombreuses études ont analysé les corrélations de la présence de ‘first flush’ avec la période de temps sec précédent l’évènement échantillonné, l’intensité de la pluie, le débit, la superficie du bassin versant drainé, les pentes des conduites ou du bassin versant (Deletic, 1998; Han et al., 2006a; Hathaway & Hunt, 2011; Lee et al., 2002; McCarthy, 2009; Saget, 1994) mais aucune relation claire n’a été trouvée. Gupta et Saul (1996a) ont établi des relations empiriques entre la masse de polluants rejetée et quelques caractéristiques de l’évènement pluvieux telles que la durée de la pluie, son intensité maximale et la période de temps sec mais elles demeurent spécifiques au site étudié. Saget (1994) a mis en évidence des corrélations significatives entre les masses rejetées et les variables de pluie mais ces corrélations diffèrent selon le paramètre suivi et le site testé. La

généralisation de ces équations n'est donc pas possible (Bertrand-Krajewski et al., 1998). Le phénomène de 'first flush' est très complexe et spécifique à chaque site et il risque plus d'avoir lieu lors d'évènements de pluie intense. Les études devraient plutôt se concentrer sur le volume critique de ruissellement qui pourrait générer un lessivage et un décrochage de la pollution présente dans les conduites (Deletic, 1998).

Han et al. (2006a) ont développé une méthode de quantification du 'first flush' des concentrations à partir du ratio entre la Concentration Moyenne Partielle par Évènement (CMPE)[7] et la Concentration Moyenne par Évènement (CME)[8] : CMPE/CME. La CME exprime une concentration en contaminants à débit pondéré, rejetée sur l'ensemble d'un évènement, et est déterminée par l'intégration du ratio entre le produit des concentrations et du débit (Équation 1-1) (Wanielista & Yousef, 1993). La CMPE est calculée à partir de l'équation 1-1 pour une durée spécifique (par exemple 30 minutes) ou pour un volume de ruissellement spécifique (par exemple, 10%) et permet de montrer la diminution des concentrations au cours de l'évènement. Un ratio CMPE/CME supérieur à 1 indique la présence d'un 'first flush'(Han et al., 2006a).

$$CME = \frac{M}{V} \qquad \text{(Équation 1-1)}$$

CME : Concentration moyenne par évènement (mg/L)

M : masse rejetée (mg)

V : volume rejeté (L)

1.2.7.2 'First flush' déterminé à partir des charges

Le 'first flush' a lieu lorsque les charges au début de l'évènement sont significativement plus élevées que celles rejetées à la fin de l'évènement. L'observation de ce phénomène est assez rare dans les eaux de ruissellement puisqu'en général, les concentrations élevées sont rejetées au tout début de l'évènement et sont associées à un débit faible (Kayhanian & Stenstrom, 2008).

Les méthodes traditionnelles, utilisées pour déterminer s'il y a ou non un 'first flush', se basent sur les courbes de la distribution des masses des polluants cumulées en fonction de la distribution temporelle (courbes M(t)) ou des volumes rejetés (courbes M(V)). Une concentration constante en contaminants durant l'évènement est alors indiquée par une droite de pente de 45º. Helsel et al.

[7] Traduction personnelle de Partial Event Mean Concentration (PEMC)

[8] Traduction personnelle d'Event Mean Concentration (EMC)

(1979) considèrent que le ‘first flush’ est significatif si la pente initiale de la courbe M(t) est supérieure à 45°. Geiger (1987) a proposé une définition plus restrictive en précisant que l’écart maximal entre la courbe M(V) et la bissectrice doit être supérieur à 0,2. La définition de Gupta et Saul (1996a) se base sur les courbes de distribution des masses et des volumes en fonction du temps et propose que le ‘first flush’ corresponde au moment où la différence entre la courbe cumulative de masse et celle de volume est maximale. La définition la plus classique est celle du ‘first flush’ 30/80, selon laquelle le ‘first flush’ est présent si au moins 80% de la masse totale est rejetée avec les premiers 30% du volume total de l’évènement (Bertrand-Krajewski et al., 1998). D’autres définitions, basées sur le même principe, ont été développées et testées pour des réseaux d’assainissement combinés et/ou séparatifs; la masse en contaminants rejetée avec les premiers 40 à 80% du volume variait entre 20 et 25% (Barco et al., 2008; Sansalone & Buchberger, 1997; Stahre & Urbonas, 1990; Wanielista & Yousef, 1993). La définition du ‘first flush’ 30/80 est très stricte et implique que les pics de concentrations et de débit soient simultanés. Elle permet également de maintenir l’objectif de dimensionner un ouvrage de rétention et/ou de traitement de taille raisonnable pour récupérer la plus grande quantité possible de contaminants (Bertrand-Krajewski et al., 1998). Un suivi de 197 évènements de pluie a été effectué au sein de 6 systèmes d’égouts combinés et de 6 séparatifs à Paris (Bertrand-Krajewski et al., 1998). Pour la moitié des 117 épisodes suivis dans les réseaux combinés, la moitié de la masse totale des polluants a été transportée avec les premiers 47% du volume total rejeté et 80% de la masse avec les premiers 79% du volume total (Bertrand-Krajewski et al., 1998; Saget et al., 1996). Aucun ‘first flush’ n’a donc été observé selon la définition du 30/80 dans ce cas et la fréquence d’occurrence réelle de ce phénomène ne serait que de 1% (Lee et al., 2002; Lee et al., 2003). Les définitions précédentes ne permettent pas à elles seules d’établir une méthodologie de conception fiable pour les installations de traitement des DEU car elles ne prennent pas en compte la complexité et la variabilité intrinsèque des phénomènes impliqués et l’utilisation du concept devrait être abandonnée selon plusieurs auteurs (Bertrand-Krajewski et al., 1998).

Cependant, une méthode alternative a été élaborée. Les ratios des ‘first flush’ massiques (RFFM)[9] correspondent au rapport entre les pourcentages des masses cumulées rejetées et des volumes cumulés pour un point précis (Équation 1-2) (Ma et al., 2002).

[9] Traduction personnelle de Mass First Flush Ratio (MFFR)

$$\text{RFFM} = \frac{\frac{\int_0^n C(t)Q(t)dt}{M}}{\frac{\int_0^n Q(t)dt}{V}} \quad \text{(Équation 1-2)}$$

C(t) : Concentration du contaminant à t (mg/L)

Q(t) : Débit de ruissellement à t (L/min)

M : Masse totale du contaminant (g)

V : Volume total (m^3)

Ces ratios s'obtiennent par lecture des courbes M(V) (Figure 1.3). Par exemple, pour déterminer un ratio FFM_{10}, c'est-à-dire le ratio du first flush massique pour une fraction de volume de 10%, on divise la valeur de la masse rejetée pour une fraction de volume de 10% par 10. Une valeur de FFM_{10} égale à 4,5 revient à dire que 45% de la masse a été rejetée avec les 10 premiers pourcents du volume (Figure 1.3). La définition du first flush 30/80 équivaut à avoir un $FFM_{30} > 2,66$. Plus la valeur du ratio est élevée, plus l'effet first flush est important (Kayhanian & Stenstrom, 2008). Les avantages de l'utilisation de ce ratio sont de pouvoir réaliser des analyses statistiques, de comparer les évènements (Han et al., 2006a; Han et al., 2006b) et d'apporter des informations nécessaires au dimensionnement de réservoirs de stockage.

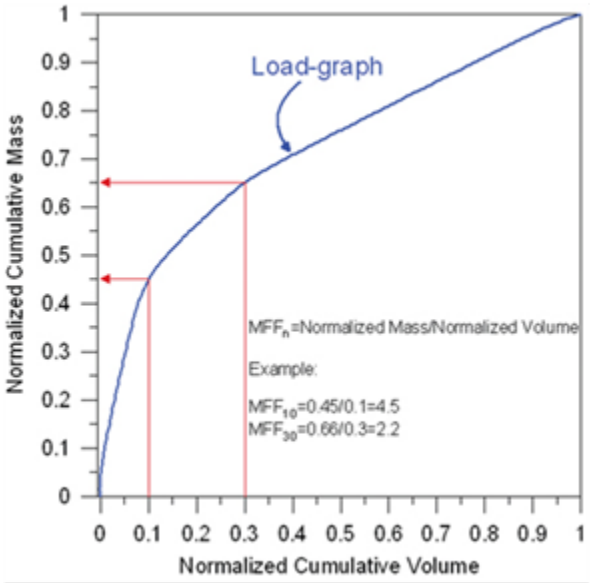

Figure 1.3 : Détermination graphique des First Flush Massiques (FFM) – tiré de Kayhanian and Stenstrom (2008)

Plus récemment, une nouvelle définition a été développée en Australie et est basée sur le volume de ruissellement nécessaire pour réduire les concentrations en contaminants à leur niveau de référence, c'est-à-dire à celui de temps sec (Bach et al., 2010a, 2010b).

L'étude du 'first flush' permet d'obtenir des informations nécessaires à la compréhension du réseau d'égout ainsi qu'au dimensionnement des technologies de rétention. Toutefois, ces études sont généralement basées sur un ou deux composés et la rétention du 'flush' d'un composé ne garantit pas la rétention du second.

1.3 Impacts des débordements d'eaux usées

Les premières données montrant l'impact des débordements d'eaux usées sur la qualité de l'eau du milieu récepteur datent des années 1960 (Marsalek, 1997; Waller & Novak, 1980). La conception des ouvrages de débordement était alors basée sur le respect d'un nombre annuel maximal de surverses ou sur le facteur de dilution au moment du déclenchement de la surverse, déterminé à partir du débit de ruissellement et du débit par temps sec. Ces calculs ne prenaient pas en considération le milieu récepteur (Johansen et al., 1984). La réduction de la fréquence des débordements n'est devenue une préoccupation qu'au début des années 1990 lorsque les surverses sont devenues la source principale de pollution des rivières et des lacs (Even et al., 2007; Marsalek, 1997). En effet, (1) les impacts cumulatifs des rejets d'égouts pluviaux, de raccordements croisés et des débordements d'eaux usées sur le milieu récepteur sont devenus évidents après plusieurs décennies, et (2) les impacts des surverses se sont révélés d'autant plus significatifs lorsque les StaRRE se sont équipées de traitement secondaire voire tertiaire limitant ainsi les concentrations rejetées (Johansen et al., 1984).

Les premières caractérisations des impacts des surverses étaient basées sur les paramètres physico-chimiques tels que la diminution des concentrations en oxygène, la DBO_5, les MES, le phosphore et certains métaux (Bennerstedt & Brattberg, 1984; Bijlmakers & Dierx, 1990; Ellis, 1989; Harremoës, 1982; Hvitved-Jacobsen, 1982; Mulliss et al., 1997).

Dans cette partie, un bilan général sera réalisé sur l'impact des débordements d'eaux usées sur le milieu récepteur, puis, plus de détails seront apportés sur l'impact sur la santé humaine ainsi que sur la qualité de l'eau au niveau des prises d'eau.

1.3.1 Impacts des débordements d'eaux usées sur le milieu récepteur

Les débordements d'eaux usées peuvent affecter divers usages du milieu récepteur tels que les zones récréatives, l'eau potable et le maintien de la vie aquatique. Un résumé des impacts potentiels en fonction des types de contaminants qui composent les eaux de débordement d'eaux usées est présenté au Tableau 1.9.

Malgré leur caractère épisodique, les rejets de surverse répétés impliquent des effets chroniques sur le milieu récepteur. Les effets sont considérés comme étant immédiats, c'est-à-dire en l'absence de rémanence de longue durée, ou différés, dus à une répétition des évènements de pluie (Parent-Raoult & Boisson, 2007). Les effets immédiats des surverses sont caractérisés par des effets physiques et par une dégradation de la qualité de l'eau du milieu récepteur. En effet, l'érosion des berges et une remise en suspension des sédiments sont provoquées par un changement brutal du régime hydraulique du milieu récepteur lors de la surverse. De plus, les composés générant des effets aigus sont (1) les matières en suspension qui augmentent la turbidité, (2) les eaux fortement désoxygénées ou les matières organiques biodégradables consommant l'oxygène entrainant une diminution immédiate de la concentration en oxygène dissous et limitant ainsi la survie des organismes aquatiques, (3) les ions ammonium pouvant se transformer en ammoniac selon le pH, (4) les métaux lourds, (5) les micropolluants organiques et minéraux, (6) les bactéries pathogènes; et (7) le chlore résiduel (Chambers et al., 1997; Parent-Raoult & Boisson, 2007).

Les effets différés sont causés par : (1) le dépôt et l'accumulation de matières en suspension et de sédiments qui peuvent entrainer des problèmes d'envasement et de colmatage, (2) les contaminants accumulés dans les sédiments tels que les matières organiques, les nutriments, les substances toxiques, les micropolluants organiques ou minéraux, les métaux lourds et les pathogènes qui sont transportés et éventuellement remis en suspension (House et al., 1993; Parent-Raoult & Boisson, 2007). Ces impacts ne se font pas uniquement ressentir à l'aval immédiat de l'ouvrage de débordement mais également sur des distances importantes pouvant atteindre plusieurs centaines de kilomètres (House et al., 1993).

La sévérité des impacts dépend du nombre et de la fréquence des surverses ainsi que du milieu récepteur, chaque milieu ayant son propre niveau de tolérance (Marsalek & Rochfort, 2004). Les impacts des surverses sont plus visibles dans les petits cours d'eau, les estuaires, les ports et les rives des lacs en raison du faible potentiel de dilution (Chambers et al., 1997; Marsalek et al., 1996).

Marsalek et al. (1996) ont, par exemple, observé que les concentrations en *E. coli* en rivière peuvent revenir à leurs valeurs de temps sec en l'espace de quelques heures suivant la surverse dans une rivière possédant un débit important (5 300 m^3/s). En revanche, la diminution des concentrations peut demander 1 à 2 journées si la rivière a un temps de séjour important et des zones de stagnation. Ces pics de contaminations rémanents devraient être pris en compte lors du dimensionnement de l'usine de production d'eau potable car ils pourraient être la cause d'épidémie en cas de dysfonctionnement au niveau du traitement.

Tableau 1.9 : Impacts des contaminants présents dans les eaux de débordements sur le milieu récepteur - Adapté de Chambers et al. (1997); Lijklema et al. (1993); Suárez and Puertas (2005); USEPA (2004)

Type de contaminants	**Substances**	**Effets sur le milieu récepteur**	**Usages touchés**
Nutriments	N_{tot} P_{tot}	Eutrophisation	Sources d'eau potable Maintien de la vie aquatique
Substances consommant l'oxygène	Matière organique (DCO et DBO)	Diminution de la concentration en oxygène dissous	Maintien de la vie aquatique Exploitation de crustacés et de mollusques
	Accumulation de la biomasse	Dommages ou mort de poissons	
Physiques	Température	Augmentation de la température Modification des dates du renversement	Maintien de la vie aquatique
	Débit	Érosion des berges Remise en suspension de sédiments	Sources d'eau potable
	MES/Sédiments	Augmentation de la turbidité, envasement, colmatage	
Substances toxiques	NH_4^+, NO_2^-	Toxicité	Sources d'eau potable Exploitation de crustacés et de mollusques Consommation de poisson
	Cl_2		
	Métaux Micropolluants organiques (HAP, PCB, COV, etc.)	Toxicité et bioaccumulation	Maintien de la vie aquatique
Contaminants microbiologiques	Bactéries pathogènes Parasites Virus	Contamination microbiologique	Sources d'eau potable Activités récréatives Exploitation de crustacés et de mollusques Consommation de poissons

1.3.2 Impacts sur la santé humaine

1.3.2.1 Généralités

De nombreuses études ont montré l´impact des DEU sur la qualité microbiologique de différents milieux récepteurs : des zones côtières (Hall et al., 1998; Katayama et al., 2004; Miossec et al., 2000; Noble et al., 2003), des rivières (Donovan et al., 2008; Fong et al., 2010; Gibson III et al., 1998; Hata et al., 2014; Kim et al., 2005; Marsalek et al., 1996; Passerat et al., 2011; Rechenburg et al., 2006), des lacs (Edge et al., 2010; Edge et al., 2007; Marsalek et al., 1996; McLellan et al., 2007; Scopel et al., 2006) et des criques (Edge et al., 2010).

Les impacts des DEU sur les zones d'activités récréatives ont été démontrés de nombreuses fois dans plusieurs articles (Chambers et al., 1997; Edge et al., 2010; Edge et al., 2007; House et al., 1993; Marsalek & Rochfort, 2004; USEPA, 2004). Aux États-Unis, notamment, les maladies causées par la contamination de plans d'eau ou de plages par les DEU ont été estimées entre 3 450 et 5 580 cas par année (USEPA, 2004). L'étude de Donovan et al. (2008) a estimé le risque annuel, c'est-à-dire la probabilité qu'un individu puisse être infecté sur une base annuelle, pour des personnes pouvant être en contact avec l'eau de la rivière Lower Passaic de contracter une gastroentérite à la suite d'un débordement. Le risque moyen estimé qu'un usager de la rivière (par exemple un nageur) puisse être contaminé par des streptocoques fécaux ou des entérocoques est de 0,68 et 0,67 respectivement. Cette probabilité d'infection diminue à 0,14 si on considère des visiteurs de la zone récréative, c'est-à-dire des pêcheurs, des personnes utilisant un bateau, ou des personnes pouvant patauger dans la rivière. La même analyse a été réalisée pour des sans-abris qui pourraient utiliser cette rivière pour se laver et le niveau de risque a été estimé à 0,88 pour les streptocoques fécaux et les entérocoques et à 1 pour *Giardia*.

On peut également noter que Fong et al. (2010) ont déterminé des concentrations en adénovirus dans les surverses allant de 6.10^4 à 10^6 virus/L et que l'étude de Rodriguez (2007) a démontré une augmentation significative des concentrations en adénovirus et norovirus dans la rivière pendant une surverse.

1.3.2.2 Cas connus de contamination de prises d'eau potable

Les charges ainsi que les concentrations en polluants sont étudiées afin d'évaluer l'impact des rejets urbains par temps de pluie sur le milieu récepteur. En ce qui concerne l'eau potable, les prises d'eau peuvent être sujettes à des concentrations sporadiques, certaines pouvant être intenses. Lorsque la protection de la source d'eau potable est visée, la concentration des contaminants pathogènes est le paramètre clé de risque car il détermine la dose infectieuse. En effet, lors d'un évènement de pointe, une augmentation significative des concentrations à l'eau brute peut dépasser les capacités de traitement de l'usine de filtration. De plus, le traitement peut connaître certaines déficiences et provoquer une épidémie (LeChevallier et al., 1991) et les interruptions de traitement constituent des périodes de risque importantes (Jaidi et al., 2009). La concentration moyenne annuelle en *Giardia* dans l'eau traitée ne doit pas dépasser 0,0007 kystes/100 L afin de maintenir un niveau annuel de risque d'infection inférieur à 10^{-4} (LeChevallier et al., 1991).

En Alberta (Canada), une épidémie de gastro-entérite a affecté 3000 personnes en février 1983 à Drumheller, une ville comptant 6 500 habitants. L'eau brute de l'usine provient de la rivière Red Deer qui présente de très faibles niveaux de contamination fécale. Selon les échantillonnages réalisés, cette usine serait dans la première classe du RQEP (classe 1), soit de bonne qualité. Le traitement de l'usine comportait une floculation, une filtration ainsi qu'une désinfection au chlore mais connaissait de nombreuses déficiences : la floculation ne fonctionnait pas depuis 4 mois et la chloration était inadéquate. L'émissaire de la station d'épuration située 4,5 km en amont de la prise d'eau rejetait les eaux usées traitées sur la même rive que la prise d'eau. Une enquête menée à la suite de l'épidémie a révélé que la station de pompage de la StaRRE était en travaux la veille du début de l'épidémie et que l'affluent avait été rejeté directement dans la rivière Red Deer par l'intermédiaire du trop-plein d'urgence de la station de pompage pendant au moins 2 heures. Cet affluent contenait des concentrations en coliformes fécaux de l'ordre de 10^7-10^8 UFC/100 mL (O'Neil et al., 1985). La cause de cette épidémie serait donc une combinaison entre les déficiences au niveau du traitement de l'usine de filtration et l'augmentation soudaine des concentrations des paramètres microbiologiques.

L'une des plus importantes épidémies de cryptosporidiose s'est déroulée en avril 1993 à Milwaukee (Wisconsin, USA). Au total, 403 000 personnes ont été malades et 104 personnes sont décédées (Hoxie et al., 1997). Deux usines de filtration desservent environ 800 000 personnes à

Milwaukee dont l'usine Howard (4.10^5 m^3/j) qui alimente la partie sud de la ville et l'usine Linwood (10^6 m^3/j) la partie nord. Les prises d'eau de ces deux usines, qui sont équipées d'un traitement conventionnel, se situent dans le Lac Michigan. La prise d'eau de l'usine Howard est située à 3,5 km de la rive à une profondeur de 19,1 m en face de Milwaukee, tandis que la prise d'eau de Linwood est située plus au nord, à 2 km de la rive et à environ 20,3 m de profondeur (Fox & Lytle, 1996). À première vue, il s'agit donc de prises d'eau typiques des grands lacs, en principe peu susceptibles à la contamination. La cause de cette épidémie est une contamination fécale importante au niveau de la prise d'eau simultanément à des défaillances d'exploitation de l'usine de filtration. La contamination a été confirmée à l'usine de filtration Howard et les enquêtes sanitaires qui ont suivi ont identifié deux sources possibles de contamination fécale: (1) l'émissaire de l'usine d'épuration de Jones Island qui se déverse près du port de Milwaukee et (2) le ruissellement et les surverses des trop pleins situés en rive, l'épidémie ayant été précédée par un évènement de pluie intense (Mac Kenzie et al., 1994). Il est troublant de noter qu'un rapport d'évaluation des sources avait été déposé le 26 mars 2003 par le Bureau of Drinking Water du Wisconsin Department of Natural Resources, quelques jours à peine avant cette éclosion (Wisconsin Department of Natural Resources, 2003). Ce rapport montre clairement l'impact des surverses et des rivières et ruisseaux se jetant à proximité du port de Milwaukee, dont la mauvaise qualité d'eau en rive, due à la présence de nombreux émissaires d'usines d'épuration, était connue. Plusieurs épisodes sévères de dégradation de la qualité de l'eau ainsi que des pointes sporadiques d'indicateurs microbiens à la prise d'eau avaient en outre été rapportés. Quelques années plus tard, une analyse statistique des données de qualité de l'eau à la prise d'eau et à diverses stations de mesures dans le lac pendant une période de 10 ans a démontré que la qualité de l'eau à la prise d'eau de Howard était influencée directement par les rejets de l'émissaire de la StaRRE Jones Island (Christensen et al., 1997). Suite à l'analyse de ces données, des actions correctives ont été prises parmi lesquelles l'amélioration des barrières de traitement, la relocalisation de la prise d'eau et la réduction des surverses de trop pleins combinés (Ab Razak & Christensen, 2001).

Une autre épidémie importante est celle de North Battelford (Saskatchewan, Canada) en 2001. La prise d'eau est située dans la rivière North Saskatchewan. La population touchée par une épidémie causée par *Cryptosporidium parvum* a été estimée entre 5 800 et 7 100 personnes (Commission North Battleford, 2002; Stirling et al., 2001). Les causes de l'épidémie sont la contamination fécale qui provenait à la fois de la contamination cumulée de la rivière North Saskatchewan par des rejets

urbains et agricoles et des rejets de la StaRRE située 3,5 km en amont ainsi que les déficiences du traitement de l'usine au niveau du clarificateur (Commission North Battleford, 2002). Le rejet de l'usine d'épuration de North Battleford se déverse en amont de la prise d'eau sur la même rive. La ville de North Battleford avait fait effectuer des essais sommaires de traçage montrant que le panache de dispersion de l'effluent de la StaRRE se collait à la rive nord de l'île Finlayson, qui est située en face de la prise d'eau. Les résultats de ces essais ont été sérieusement remis en question par la Commission d'enquête sur l'épidémie de North Battleford. Certains prélèvements en rivière ont d'ailleurs démontré que l'effluent de la StaRRE rentrait parfois dans la prise d'eau. De plus, les eaux usées traitées et rejetées par l'usine d'épuration contenaient des concentrations élevées de coliformes fécaux ($1{,}5.10^5$ UFC/100mL) malgré une obligation de désinfecter. Suite à l'épidémie de 2001, une amélioration du traitement d'eaux usées déversées immédiatement en amont est apparue indispensable quel que soit le traitement en place à l'usine de filtration et la commission d'enquête sur l'épidémie de North Battleford a recommandé la construction d'une autre StaRRE en aval de l'usine de filtration.

CHAPITRE 2 OBJECTIFS DE RECHERCHE ET PLAN EXPÉRIMENTAL

2.1 Objectifs

L'objectif principal du projet est de caractériser les concentrations et les charges associées aux débordements d'égouts unitaires et d'évaluer le risque sanitaire sur des prises d'eau potables situées en aval de ces rejets.

Les objectifs spécifiques de ce projet sont :

1. La caractérisation de la variabilité intra-évènement des concentrations et des charges en *E. coli*, MES et PPSP dans les eaux de débordements
2. L'analyse de la variabilité saisonnière des concentrations et des charges en *E. coli*, MES et PPSP dans les surverses
3. L'identification des sources (eaux usées, eaux de ruissellement, dépôts) des contaminants rejetés et l'estimation de l'évolution de leur répartition sur les charges rejetées au cours des évènements de surverses
4. L'évaluation de l'impact des débordements sur la qualité microbiologique de l'eau au niveau des prises d'eau potable

L'atteinte de ces objectifs va permettre de répondre à des questions fondamentales relatives à la protection des prises d'eau potable en milieu densément urbanisé :

- Quelles sont les sources importantes des contaminants rejetés ?
- Existe-t-il des variations caractéristiques des concentrations au cours d'un évènement ou entre les saisons ?
- Quelle est la période de rejets la plus critique pour les prises d'eau potable ?
- Les produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) peuvent-ils être utilisés comme traceur d'eaux usées dans les surverses ?
- Les PPSP peuvent-ils être utilisés comme traceur de surverse au niveau des prises d'eau potable ?

2.2 Hypothèses de recherche

Les hypothèses de recherche originales sur lesquelles repose ce projet sont présentées au Tableau 2.1.

2.3 Méthodologie

Afin de répondre aux 4 objectifs spécifiques, l'approche expérimentale a été réalisée selon 2 étapes :

1. La caractérisation de la variabilité intra-évènements ainsi que saisonnière des concentrations et des charges rejetées par les eaux de débordements.
2. L'évaluation de l'impact des débordements sur la qualité microbiologique de la rivière et des prises d'eau potable

Les campagnes d'échantillonnage qui ont été réalisées au niveau des surverses et de la rivière se sont déroulées entre août 2009 et août 2011.

La zone d'étude va tout d'abord être décrite pour présenter les différents points d'échantillonnage. Les protocoles d'échantillonnage sont ensuite détaillés pour chacune des étapes. Un aperçu des méthodes analytiques est également donné et un résumé de la méthodologie de ce projet est présenté en fonction des hypothèses de recherche au Tableau 2.2.

2.3.1 Zone d'étude

2.3.1.1 Réseaux d'égouts et StaRRE

Le réseau d'égouts échantillonné collecte les eaux usées d'environ 280 000 résidents de la grande région de Montréal et les achemine à une StaRRE (WWTP sur la Figure 2.1) ayant un traitement primaire avancé et traitant environ 240 000 m^3/j. Une cinquantaine de conduites de débordements situées le long du réseau d'égouts rejettent le long de la rive gauche de la rivière. L'émissaire de cette StaRRE est situé en aval de la zone d'étude. La caractérisation de deux TP de ce réseau d'égouts a été réalisée dans le cadre de cette thèse (voir la zone d'étude sur la Figure 2.1).

Tableau 2.1 : Objectifs spécifiques et hypothèses de recherche du projet

	Objectifs spécifiques	**Hypothèses**	**Originalité**	**Réfutabilité**
1	La caractérisation de la variabilité intra-évènement des concentrations et des charges en *E. coli*, MES et PPSP	La carbamazépine n'étant pas présente dans les eaux de ruissellement, ses concentrations permettent d'estimer la proportion d'eaux usées dans les eaux de surverses.	La proportion des eaux de ruissellement dans les eaux de surverses a précédemment été estimée à partir des données de conductivité mais pas à l'aide d'un PPSP utilisé comme traceur de contaminants en eaux usées	L'hypothèse sera réfutée si les corrélations entre *E. coli* et la CBZ, ne sont pas significatives dans les eaux usées
		Les concentrations en MES sont majoritairement influencées par la remise en suspension des dépôts. Les variations des concentrations en *E. coli* et en PPSP sont majoritairement dues à la variabilité intrinsèque des concentrations dans les eaux usées	L'analyse de la variabilité des concentrations en *E. coli* et en PPSP en fonction de la variabilité intrinsèque des concentrations de ces contaminants dans les eaux usées n'a jamais été étudiée	L'hypothèse sera réfutée si les corrélations entre les MES, *E. coli* et les PPSP sont significatives
2	L'analyse de la variabilité saisonnière des concentrations et des charges en *E. coli*, MES et les PPSP	Les concentrations et les charges mesurées lors des surverses de printemps sont plus faibles que celles des autres saisons en raison du fort potentiel de dilution associé à la fonte des neiges	La caractérisation des concentrations dans les surverses dues à la fonte des neiges n'a jamais été réalisée	L'hypothèse sera réfutée si les concentrations mesurées lors des évènements de surverses de fonte des neiges ne sont pas statistiquement différentes de celles des évènements des autres saisons
3	L'identification des sources des contaminants rejetés et	Un modèle temporel de répartition des sources peut	L'étude de la variation dans le temps de la contribution de	L'hypothèse sera réfutée si le modèle temporel de

Tableau 2.1 : Objectifs spécifiques et hypothèses de recherche du projet (suite)

	Objectifs spécifiques	**Hypothèses**	**Originalité**	**Réfutabilité**
	l'estimation de l'évolution de leur répartition lors des surverses	être développé à partir des charges provenant des eaux de ruissellement, des eaux usées et des dépôts en fonction du volume rejeté	chaque source aux charges rejetées de 3 types de contaminants n'a jamais été réalisée	répartition des sources ne donne pas des résultats cohérents avec l'analyse des sources provenant de l'étude des EMC en fonction du débit de surverse
4	L'évaluation de l'impact des débordements sur la qualité microbiologique de l'eau au niveau des prises d'eau potable	a. Les évènements de surverse sont des évènements transitoires qui constituent les conditions les plus critiques de contamination microbiologique des prises d'eau potable situées en aval d'ouvrages de surverse en milieu densément urbanisé	Le suivi direct des débordements au niveau des prises d'eau va permettre d'évaluer l'efficacité des protocoles routiniers de suivi microbiologique à estimer les concentrations de pointe entrant dans les usines	L'hypothèse sera réfutée si les pointes de contamination ne sont pas reliées à des évènements de pluie de plus de 6 mm ou de fonte des neiges pouvant générer des débordements
		b. Un PPSP ou une combinaison de PPSP peut être utilisé comme traceur de contamination fécale provenant des surverses au niveau des prises d'eau potable	L'estimation du volume d'eaux usées rejeté par les ouvrages de débordements et entrant dans les prises d'eau potable à partir des concentrations en PPSP n'a jamais été réalisée	L'hypothèse sera réfutée si les charges apportées par les surverses sont plus faibles ou du même ordre de grandeur que celles apportées par la rivière en amont des ouvrages de débordement

On dénombre environ 40 conduites de débordement qui rejettent le long de la rive droite de la rivière (Figure 2.1). Ces trop-pleins rejettent les eaux usées collectées par un intercepteur qui achemine les eaux d'environ 750 000 personnes à une StaRRE ayant un traitement primaire avancé et un débit moyen d'environ 2 600 000 m^3/j. L'effluent de cette StaRRE est rejeté dans une autre rivière que celle étudiée.

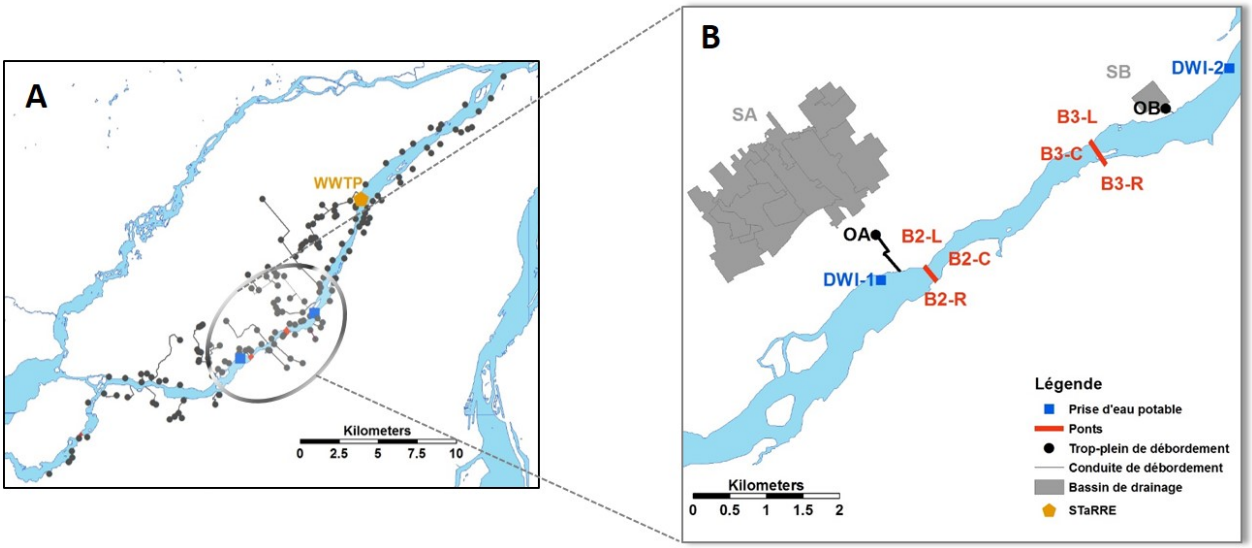

Figure 2.1: Carte de la zone d'étude (A) et de la zone d'échantillonnage (B)

2.3.1.2 Rivière et prises d'eau potable

L'étude a été menée sur un segment de rivière drainant un bassin-versant d'environ 146 000 km^2 et utilisé comme source pour deux prises d'eau potable (DWI-1 et DWI-2) (Figure 2.1). L'eau du segment de rivière étudiée provient d'un lac situé juste en amont qui est alimenté par une rivière recevant les eaux usées d'environ 1,2 millions de personnes. Le climat de la zone d'étude est de type continental avec des précipitations annuelles cumulant en moyenne 62,4 cm/an sous forme de pluie et 200 cm/an sous forme de neige, principalement de novembre à avril.

Des variations de 473 à 2 678 m^3/s du débit de la rivière (avec une valeur médiane annuelle de 1 186 m^3/s) ont été observées entre 2002 et 2011. La période d'étiage a lieu à la fin de l'été avec la plus petite valeur médiane de débit mensuel (776 m^3/s) qui a été mesurée en aout. Les hauts débits ont quant à eux été observés au printemps et sont dus à la fonte de neige locale en avril (valeur médiane de 1 795 m^3/s) ainsi qu'à la fonte des neiges du bassin-versant situé en amont en mai

(valeur médiane de 1 460 m^3/s). Le temps de résidence moyen dans le segment de rivière étudié varie de 2 à 5 heures.

Les deux prises d'eau potable alimentent environ 280 000 personnes. La largeur de la rivière est d'environ 520 m et 260 m au niveau des prises d'eau potable DWI-1 et DWI-2 respectivement et elles sont toutes les deux situées à environ 70 m de la rive gauche de la rivière. Une zone de rapides est située 8 km en amont de la première prise d'eau permettant un certain mélange des rejets.

2.3.1.3 Surverses

Un total de 27 TP a été localisé en amont des prises d'eau (DWI-1 et DWI-2) (Figure 2.1) sur les deux réseaux d'égouts présentés précédemment. Entre 2009 et 2011, un total de 2 258 débordements a été compilé sur les fiches SOMAE de ces 27 TP (MAMROT, 2002). Environ 40% des débordements ont eu lieu durant l'été et environ 25% durant la période de fonte des neiges (Figure 2.2). De plus, 314 débordements ont été dénombrés en hiver, malgré les températures très froides (MAMROT, 2002).

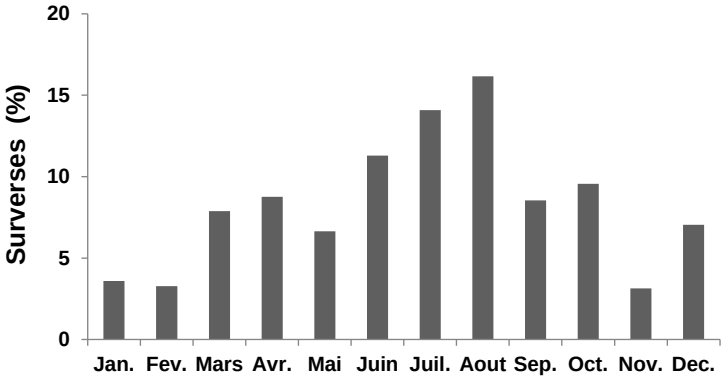

Figure 2.2: Fréquence de débordements (%) des TP situés en amont des prises d'eau potable (2009-2011)

2.3.2 Caractérisation de la variabilité temporelle des surverses

2.3.2.1 Trop-pleins échantillonnés

Une étude de traçage de certains débordements de TP situés sur la rive gauche de la rivière a précédemment été réalisée et a démontré que les rejets de surverses demeurent principalement en rive (Brunelle et al., 1993). Les prises d'eau étant situées sur la rive gauche de la rivière, nous

avons jugé logique de consacrer nos efforts logistiques et techniques sur les TP et la StaRRE de ce réseau d'égouts afin d'évaluer au mieux l'impact des surverses sur la qualité microbiologique de l'eau au niveau des prises d'eau.

Deux trop-pleins (OA et OB) ont été échantillonnés au niveau des bassins de drainage A (SA) et B (SB) respectivement (Figure 2.1). OA est une conduite ronde de 1 830 mm de diamètre située en amont d'une canalisation restrictive. OB est une conduite ronde de 380 mm de diamètre située en aval immédiat d'un déversoir avec régulateur de débit à vortex. Les plans des TP sont présentés à l'annexe A (Figure A1-4 et Figure A1-5). Environ 20 000 personnes sont connectées au bassin de drainage SA, qui a une superficie de 345 ha. L'utilisation du territoire de SA est de 68,5% résidentiel, 20% institutionnel et commercial, 11% de terrains non aménagés (des parcs par exemple) et 0,5% industriel. SB a une superficie de 13 ha et draine les eaux usées d'une école composée d'environ 2 000 personnes (étudiants, professeurs et personnel). Des déversements ont lieu en moyenne 38 fois par an pour OA et 8 fois pour OB (MAMROT, 2002).

2.3.2.2 Échantillonnage des surverses

Des échantillonneurs automatiques ISCO (Teledyne ISCO, NB, USA) équipés d'un modem cellulaire permettant l'envoi d'alertes au début et à la fin des surverses ont été installés au niveau des trop-pleins OA et OB (Figure A1-4 et Figure A1-5). Les crépines d'échantillonnage et les sondes hauteur/vitesse ont été fixées sur le radier des conduites de surverses (Figure A1-4 et Figure A1-5). Une vingtaine de secondes étaient nécessaires pour prélever l'échantillon d'un volume d'un litre. Les données de hauteur et de vitesse de l'eau mesurées par la sonde hauteur/vitesse ont été enregistrées par le module hauteur/vitesse ISCO 750 (Teledyne ISCO, NB, USA) à chaque intervalle d'une minute. Les niveaux d'eau sont évalués par la différence de pression hydrostatique mesurée par le capteur piézo-résistif. Les vitesses moyennes de l'eau sont déterminées à partir du décalage de fréquence, produit par effet Doppler, des ultrasons émis par une céramique de la sonde fixe et réfléchis par les particules en suspension transportées par l'écoulement (Bertrand-Krajewski et al., 2008; Teledyne ISCO, 2011). Les débits de surverse ont, par la suite, été calculés à l'aide du logiciel Flowlink (Teledyne ISCO, NB, USA).

La prise des échantillons débutait lorsque le niveau de l'eau de surverse atteignait une hauteur de 10 cm dans la conduite de débordement. Pour chaque surverse, des échantillons ont été collectés toutes les 5 minutes pendant les 30 premières minutes puis toutes les 30 minutes pendant 6 heures,

ou moins si la surverse s'arrêtait avant. Le suivi des débordements a été effectué durant une année et des surverses ont été échantillonnées à l'automne 2009 (n=4), à la fonte des neiges 2010 (n=2) et à l'été 2010 (n=3).

2.3.2.3 Échantillonnage des eaux usées

Afin d'évaluer les concentrations de référence en *E. coli*, MES, MVES et PPSP présentes dans les eaux usées, des échantillonnages composites proportionnels au débit ont été effectués sur 24h au niveau de l'affluent et de l'effluent de la StaRRE, par temps sec et de pluie (n=12). Des échantillons ponctuels ont également été prélevés dans les deux bassins de drainage A (SA) (n=9) et B (SB) (n=6), en amont immédiat des conduites de surverses, par temps sec.

De plus, les variations journalières des concentrations ont été évaluées en réalisant un échantillonnage horaire de l'affluent de la StaRRE, le 12 avril 2010, par temps sec.

2.3.3 Évaluation de l'impact des surverses sur la qualité de l'eau de la rivière

2.3.3.1 Points d'échantillonnage en rivière

Afin d'évaluer la répartition longitudinale des contaminants le long de la portion de rivière étudiée, des prélèvements ont été réalisés au niveau des 2 prises d'eau potable et au niveau de 3 ponts (B1-C, B2-C et B3-C) (Figure 2.1). L'échantillonnage de sections transversales de la rivière a également été effectué aux ponts B2 et B3; les prélèvements ont été faits au niveau des rives gauche (B2-L et B3-L) et droite (B2-R et B3-R), à environ 50 m de la rive.

2.3.3.2 Types d'échantillonnage en rivière

La caractérisation de la source d'eau a été réalisée par la compilation et l'analyse des données hebdomadaires du suivi d'*E. coli* réalisé au niveau des prises d'eau potable DW-1 et DWI-2 entre 2002 et 2011.

Un échantillonnage bi-mensuel des concentrations en *E. coli* et PPSP a été réalisé au niveau de 9 stations d'échantillonnage entre octobre 2009 et mars 2011 par temps sec (n=16) et temps de pluie (n=11), sauf durant l'hiver en raison de la couverture de glace sur la rivière. Des échantillons ponctuels ont été prélevés aux 9 stations d'échantillonnage : B1-C, B2-C, B2-L, B2-R, B3-C, B3-L et B3-R. L'échantillonnage a généralement été effectué à la même heure pendant la campagne et

durait environ 3 heures. Un évènement de temps sec est défini comme une journée sans pluie ni neige durant les 3 jours qui ont précédé les prélèvements. Un évènement de temps de pluie est défini comme une journée avec des épisodes de pluie cumulant plus de 6 mm ou des périodes de fonte des neiges (température supérieure à 0°C après la première neige et/ou précipitations entre les mois de décembre et mai) afin de s'assurer que des surverses aient eu lieu avant ou pendant l'échantillonnage. Les données concernant le déroulement des surverses ont été vérifiées avec les municipalités.

Un échantillonnage spécifique en rivière a été effectué pendant l'échantillonnage simultané de surverses en OA. Des prélèvements au niveau des ponts B2 et B3 ont été effectués 3 heures après le début de la surverse en OA. Un total de 4 évènements de surverses a été suivi au centre de la rivière (B2-C et B3-C) ainsi qu'aux rives droite (B2-R et B3-R) et gauche (B2-L et B3-L) (n=36) afin d'évaluer le mélange longitudinal et transversal des eaux de débordements dans la rivière.

Pour chaque campagne d'échantillonnage en rivière, des prélèvements ponctuels d'un litre ont été effectués à la même profondeur (environ 50 cm en dessous de la surface de l'eau pour éviter de recueillir la couche superficielle) à l'aide d'un plongeur lesté équipé de bouteilles autoclavées.

2.3.4 Méthodes analytiques

Les concentrations en *E. coli* ont été mesurées à l'aide de la méthode IDEXX Quanti-Tray 2000 (IDEXX, ME, USA), qui a une limite de détection de 1 MPN/100mL

Les MES et les MVES ont été analysés selon les méthodes 2540D et 2540E du Standards Methods (American Public Health Association (APHA) et al., 2012) et des incertitudes analytiques inférieures à 10% seront considérées dans l'analyse des résultats.

Les micropolluants, caféine (CAF), acétaminophène (ACE), carbamazépine (CBZ) et théophylline (THEO), ont été analysés par une extraction sur phase solide couplée à la spectrométrie de masse en utilisant la source d'ionisation ESI (électronébulisation) ou SPE-LC-ESI-MS/MS ('On-line solid phase extraction combined with liquid chromatography electrospray tandem mass spectrometry with positive electrospray ionisation') qui a été développée par Viglino et al. (2008). Les détails sur la méthode analytique sont disponibles dans l'étude menée par Sauvé et al. (2012). Les limites de détection correspondent à 3 fois la valeur de l'écart-type qui a été déterminé sur 5 mesures faites sur le même échantillon. Les limites de détection sont de

9 ng CAF/L, 2 ng CBZ/L, 6 ng THEO/L et 10 ng ACE/L pour les eaux usées et de débordements et de 6,8 ng CAF/L, 0,5 ng CBZ/L, 6 ng THEO/L et 10 ng ACE/L pour les eaux de surface. Les analyses des concentrations en micropolluants ont été réalisées en duplicata. Les incertitudes relatives aux analyses des micropolluants ont été estimées comme étant inférieures à 25% (Boleda et al., 2013).

2.3.5 Conservation des échantillons

Une fois échantillonnés, les échantillons étaient stockés à l'obscurité à 4°C jusqu'aux analyses. Des tests préliminaires ont été effectués pour évaluer la préservation des échantillons dans l'échantillonneur placé dans une conduite d'égouts à 21°C. Aucune recroissance bactérienne ou de détérioration des composés physico-chimiques ou des PPSP n'a été observée sur une durée de 24 heures. Les analyses microbiologiques et les étapes de prétraitement des échantillons de surverses pour les analyses des PPSP ont été réalisées au cours des 18 heures suivant le début de l'échantillonnage. Pour les échantillons recueillis en rivière, les analyses de concentrations en *E. coli* et le prétraitement pour les analyses des concentrations en PPSP ont été réalisées après un maximum de 6 heures suite au début des prélèvements. Concernant la préservation des échantillons pour les analyses des PPSP, un volume d'échantillon de 40 mL a été placé dans un vial en verre ambré préalablement lavé après une filtration sur une membrane en cellulose de porosité 0,45 µm (Milllipore, MA, USA). Le pH du vial a été ajusté à 2,8 par ajout d'une solution d'acide formique (pureté 98%) (Fluka Analytical, SIGMA-ALDRICH, Oakville, ON, CA) afin d'éviter toute dégradation des composés. La verrerie utilisée pour les PPSP a été préalablement nettoyée par un trempage dans une solution d'acide chlorhydrique à 25% suivi d'un passage au four à 500°C pendant 4 heures. Les analyses des PPSP ont été effectuées dans les 3 semaines qui ont suivi l'échantillonnage (Aboulfadl et al., 2010).

Pour les MES et MVES, un volume d'échantillon de 500 mL a été conservé dans des bouteilles en polypropylène préalablement lavées par un trempage de 15 minutes dans une solution d'acide chlorhydrique à 25%. Les analyses ont été réalisées dans un délai de 48 heures (American Public Health Association (APHA) et al., 2012).

L'approche expérimentale est résumée en fonction des hypothèses de recherche au Tableau 2.2.

Tableau 2.2 : Approche expérimentale développée pour valider (ou invalider) les hypothèses de recherche ainsi que les articles associés

Hypothèse		Échelle expérimentale	Approche expérimentale	Résultats attendus	Article
1a	La carbamazépine n'étant pas présente dans les eaux de ruissellement, ses concentrations permettent d'estimer la proportion d'eaux usées dans les eaux de surverses	Terrain : Réseau d'égouts (SA et SB) Terrain : TP (OA et OB)	Mesure des concentrations en CBZ dans les eaux usées Mesure des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP au cours d'une surverse	Facteur de dilution des eaux usées par les eaux de ruissellement Variations des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP durant la surverse	1
1b	Les concentrations en MES sont majoritairement influencées par la remise en suspension des dépôts. Les variations des concentrations en *E. coli* et en PPSP sont majoritairement dues à la variabilité intrinsèque des concentrations dans les eaux usées	Terrain : StaRRE Terrain : Réseau d'égouts (SA et SB)	Mesure des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP dans les eaux usées Mesure des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP dans les eaux usées	Profil des variations horaires en *E. coli*, MES, MVES et PPSP dans les eaux usées Ordre de grandeur des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP dans les eaux usées	1
		Terrain : TP (OA et OB)	Mesure des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP au cours d'une surverse	Variations des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP en fonction des heures de la journée	
2	Les concentrations et les charges mesurées lors des surverses de printemps sont plus faibles que celles des autres saisons en raison du fort potentiel de dilution associé à la fonte des neiges	Terrain : TP (OA et OB)	Mesure des concentrations en *E. coli*, MES, MVES et PPSP au cours de surverses durant l'automne, le printemps et l'été Mesure des débits de surverse	Variations des concentrations et des charges en *E. coli*, MES, MVES et PPSP en fonction des saisons	1-2

Tableau 2.2 : Approche expérimentale développée pour valider (ou invalider) les hypothèses de recherche ainsi que les articles associés (suite)

Hypothèse		Échelle expérimentale	Approche expérimentale	Résultats attendus	Article
3	Un modèle temporel de répartition des sources peut être développé à partir des charges provenant des eaux de ruissellement, des eaux usées et des dépôts en fonction du volume rejeté	Numérique	Détermination de l'évolution horaire des charges en *E. coli*, MES et PPSP provenant des eaux usées dans le bassin de drainage SA	Pourcentage des charges en *E. coli*, MES et PPSP rejetées provenant des eaux usées ou des eaux de ruissellement et des dépôts en fonction du pourcentage de volume de surverse	2
4a	Les évènements de surverse sont des évènements transitoires qui constituent les conditions les plus critiques de contamination microbiologique des prises d'eau potable situées en aval de conduites de DEU en milieu densément urbanisé	Numérique Terrain : Rivière	Analyse des données de suivi des concentrations en *E. coli* aux prises d'eau Mesure des concentrations en *E. coli* en rivière pendant des surverses	Corrélation des pointes de concentrations en *E. coli* à la prise d'eau avec des épisodes de pluie et/ou de fonte des neiges Détermination des conditions critiques transitoires à la prise d'eau	3
4b	Un PPSP ou une combinaison de PPSP peut être utilisé comme traceur de contamination fécale provenant des surverses au niveau des prises d'eau potable	Terrain : Rivière	Mesure des concentrations en PPSP en rivière durant des surverses	Estimation des charges en *E. coli* et en PPSP rejetées par les surverses	3

CHAPITRE 3 ARTICLE 1 – TEMPORAL VARIABILITY OF COMBINED SEWER OVERFLOW CONTAMINANTS: EVALUATION OF WASTEWATER MICROPOLLUTANTS AS TRACERS OF FECAL CONTAMINATION

Une meilleure connaissance des variations des concentrations en contaminants au cours des DEU est nécessaire pour estimer les concentrations de pointe rejetées ayant un impact sur la qualité microbiologique de l'eau du milieu récepteur, utilisée comme source d'eau potable. Les concentrations en *E. coli* dans les DEU varient en fonction de la proportion d'eaux de ruissellement mais elles demeurent élevées tout au long des évènements. Cet article a mis en évidence que la dilution par les eaux de ruissellement ainsi que la remise en suspension des dépôts n'étaient pas les seuls mécanismes à prendre en compte pour expliquer les variations des concentrations durant les DEU. L'heure à laquelle le DEU a lieu ainsi que les variations intrinsèques des concentrations dans les eaux usées doivent être prises en considération. Cet article est le premier à présenter des variations temporelles des concentrations en PPSP dans les DEU. Nos résultats ont également montré que la période critique de rejet pour les prises d'eau potable est la fonte des neiges. De plus, la carbamazépine est apparue comme étant un excellent traceur d'eaux usées unitaires dans les DEU. Les résultats présentés proviennent d'une campagne d'échantillonnage de plusieurs évènements de surverses réalisée au niveau de 2 conduites de DEU. Cet article a été publié dans le journal *Water Research* le 6 juin 2013 et des informations additionnelles sont présentées dans l'Annexe 1.

Anne-Sophie Madoux-Humery[a,*], Sarah Dorner[b], Sébastien Sauvé[c], Khadija Aboulfadl[c], Martine Galarneau[d], Pierre Servais[e], Michèle Prévost[a]

a NSERC Industrial Chair on Drinking Water. Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec) Canada.

b Canada Research Chair on the Dynamics of Microbial Contaminants in Source Waters. Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec) Canada.

c Chemistry Department, University of Montreal, Montréal (Québec) Canada

d City of Laval, Engineering Services, Laval (Québec) Canada

e Écologie des Systèmes Aquatiques, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, Belgium

* Corresponding author: e-mail address: anne.madoux@polymtl.ca (A.-S. Madoux-Humery)

ABSTRACT

A monitoring program was initiated for two sewage outfalls (OA and OB) with different land uses (mainly residential versus institutional) over the course of a year. Eleven CSO events resulting from fall and summer precipitations and a mixture of snowmelt and precipitation in late winter and early spring were monitored. Median concentrations measured in CSOs were 1.5×10^6 *E. coli*/100mL, 136.0 mg/L of Total Suspended Solids (TSS), 4599.0 ng/L of caffeine (CAF), 158.9 ng/L of carbamazepine (CBZ), in outfall OA and 5.1×10^4 *E. coli*/100mL, 167.0 mg TSS/L, 300.8 ng CAF/L, 4.1 ng CBZ/L, in outfall OB. Concentration dynamics in CSOs were mostly related to the dilution by stormwater and the time of day of the onset of overflows. Snowmelt was identified as a critical period with regards to the protection of drinking water sources given the high contaminant concentrations and long duration of events in addition to a lack of restrictions on overflows during this period. Correlations among measured parameters reflected the origins and transport pathways of the contaminants, with *E. coli* being correlated with CBZ. TSS were not correlated with *E. coli* because *E. coli* was found to be mostly associated with raw sewage whereas TSS were additionally from the resuspension of in-sewer deposits and surface runoff. In receiving waters, *E. coli* remained the best indicator of fecal contamination in strongly diluted water samples as compared to WWMPs because WWMPs can be diluted to below their detection limits.

KEYWORDS

Combined sewer overflows, sanitary sewer, *Escherichia coli*, fecal indicator bacteria, caffeine, carbamazepine, acetaminophen

3.1 Introduction

Many of the largest cities in the world are served by combined sewer systems to evacuate wastewaters. During intense rainfall periods, Combined Sewer Overflows (CSOs) are widely known to occur; such discharges of a mixture of raw wastewaters and stormwaters can severely degrade the quality of the receiving surface waters by modifying their ecological functioning and by increasing the concentrations of mineral, organic and microbiological pollutants (Benotti & Brownawell, 2007; McLellan et al., 2007; Passerat et al., 2011; Phillips & Chalmers, 2009; Phillips et al., 2012; Weyrauch et al., 2010). Utilities must reduce the frequency of overflow events to meet more stringent environmental regulations and to protect their source waters used for drinking water production. It is important to prioritize the reduction of such discharges on the basis of the risks that they pose to the environment and to drinking water sources.

Concentrations during CSO events result from different simultaneous phenomena: (1) dilution of sewage by stormwater, (2) internal sewage contribution by in-sewer sediment resuspension and (3) external contribution from external runoff (Gromaire et al., 2001).Extensive literature is available on the characterization of CSOs in terms of common physico-chemical parameters such as organic matter, nutrients and total suspended solids (TSS) (Chambers et al., 1997), but scarce data are available with regards to microbiological contaminants (Table S1 in supplementary material) and wastewater micropollutants (WWMPs).

Reported Fecal Indicator Bacteria (FIB) concentrations measured in CSOs vary over several orders of magnitude (Table A1-1 in supplementary material) reflecting differences in rainfall duration and intensity, local drainage basin characteristics, the sampling procedure (number and frequency of samples collected) and the type of samples (grab versus composite) (Details in Table A1-1 in supplementary material). Some studies among those reported in Table A1-1 have revealed a number of correlations among physico-chemical parameters, metals and FIB concentrations using data from paired samples (Passerat et al., 2011; Soonthornnonda & Christensen, 2008) . These

correlations can be interpreted to estimate contributions from wastewater, stormwater, groundwater or in-sewer deposits to the concentrations in CSO waters (Soonthornnonda and Christensen 2008, Passerat et al. 2011). However, FIB concentrations in CSOs are usually higher than in treated wastewater (Passerat et al. 2011) and few data are available on the dynamics of FIB in CSOs. Thus, additional data are needed to better characterize the fluctuations of FIB concentrations in CSOs in order to better understand their impact on the concentrations of microbiological pollution in receiving waters.

Concentrations of micropollutants such as WWMPs have been frequently detected in urban surface- and ground- waters (e.g. Focazio et al., (2008)). A better evaluation of the concentration of these compounds in CSOs is needed for: (1) evaluating the ecotoxicological impact of these contaminants in receiving waters (Fent et al., 2006), (2) designing treatment processes for CSOs and (3) estimating peak concentrations at drinking water intakes (DWIs), which set the treatment requirements for handling worse quality cases in source waters (Dorner et al., 2006). On the other hand, pharmaceuticals in sewage and treated wastewater have been studied extensively. Reported concentrations in WWTP influents are summarized in Table A1-2 of the supplementary material and can be used to estimate the range of expected values in CSOs. The work of Phillips et al. Phillips et al. (2012) was the first to present concentrations of WWMP in untreated CSOs. They observed that dilution was a major factor controlling WWMP concentrations in CSOs; however, greater dilution was also associated with greater hydraulic loading and reduced biological treatment efficiency in the WWTP. To the best of our knowledge, no studies have examined the dynamics of CSO WWMP concentrations during events.

Various WWMPs such as caffeine (CAF) have been proposed as indicators of recent and cumulative contamination of natural waters by wastewaters to complement information from the monitoring of FIB (Sauvé et al., 2012; Young et al., 2008). CAF has been proposed as a tracer of recent wastewater contamination in surface waters (Buerge et al., 2003; Daneshvar et al., 2012; Peeler et al., 2006), stormwater outfalls (Sankararamakrishnan & Guo, 2005; Sauvé et al., 2012), as well as untreated wastewater (WWTPs and CSOs) (Buerge et al., 2003, 2006). Carbamazepine (CBZ), an antiepileptic medication, was identified as a particularly useful tracer because of its long half-life and its specific utilization by humans; it was proposed as an indicator of cumulative wastewater discharges (Daneshvar et al., 2012; Gasser et al., 2011). Acetaminophen (ACE), which has been shown to be completely removed during wastewater treatment, could serve as a tracer of

raw or insufficiently treated wastewater and thus be an indicator of WWTP malfunction or CSOs (Kasprzyk-Hordern et al., 2009; Roig, 2010). However, it appears that the relationship between WWMPs and FIB may be source specific and differs between wastewater and CSOs (Daneshvar et al., 2012). Thus, there is a need for data on WWMP concentrations in CSOs and more investigations on relationships between FIB and WWMPs.

Although the estimation of loadings is important to understand the relative contribution of CSOs versus wastewater treatment plant discharges over long time periods (Buerge et al., 2006; Passerat et al., 2011; Rechenburg et al., 2006), loadings alone are not sufficient for determining peak concentrations of microbial pollutants and WWMPs in CSOs which are indispensable to identify peak concentrations downstream of the discharge point. These concentrations constitute the critical periods of challenge at drinking water intakes in dense urban areas (Smeets et al., 2010).

The general objectives of this detailed event based monitoring of CSOs were to: (1) investigate the variability of *E. coli* and WWMP concentrations in CSOs during overflow events; (2) compare CSO concentrations at the outlet of two sewersheds differing by their size and land use; (3) assess relationships among the chemical and microbiological indicators to evaluate WWMPs as tracers of overflows in receiving waters.

3.2 Materials and methods

3.2.1 Study site

Studied sewer system and WWTP. The studied sewer system serves approximately 280,000 residents of the Greater Montreal Area and conveys the sewage to an advanced primary WWTP treating 240,000 m^3/d (See location on Figure A1-2 in supplementary material). Approximately 50 overflows are located within the sewage collection network and 27 are located upstream from the DWI (Figure A1-2 in supplementary material).

Receiving river. The flowrate of the river receiving the CSO discharges varies from 380 to 3,600 m^3/s with an average of 1,000 m^3/s. During this study, the average flowrates were approximately 1,360, 610 and 1,160 m^3/s during the snowmelt, the summer and the fall, respectively (Centre d'expertise hydrique du Québec, 2012).

Frequency of overflows. Based on the CSO database, up to 77 overflow events occurred on average each year between 2007 and 2011 upstream of the DWI. Using an average number of discharges per point for the 50 outlets, up to 453 discharges occurred per year upstream of the DWI. Clear seasonal patterns were observed with regards to CSO discharges to the river studied (Figure A1-3 in supplementary material). The highest frequency of events occurred during the summer months (July and August) followed by the snowmelt period (April), then the fall (September and October). Despite cold temperatures, CSO events also occurred during the winter, although their frequency was lower (MAMROT, 2012).

CSOs sampled. Two CSO outfalls (OA and OB) were sampled in sewersheds A (SA) and B (SB), respectively (see location on Figure A1-2 in supplementary material). OA is a 1830 mm diameter round pipe located upstream of a constricted pipe segment and OB is a 380 mm diameter round pipe located immediately downstream of a weir with flow regulated by a vortex (see Figure A1-4 and Figure A1-5 in supplementary material). The land use of sewershed A (345 ha) is 68.5% residential, 20% institutional and commercial, 11% of open lands and 0.5% industrial with a population of 20,000 inhabitants. The size of the catchment for sewershed B is 13 ha and its land use is only institutional - a school served by the sewer system with a population of approximately 2000 individuals consisting of students and teaching staff. CSO events occurred 38 times on average per year for OA and 8 times for OB (MAMROT, 2012).

3.2.2 Sample collection

3.2.2.1 Raw sewage

In order to determine baseline concentrations, raw sewage samples were collected at the WWTP influent. The WWTP is located approximately 10km downstream from OA and receives the sewage from both studied sewersheds. The intraday variability of concentrations was analyzed by hourly grab sampling in dry weather conditions on April 12th, 2010 at the inlet of the WWTP. Grab samples were also collected in the two sewersheds A (SA) (n=9) and B (SB) (n=6), immediately upstream of the CSO outfall during dry weather conditions.

3.2.2.2 CSO sampling

Automated ISCO samplers (Teledyne ISCO, NB, USA) equipped with a digital cellular modem system to send alerts at the beginning and the end of overflow events were installed at two different CSO outfalls (OA and OB), in the sewersheds A and B, respectively. Strainers and area velocity probes were directly anchored in the overflow pipes (See Figure A1-4 and Figure A1-5 in supplementary material). Approximately 20s were required for the collection of each 1L sample. CSO flows were monitored by adding an ISCO 750 area velocity module (Teledyne ISCO, NB, USA) to the sampler. Water levels were determined by differential pressure and the average velocities were measured using ultrasonic sound waves and the Doppler effect. Data were logged at 1-minute intervals and flow rates were calculated using the Flowlink software (Teledyne ISCO, NB, USA). Flow rate calculations were determined to have a relative uncertainty varying from 4 to 26%, depending on the event (Bertrand-Krajewski et al., 2008; Fletcher & Deletic, 2008). According to Bertand-Krajewski and Bardin (2001) and Ort et al. (2010), the joint sampling and analytical uncertainties with regards to concentrations of physico-chemical parameters could be estimated as being up to approximately 40% and were considered in the interpretation of sampling results.

Precipitation data for sampled events were obtained from nearby rain gauges (See Figure A1-2 in supplementary material) and a weighted average was calculated for the drainage basins. The average precipitation depth for all events (including events not sampled) in 2009 and 2010 was 2.97 mm with a maximum recorded depth of 64.4 mm (Environment Canada, 2012). Precipitation events were representative of typical precipitation patterns of the region.

The initiation of sample collection occurred once the water level exceeded 10 cm in the conduit. For each event, samples were collected every 5 min for the first 15 min, and then every 30 min for 6 hours using single-use 1 L-Propak-sterile bags made of low-density polyethylene (LDPE) plastic (ISCO, NB, USA).

CSO events and raw sewage were monitored between October 2009 and July 2011. In total, 9 CSO events were sampled at overflow A (OA) (n=138) during three different seasons and 2 at overflow B (OB) (n=10) during the summer. Due to technical problems, *E. coli* concentrations were not available for the A2 event and the A4 event samples were only analyzed for *E. coli*.

3.2.3 Analytical methods

E. coli are the most widely used fecal indicator bacteria (FIB) and it has been proposed as the best bacterial indicator to predict the sanitary risk associated with waters (Edberg et al., 2000; Fewtrell & Bartram, 2001). *E. coli* concentrations were measured using the IDEXX Quanti-Tray 2000 method (IDEXX, ME, USA).

The four WWMPs selected for the study (caffeine (CAF), carbamazepine (CBZ, an anti-seizure drug primarily excreted in the faeces (about 70%)), theophylline (THEO, used for the treatment of bronchial asthma, presented in soft-drinks and also a metabolite of CAF) and acetaminophen (ACE, an analgesic)) were chosen because they have been frequently observed in wastewater in the Greater Montreal Area (Viglino et al., 2008). In addition, their half-lives exceed the hydraulic residence times in the sewersheds, methods for their detection and quantification are available and they are potentially useful as indicators of fecal contamination (Buerge et al., 2003, 2006; Daneshvar et al., 2012). The criteria for selecting these four substances were: (1) they are almost uniquely present in wastewaters; (2) their variable environmental persistence; (3) their transport is mainly associated with water flow; (4) they present a potential threat for the ecosystem, (5) the laboratory effort for their analysis is reasonable and (6) they have different removal efficiencies in WWTPs (Benotti & Brownawell, 2007). WWMP loads from CSOs as compared to WWTPs are more important for compounds that are efficiently removed by WWTPs (Benotti & Brownawell, 2007; Phillips et al., 2012).

WWMP analyses were performed by an on-line solid-phase extraction combined with liquid chromatography electrospray tandem mass spectrometry with positive electrospray ionisation (SPE-LC-ESI-MS/MS) first developed by Viglino et al. (2008). Detailed information on the analytical method are available in Sauvé et al. (2012). Detection limits were estimated as three times the standard deviation of 5 replicate measurements of a field sample and were 9 ng/L for CAF, 2 ng/L for CBZ, 6 ng/L for THEO and 10 ng/L for ACE. All samples were analyzed in duplicate. For each event, laboratory blanks and field blanks were analyzed. All blank values were below detection limits, except for a few rare samples where ultra-trace levels of CAF (< 9ng/L) and ACE (< 10 ng/l) were detected. Given the very low levels detected infrequently in blanks, the data were not corrected because the blank levels were insignificant relative to the environmental concentrations. No raw wastewater and CSO samples were below the detection limit. WWMP

uncertainties with regards to analytical methods were expected to be lower than 25% (Boleda et al., 2013).

Physico-chemical substances such as Total Suspended Solids (TSS), Volatile Solids (VS), Total Organic Carbon (TOC) and Total Phosphorus (TP) were also analyzed. Physico-chemical compound concentrations were determined in accordance with Standard Methods and associated uncertainties with regards to analytical methods were expected to be less than 10% (American Public Health Association (APHA) et al., 2012). Details on sample collection and preservation are available in supplementary information (section I.1).

3.2.4 Calculations and statistical methods

The proportion of stormwater in overflows was calculated for each CSO event using CBZ as the reference tracer as suggested by Kunkel and Radke (2012). The equations used and additional details are provided in supplemental material (section I.2). The Event Mean Concentration (EMC) was determined for each event and compared to median concentrations measured in the sewershed in dry weather conditions. The EMC was calculated from flow rate data at 1-min intervals and interpolated concentrations using Matlab 7.1 (Mathworks, MA, USA). As EMCs are derived from both flowrate and concentration estimates, the uncertainties from both flowrates and concentrations are propagated and included in EMC uncertainties. Thus, EMC uncertainties were expected to be up to 140% based on calculated uncertainties for flowrate and expected uncertainties for concentrations (Bertrand-Krajewski & Bardin, 2001).

As CSO concentration data were neither normally nor log-normally distributed, non- parametric statistical analyses using Spearman's rank correlation test were performed using Statistica Version 10 (Statsoft, OK, USA). Unless stated otherwise, differences were considered significant if $p<0.05$.

3.3 Results and Discussion

3.3.1 Concentrations in sanitary sewers in dry weather conditions

E. coli median concentrations were respectively 4.6×10^6 *E. coli*/100mL and 6.8×10^5 *E. coli*/100mL for SA and SB sewersheds (Figure 3.1). These values are in agreement with reports by Payment (2003) for concentrations of FIB and pathogens in eight WWTP influents in the Greater Montreal

Area, but are lower than *E. coli* abundance reported in raw wastewaters in Europe (Garcia-Armisen & Servais, 2007; Kistemann et al., 2008; Lucas et al., 2012).

WWMP median concentrations ranged from 214 ng CBZ/L to 6730 ng ACE/L in SA and from 50 ng CBZ/L to 2945 ng THEO/L in SB. All compounds were detected in all raw sewage samples. *E. coli* and WWMP differences between the sewersheds are related to different land uses, the scale of the sewersheds and the population demographics. Teerlink et al. (2012) showed that the frequency of detection of trace organic chemical could be related to the sewershed size. Concentrations in SA fall into the range reported in the comprehensive WWMPs database developed by Miège et al. (2009) and other studies compiled in Table S2 in supplementary material.

The median *E. coli* concentration measured over the course of a day at the inlet of the WWTP (1.6×10^6 *E. coli*/100mL) was between the median concentrations of both sewersheds and revealed a daily trend for *E. coli* as well as for TSS and TOC (Figure 3.2 A, B); concentrations increased during the morning to reach a maximum during the afternoon and then gradually decreased. Similar patterns for *E. coli* and enterococci in raw wastewaters were reported by Payment (2003) and Lucas et al. (2012). *E. coli* is generally entirely associated with fecal matter with a pattern of excretion occurring primarily in the morning between 7:00 and 8:00 (Heaton et al., 1992) and, according to the residence time in the sewer system studied, the peak concentration of *E. coli* was observed in the early afternoon.

Median concentrations of WWMPs measured at the inlet of the WWTP were 7482 ng CAF/L and 229 ng CBZ/L. These values were in the same range as those observed in sewershed A (7230 ng CAF/L and 214 ng CBZ/L) and were respectively 9.6 and 4.6 times higher than those measured in sewershed B. Median concentrations of ACE (11051 ng/L) and THEO (22554 ng/L) in the influent were respectively 1.6 and 4.6 times higher than those measured in SA and 4.0 and 7.7 times higher than those in SB. Intraday fluctuations of WWMP concentrations at the influent of the WWTP revealed two groups of WWMPs (Figure 3.2 C) - CBZ, CAF and THEO on one hand, and ACE, on the other hand with concentrations remaining approximately constant throughout the day. The residence time in the studied sewer system connected upstream of the WWTP is relatively short (<10 hours); thus, biodegradation, although an important process for the long term fate of the four compounds should not be a significant process in this sewer system. The body clearance half life of ACE is relatively short (<4 hours) (Wishart, 2012) and ACE is generally

taken every 4 hours in order to relieve fever and pains, which may explain its low variability in the WWTP influent. For the first group of compounds, minimum concentrations were measured at approximately 7:00. Then, an increase of concentrations was observed in the afternoon, similar to *E. coli*, with a second peak at 22:00. CAF is mainly consumed in the morning and is quickly excreted (first peak observed in Figure 3.2). Additionally CAF consumed throughout the day will reach a plateau in the blood in the afternoon and will be eliminated from the body overnight (second peak) (Benowitz, 1990). The same assumption could be made for THEO which is present in tea and is also a metabolite of CAF. On the other hand, CBZ is primarily taken every evening and its body half-life is comprised between 25 and 65 hours depending on the consumed dose, suggesting a more constant and regular load to the sewer. In fact, significant interday fluctuations of WWMP concentrations have been reported in WWTP influents (Vieno et al., 2005; Zhou et al., 2009) and intraday fluctuations in effluents (Nelson et al., 2010) reflecting: (1) intermittent consumption of the different WWMPs; (2) different half-lives in the human body and excretion pathways of the various WWMPs and (3) the retention time in the sewer system.

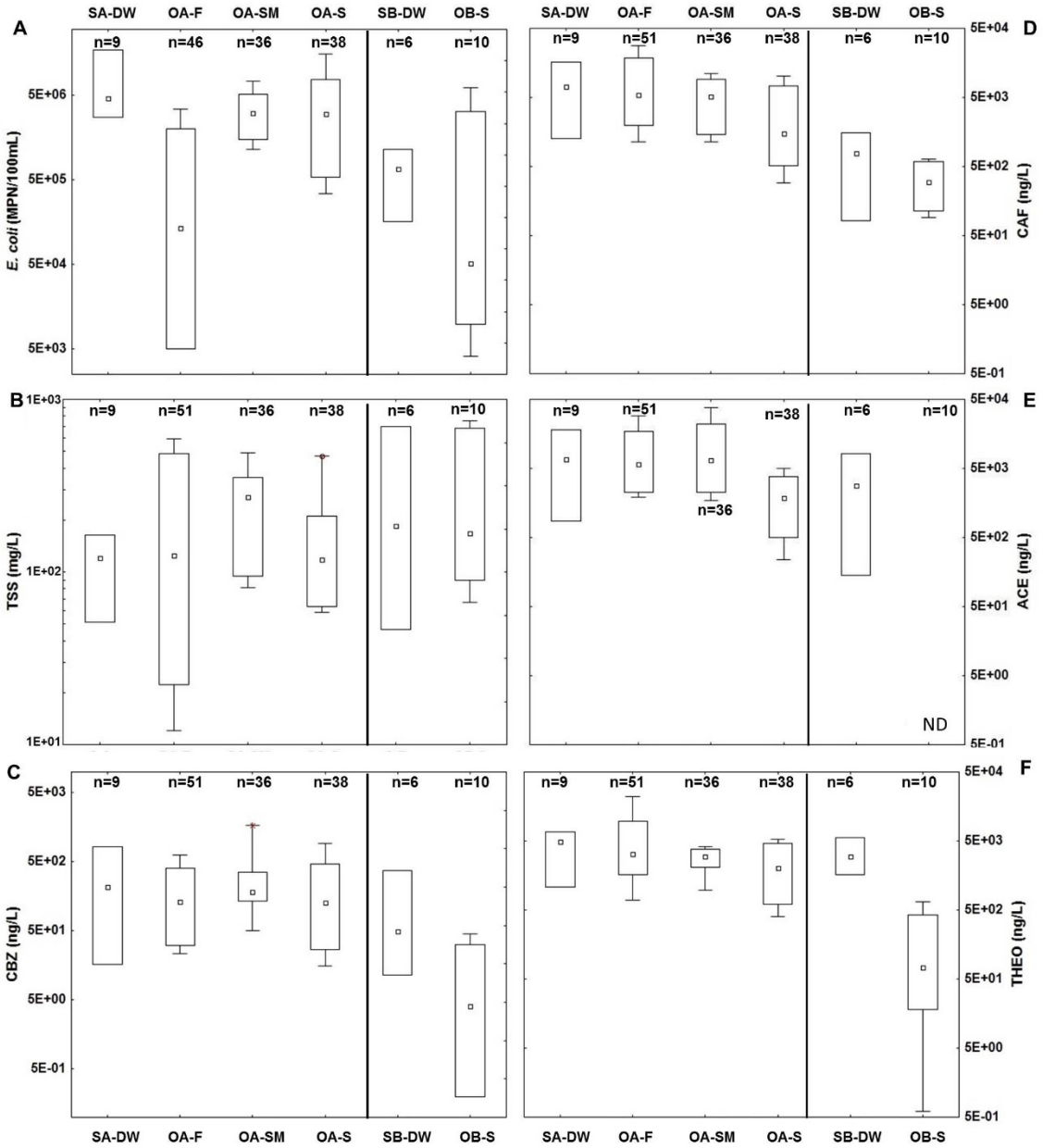

Figure 3.1 : Box-plots of pollutant concentrations measured in sewersheds A and B (SA and SB) (in dry weather conditions (DW)) as well as in CSOs (OA and OB) in wet weather for different season (F: Fall; SM: Snowmelt; S Summer): A. *E. coli*; B. TSS; C. CBZ; D. CAF; E.ACE; F. THEO. Box plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to minimum and maximum values. The number of samples is indicated at the top of each box and ND corresponds to Non Detect samples

.

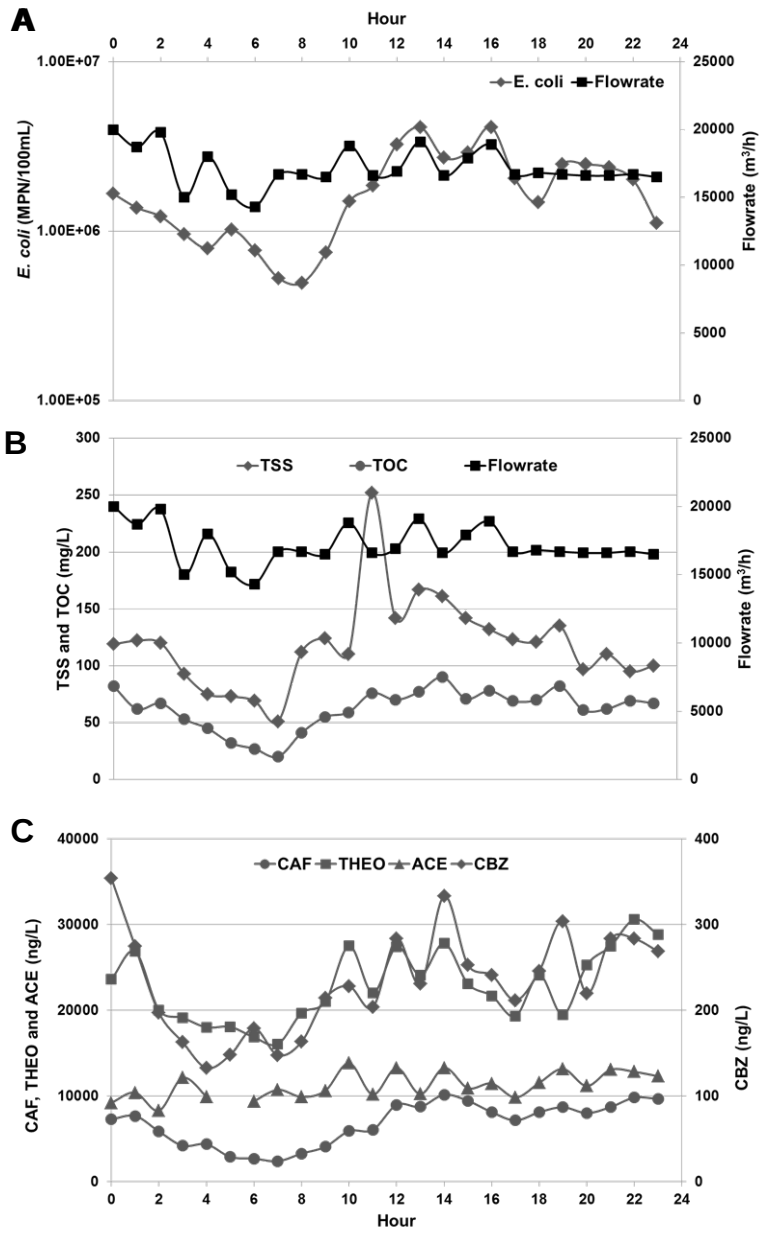

Figure 3.2 : Hourly flowrate (panels A and B) and concentrations in the influent of the WWTP: A. *E. coli* in Log scale; B. TSS and TOC; C. WWMPs (CAF, THEO, ACE and CBZ)

3.3.2 CSO characterization

3.3.2.1 CSO hydrographs

Data on CSO event duration, discharged volume, flow rate, precipitation and antecedent dry period (ADP) for the 11 events sampled are given in Table 3-1. Description and discussion on CSO hydrographs are also presented in supplementary material (section II).

3.3.2.2 Temporal variations of concentrations in CSOs

Comparison with dry weather conditions

The measured concentrations of *E. coli* were highly variable among CSO events (Figure 3.1, Figure 3.3 and Figure 3.4) as well as within each event (Figure 3.3 and Figure 3.4). EMC of *E. coli* observed for all CSO events sampled at OA and OB were respectively 1.7×10^6 *E. coli*/100mL (8 events, n=120) and 2.0×10^5 *E. coli*/100mL (2 events, n=10). The *E. coli* EMC observed for the entire set of overflow events at OA and OB were respectively 2.7 and 3.4 times lower than those measured in the sanitary sewer during dry weather conditions (Figure 3.1).

EMCs of TSS observed in overflows and in the sanitary sewers in dry weather conditions were respectively 158 mg/L and 120 mg/L at OA and 146 mg/L and 186 mg/L at OB. Given the expected uncertainties for EMCs, TSS EMCs in CSOs were comparable to median concentrations in the sanitary sewer in dry weather conditions.

WWMP EMCs measured for all overflows events were 3248 ng CAF/L, 184 ng CBZ/L, 3591 ng ACE/L, 2381 ng THEO/L (8 events, n=125) at OA and 270 ng CAF/L, 4.1 ng CBZ/L, 57.3 ng THEO/L and ACE was not detected (2 events, n=10) at OB. At OA, WWMP median concentrations in overflows were between 1.2 and 2.2 times lower than in dry weather conditions and, at OB between 2.9 and 51.4 times lower than in dry weather conditions. WWMP median concentrations were often lower than concentrations measured in raw sewage. Assuming that runoff water is either sparsely or not contaminated by WWMPs, even with dilution from stormwater, WWMP concentrations remained elevated throughout CSO events.

The median dilution factor (representing the proportion of stormwater, as calculated from CBZ concentrations) across all events was 0.29 with median dilution factors for individual events

varying from -0.95 to 0.81. Negative dilution factors indicated that measured CSO concentrations were greater than raw sewage concentrations measured in dry weather.

Seasonal fluctuations

The range of *E. coli* concentrations observed in overflows OA (n=8) also demonstrated variability among seasons (Figure 3.1). For the events sampled, at OA, *E. coli* EMCs were quite similar for the snowmelt and the summer period (3.0×10^6 *E. coli*/100mL and 2.2×10^6 *E. coli*/100mL) but were approximately between 3 and 5 times lower during the fall (6.4×10^5 *E. coli*/100mL). TSS EMCs vary between each season with a maximum value of 231 mg/L during the snowmelt period. With regards to WWMPs, the highest median concentrations were generally observed during the snowmelt period (4172 ng CAF/L, 240 ng CBZ/L and 7050 ng ACE/L).

The interest in studying the concentrations as a function of season is that, in general, Canadian provincial regulations restrict the frequency of CSO discharges at each outfall location during all the seasons except during winter and spring snowmelt. Mean dilution factors were -0.20 and -0.16 for snowmelt events A5 and A6, respectively. Thus, our results contradict the common belief that CSO concentrations are likely to be highly diluted during snowmelt. Winter conditions provide a long period without precipitation falling as rain in addition to low levels of inflow and infiltration that favor a net deposition of contaminants in the network. Snowmelt conditions provide continuous but modest dilution from increased inflow, infiltration and runoff. Under these conditions, a small depth of rainfall may lead more frequently to the discharge of highly contaminated water for an extended duration.

Differences among other seasons were not observed because of the large variability among events. The total frequency of snowmelt events is lower than during the other periods of the year (Figure A1-3 in supplementary material). Our results suggest that the CSO event duration and level of contamination must be considered during this period.

Table 3.1 : Duration, discharged volume, flowrate, precipitations, duration of antecedent dry period (ADP) and return period (RP) characterizing the sampled CSO events at outfalls O-A and O-B in fall (F), snowmelt period (SM) and summer (S)

CSO discharge point/ Event	Season	Duration of Overflows (min)	Overflows discharged volume (m^3)	Flowrate (L/s) Average (max)	Cumulative precipitations during the overflow event (mm) (Mean intensity (mm/h)	Cumulative precipitations before the beginning of overflow event (mm) (Intensity (mm/h))	ADP (days)	RP (years)
CSO discharge point : O-A								
A1	F	312	3 843	204.8 (653.9)	12.9 (2.1)	5.7 (2.9)	15	0.42
A2	F	958	10 723	186.3 (1549.1)	27.8 (1.2)	2.7 (0.6)	1.5	1.88
A3	F	346	2 900	139.3 (638.6)	14.3 (1.9)	2.2 (1.9)	22	0.51
A4	F	383	989	42.9 (222.7)	9.7 (1.3)	2.4 (2.6)	6	0.30
A5	SM	779	2 861	61.1 (228.0)	14.3 (0.8)	2.4 (0.5)	47	0.48
A6	SM	403	3 138	129.5 (558.2)	10.1 (0.8)	4.4 (0.7)	9	0.31
A7	S	694	19 530	468.3 (3485.1)	37.2 (2.8)	9.3 (16.4)	11	4.99
A8	S	89	92	17.1 (50.2)	3.8 (0.9)	2.4 (2.3)	4	0.16
A9	S	146	5 813	659.1 (2037.4)	16.4 (5.5)	12.2 (12.0)	2	0.63
CSO discharge point : O-B								
B1	S	220	52.5	4.0 (32.6)	36.8 (9.3)	5.5 (13.8)	11	5.48
B2	S	6	0.07	0.2 (0.4)	11.3 (2.3)	4.7 (1.6)	2	0.36

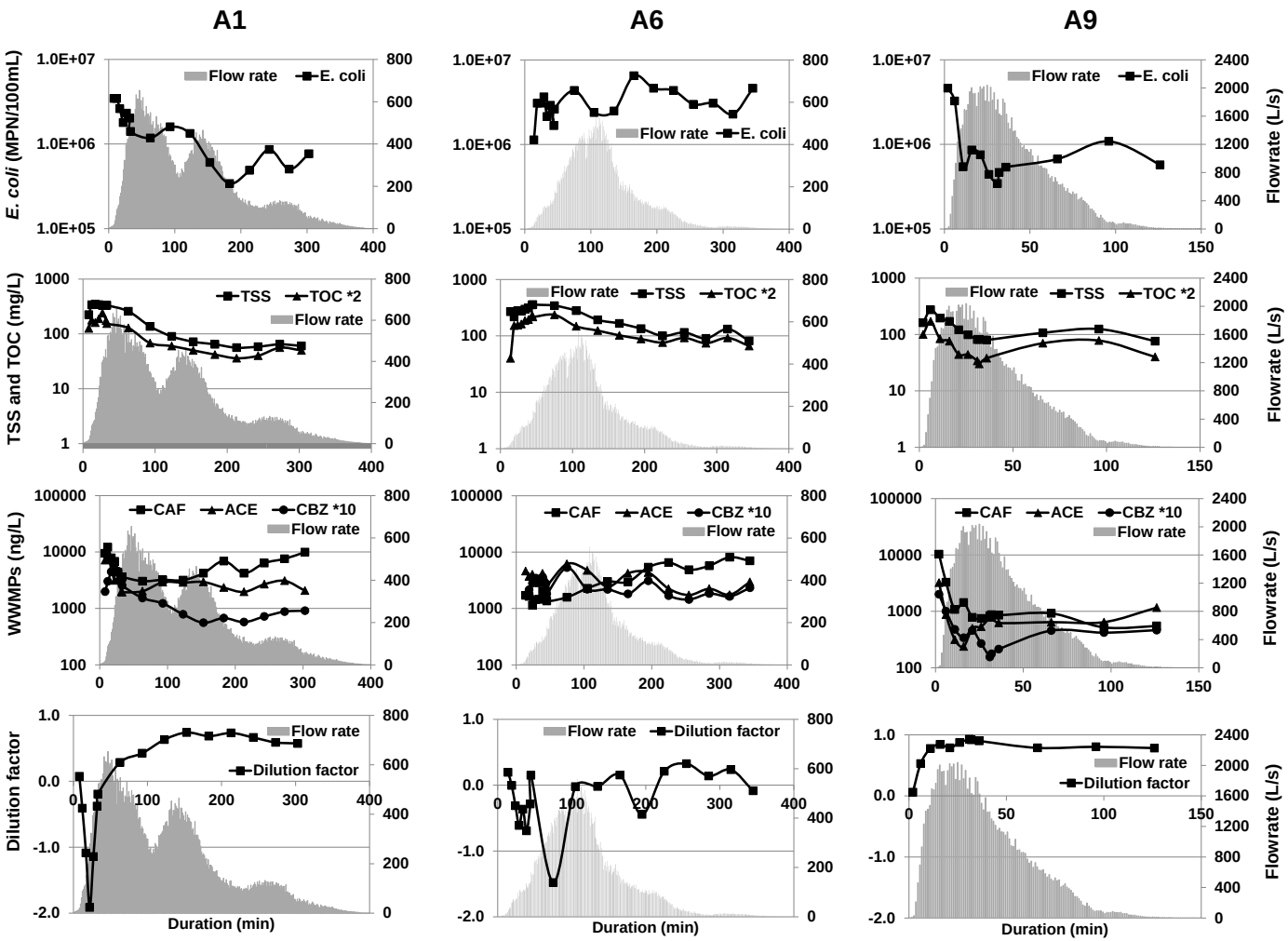

Figure 3.3 : Concentrations and dilution of pollutants and fluctuations of the flowrate during three overflow events in OA in fall (A1 event), snowmelt (A6 event) and summer (A9 event). (1) *E. coli* (first panel); (2) TSS and TOC (second panel); CAF, ACE and CBZ (third panel); dilution factor (fourth panel)

Inter and intra-event fluctuations

The ranges of CSO concentrations were assessed in relation to precipitation patterns, flow rate fluctuations, as well as antecedent dry period (ADP) which was defined as the number of days without precipitation falling as rain. However, no clear trend was observed with regards to sequential events in relation to ADP, rain intensity and depth. All parameters demonstrated a strong variation with regards to concentrations during each CSO event, while patterns of concentrations varied among parameters (Figure 3.3 and Figure 3.4). Examples of three events (events A1 for the fall, A6 for the snowmelt and A9 for the summer) were selected to illustrate concentration variations and dilution factors during overflow events for each season. Thus, the combined effects of rainfall intensity, internal processes related to the accumulation of in-sewer deposits, and the dilution with stormwater (Figure 3.3) can be observed in relation to the time of day of the onset of CSO events (Figure 3.4).

TSS fluctuations for all events showed the same dynamics; i.e significantly higher concentrations were measured during the initial period of stormflow when the dilution factor was negative or low, than during the later stages of the event. The values of TSS concentrations during A1, A6 and A9 events ranged over a factor of 6.2 (Figure 3.3). TSS peak concentrations were quantified at 348, 357 and 273 mg/L for events A1, A6 and A9, respectively, and were greater (between 2.3 and 3.0 times higher) than the prevailing median concentrations measured in raw sewage in dry weather. TSS peak concentrations were related to weak or negative dilution factors (for events A1, A9 and A6 respectively), suggesting the resuspension of in-sewer deposits. This phenomenon was recently found to contribute between 47 to 75% of TSS loads (Gasperi et al., 2010; Passerat et al., 2011). Furthermore, Gasperi et al. (2010) demonstrated that resuspension of in-sewer deposits were the main contributor of TSS in combined sewer water in wet weather conditions and, based on data from Kafi et al. (2008), showed that the volatile fraction is relatively high (median of 76.3%). In this study, the median fraction of VSS in raw sewage was 87.5% and varied from 51.0% to 79.5% in CSOs, in relation to the varying contribution of stormwater. TSS and TOC concentrations were always strongly correlated ($\rho=0.87$, $p\leq0.05$, $n=124$). As compared to the range of the 10th and 90th percentiles of VSS fractions in the organic layer of sewer deposits (56-80%) and in wastewater particles (85-91%) reviewed by Gasperi et al. (2010), the range of values of our study indicates a large contribution of in-sewer deposit re-suspension augmented by wastewater.

E. coli concentrations generally vary over one order of magnitude during each of the 3 events presented (Figure 3.3) and were correlated with the proportion of stormwater (-0.48, $p \leq 0.05$, n=125). It was clear for events A1 and A9 that the dynamics of *E. coli* concentrations were directly related to those of the dilution factor (Figure 3.3). *E. coli* concentration variations are similar for events A1 and A9 with a decrease of 1.2 log magnitude. While a gradual decrease was observed for A1 during the first 200 min, a more marked reduction was noted for A9 (during the first 30 min) (Figure 3.3). These differences are explained by a more elevated median stormwater proportion during the A9 event (0.80) than during A1 (0.36). The peak flowrate of A9 was three times higher than A1 and occurred in less than half the time.

Final concentrations remained high with a mean value of $6.1 \pm 4.6 \times 10^5$ *E. coli*/100mL for the three events. An increase of *E. coli* concentrations was observed at the end of the events even when the dilution factor remained high because of the high concentrations of *E. coli* in sewage relative to stormwater. Wastewaters are 1.6 log times more contaminated than concentrations in stormwater (maximum median value for stormwater reported in the literature: 1.2×10^4 *E. coli*/100mL (McCarthy, 2009), explaining a moderate decrease of *E. coli* concentrations. *E. coli* concentrations in runoff waters were expected to be higher at the beginning of events because of washoff, resulting in a dilution of sewage with contaminated stormwater. As the events progressed, the importance of stormwater as a source of *E. coli* would be diminished.

The pattern of *E. coli* concentrations for A6 was different with a succession of increases and decreases. Median *E. coli* concentrations for A6 were 2.2 and 4.9 times greater than those observed for events A1 and A9 respectively. The highest *E. coli* concentrations were measured for events A5 and A6, both occurring within the snowmelt period. Figure 4 also shows that the events sampled occurred at different periods of the day. As concentrations of *E. coli* and WWMPs are known to vary during the day in dry weather conditions (see fluctuations in the WWTPs' influent, Figure 2), the time of the onset of the event is important with regards to concentrations in sewage. Both spring events (A5 and A6) occurred near mid-day when the flowrate from snowmelt and *E. coli* concentrations in raw sewage were at their peak. Given that the two snowmelt overflow events were only moderately diluted (as shown in Figure 3.3), concentrations during the overflow reflected the relative contribution of stormwater. However, intraday variations of raw wastewater (Figure 3.2) are a significant source of variability (up to 1.2 log unit) that must be considered.

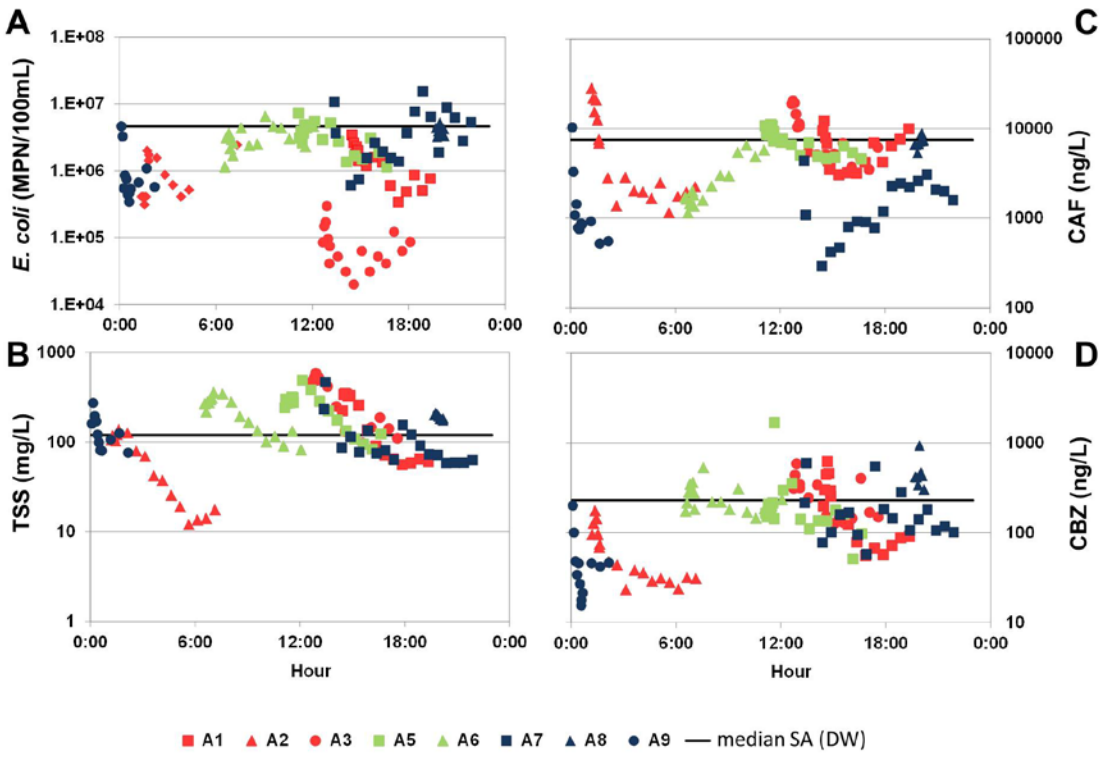

Figure 3.4 : Daily pattern of CSO concentrations for each event at OA (Fall in red, Snowmelt in green and Summer in blue). A. *E. coli*; B. TSS; C. CAF; D. CBZ. Median concentration of grab samples collected in SA in dry weather conditions is indicated by the black solid line

At the beginning of CSO events, dilution factors were negative, suggesting a resuspension of in-sewer deposits. However, no correlations were found between *E. coli* and TSS, signifying that they were not from identical sources. Moreover, the contribution of in-sewer deposits may be anticipated to be marginal as reported concentrations of fecal coliforms in sewer deposits (geometric mean of 2.8×10^3 MPN/g reported by Ellis and Yu (1995)) were approximately 2×10^5 fold lower than in our wastewaters. Consequently, *E. coli* originated primarily from raw sewage, whereas TSS were from a mixture of raw sewage, in-sewer deposits and stormwater.

WWMPs demonstrated the greatest variability in trends among compounds and events (Figure 3.3 and Figure 3.4). WWMP concentrations were primarily the result of the dilution of raw sewage and were negatively correlated with the stormwater proportions (-0.41 for CAF, -0.31 for ACE and -0.52 for THEO, $p\leq0.05$, n=125). Maximum concentrations of 12,176 ng CAF/L, 9,052 ng ACE/L and 623 ng CBZ/L were observed for A1 when the dilution factor was negative (between -0.41 and

-1.91), and were higher than median concentrations in sewage in dry weather. The lowest median concentrations were measured during A9, an event with the highest median stormwater proportion value observed (0.81). The most strongly intercorrelated WWMPs in CSOs were CAF/ACE (ρ=0.72, $p \leq 0.05$, n=125), CAF/THEO (ρ=0.67, $p \leq 0.05$, n=125) and CBZ/THEO (0.52, $p \leq 0.05$, n=125).

A clear illustration of the impact of the time of onset of CSO events can be seen by examining the time series of CAF for the three events. An increase of the concentration of CAF was observed at the end of events A1 and A6 while the stormwater proportion was high. This trend was not observed for ACE and CBZ, nor for CAF during event A9. WWMP concentrations in CSOs depend on raw sewage concentration dynamics and the level of dilution with stormwater. Patterns of raw sewage concentrations of WWMPs vary over the course of the day because of (1) different consumption patterns, (2) different absorption patterns and excretion pathways, namely the predominance of excretion through feces and/or urine; (3) the scale of the sewershed that influences mixing and dispersion. The first peak of CAF (Figure 3, event A1 and A6) corresponds to the increase of raw sewage in the morning (similar to *E. coli*) and the second peak of the day could be related to the CAF consumed throughout the day and eliminated towards the end of the day. Events A1 and A6 occurred over longer periods of the day, when CAF varies considerably (Figure 3.2), whereas A9 occurred over a shorter period, after midnight, when concentrations were decreasing towards their daily minimum.

Maximum CBZ concentrations coincided with TSS concentration peaks and were significantly correlated to TSS (ρ=0.73, $p \leq 0.05$, n=124). As filtered samples were used, our results suggest that CBZ sorbed on in-sewer deposits could contribute to dissolved CBZ concentrations following resuspension, although sorption of CBZ to sewer sediments remains to be quantified. The potential for sorption of CBZ is expected to be low based on previous reports by Kunkel and Radke (2012) in river water. However, C. F. Williams et al. (2006) showed that the addition of biosolids significantly increased the adsorption of CBZ to soil. Therefore, given the high organic content of sewer deposits, it is likely that CBZ may be adsorbed to sewer deposits, and then desorbed when diluted with stormwater. Significant correlations were also found between TSS and CAF (ρ= 0.38, $p \leq 0.05$, n=134). CBZ is the WWMP among the four studied to be primarily excreted in feces (about 70%) explaining its correlation with TSS and *E. coli*. On the other hand, *E. coli* was only correlated with CBZ (ρ= 0.29, $p \leq 0.05$, n=120) among the WWMPs. A subset of data for which conductivity

(used as a marker of wastewater outside of the snowmelt period) revealed strong correlations between conductivity and CBZ (ρ=0.51, $p \leq 0.05$, n= 38), and for *E. coli* (ρ=0.70, $p \leq 0.05$, n=38) as was also reported by Passerat et al. (2011).

3.4 Evaluation of suitable chemical indicators of fecal contamination in CSOs

Benotti and Brownawell (2007) demonstrated that the dynamic range expressed as the ratio of the highest measured concentration and the method detection limit provided an indication of the range over which a particular compound could be useful as a wastewater tracer. Dynamic ranges were calculated and ranged from 846 for CBZ to 3785 for ACE, showing that WWMPs could be useful wastewater tracers. However, raw sewage concentrations are highly variable in time and space, reflecting consumption patterns and excretion pathways. Concentrations are even more variable in smaller sewersheds than in larger conveyance systems typically serving a WWTP. Consequently, WWMP concentrations cannot be used directly to estimate the proportion of raw sewage from CSO discharges. However, cumulative average concentrations in the receiving waters based on a long term monitoring in different weather conditions can still be used to estimate (1) the contribution of CSO versus WWTP discharges and (2) the overall discharge from CSOs in the absence of a WWTP, as was the case in the present study. CBZ is the most stable and persistent WWMP in this study and thus has the highest potential to be used as a cumulative wastewater tracer in large conveyance systems.

WWMPs were assessed to determine the most suitable chemical indicator of fecal contamination discharged by CSOs having an impact on downstream potential drinking water intakes (DWIs). Thus, *E. coli* and three WWMPs (CAF, CBZ and ACE) were compared to assess potential measurable concentrations at DWIs based on potential dilution factors. Detection limits in surface waters for each substance were used as thresholds to assess wastewater impacts on DWIs and were set at (1) 10 *E. coli*/100mL; (2) 6.5 ng CAF/L;(3) 0.5 ng CBZ/L and (4) 10 ng ACE/L. The expected river concentrations after a CSO event were assessed given a potential dilution factor that was fixed at 1, 10, 100, 1,000 and 10,000 assuming a perfect mixing of the CSO discharge into the receiving water. Figure 5 illustrates the ratio of the percentage of CSO duration above the detection limit and the total duration of sampled CSO discharges for *E. coli*, CAF, CBZ and ACE. Up to a

dilution factor of 100, all compounds could have a measurable impact on a DWI. Up to a dilution factor of 1000, only *E. coli* has the potential to be frequently detected at DWIs. Specific seasonal dilution factors were also calculated based on the river flowrate observed during sampled CSO events and the 90th percentile of the measured CSO flowrate for OA. Seasonal dilution factors vary from approximately 340 in the summer to 6,900 during the snowmelt period (Figure 3.5) due to smaller flowrate values in CSOs as compared to the river. In our case, based on actual WWMP detection limits, *E. coli* appears to be the most suitable tracer for each season. Otherwise, it appeared that the three WWMPs have similar potential to be used as suitable tracers in receiving waters. Indeed, in smaller riverine systems with multiple confounding sources of *E. coli*, WWMPs will be useful as specific tracers of human fecal contamination. Other factors should also be taken into consideration (1) the increase of the dilution factor along the river corresponding to the time of travel and the mixing between CSO discharge points and DWIs; (2) chemical, physical and biological processes in the river and (3) the cumulative impacts of other outfalls also discharging upstream of the DWI.

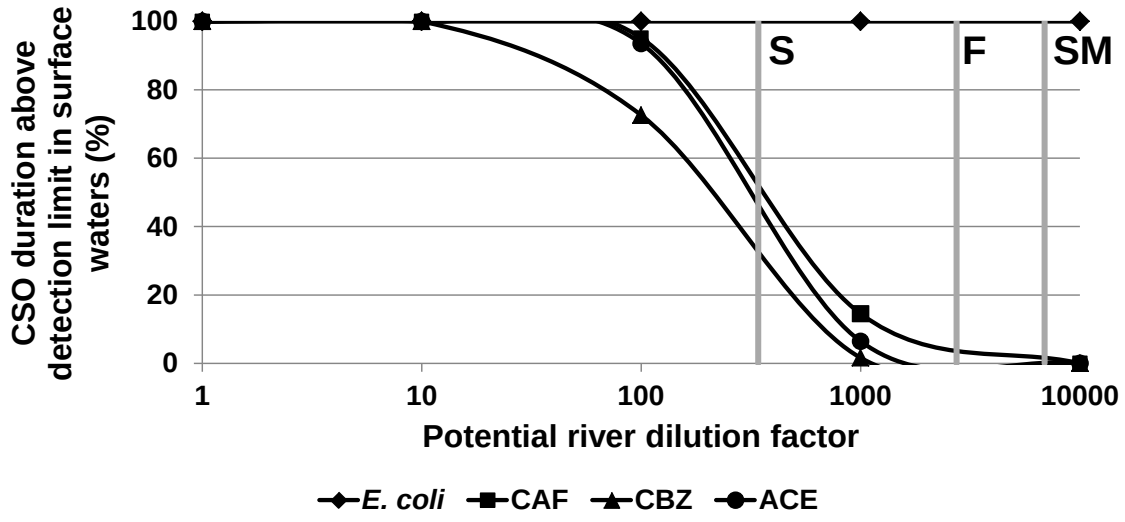

Figure 3.5: Percentage of CSO duration above detection limit (calculated as duration of the sampled CSO events that exceed the surface water detection limit of all sampled events ×100) in surface waters for *E. coli*, CAF, CBZ and ACE given a potential dilution factor. Grey lines correspond to a dilution factor calculated for the summer (S), the fall (F) and the snowmelt (SM)

3.5 Conclusions

- Concentrations in CSO events varied widely, both temporally and spatially. Median concentrations measured in dry weather conditions were different between the two studied sewersheds because of differences in land use. Thus, CSO concentrations were also different between the sewersheds and were related to different background concentrations and different stormwater proportions. Seasonal, as well as inter- and intra-event fluctuations were observed.

- Although peak concentrations were observed at the beginning of events, *E. coli* concentrations remained elevated throughout each event. This has implications for the design and implementation of CSO treatment technologies in practice.

- Generally, the concentrations observed showed relatively modest dilution by stormwater during CSOs. During the snowmelt period, our results contradicted the common belief that CSO waters were highly diluted sources of *E. coli*, TSS and WWMPs. The importance of CSO events during winter was demonstrated and represents a critical period previously disregarded, subject to fewer legal restrictions on discharge frequencies.

- *E. coli* and WWMP concentrations depended primarily on raw sewage concentrations and the level of dilution whereas TSS concentrations were a mixture of raw sewage, in-sewer deposits and stormwater. Furthermore, the time of the onset of the event and the concentration variations in raw sewage also have to be taken into account. The differences in pattern among the four WWMPs studied are probably related to (1) different consumption patterns; (2) different absorption patterns and excretion pathways, such as predominantly urine for CAF and ACE and feces for CBZ and (3) the scale of the sewershed that influences mixing and dispersion.

- CBZ appeared to be a suitable WWMP tracer for raw sewage content in CSOs because of its stability and persistence, and correlation with *E. coli*.

- The impact of CSO discharges into receiving waters could be monitored by chemical tracers depending on the dilution factor, while *E. coli* would remain the best indicator of fecal contamination.

- The concentrations of the different parameters monitored were highly variable throughout events and between CSOs and sewersheds. Our results demonstrated that a good characterisation of CSO discharges requires (1) several sampling points to integrate different land uses; (2)

numerous samplings (during each season); (3) a high frequency of sampling during each event and (4) knowledge of the temporal variability of dry weather concentrations.

CHAPITRE 4 ARTICLE 2 – TEMPORAL ANALYSIS OF *E. COLI* , TSS AND WASTEWATER MICROPOLLUTANT LOADS FROM COMBINED SEWER OVERFLOWS: IMPLICATIONS FOR MANAGEMENT

Le développement d'un modèle temporel de répartition des sources nous a permis d'identifier les sources (eau usée, eau de ruissellement, remise en suspension des dépôts) des contaminants rejetés (*E. coli*, TSS et PPSP) et d'évaluer l'évolution de leur répartition lors des DEU. Ces résultats nous ont permis d'estimer si les technologies actuelles de contrôle et de traitement des DEU pourraient diminuer les concentrations et charges rejetées pour protéger les prises d'eau potable. Les résultats de cet article sont issus d'une campagne d'échantillonnage de plusieurs DEU réalisée sur une année complète incluant la période de fonte des neiges. Cet article a été publié dans le journal Environmental Science: Processes and Impacts le 10 mars 2015 et des informations additionnelles sont présentées dans l'Annexe 2.

Madoux-Humery Anne-Sophie[a*], Sarah M. Dorner[b], Sébastien Sauvé[c], Khadija Aboulfadl[c], Martine Galarneau[d], Pierre Servais[e], Michèle Prévost[a]

a NSERC Industrial Chair on Drinking Water. Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec) Canada.

b Canada Research Chair on the Dynamics of Microbial Contaminants in Source Waters. Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec) Canada.

c Chemistry Department, University of Montreal, Montréal (Québec) Canada

d City of Laval, Engineering department, Laval (Québec) Canada

e Écologie des Systèmes Aquatiques, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, Belgium

* Corresponding author: anne.madoux@polymtl.ca

ABSTRACT

A combined sewer overflow (CSO) outfall was monitored to assess the impact of temporal mass loads on the appropriateness of treatment options. Instantaneous loads (mass/s) varied by approximately three log during events (n=9 in spring, summer and fall) with no significant seasonal variations. Median fraction of total loads discharged with the first 25% of total volume ranged from 28% (theophylline) to 40% (Total Suspended Solids (TSS)) and loads remained high for the duration of the events. *E. coli* and TSS loads originated primarily from wastewater (WW) (63% and 75% respectively). However, a mix of stormwater (SW) and sewer deposit (SD) resuspension contributed from 73 to 95% for the first 50% of the volume discharged of total TSS loads for 2 events. The contribution of SD resuspension was not negligible for Wastewater Micropollutants (WWMPs), especially for carbamazepine. Sustained high loads over the course of CSOs highlight the need to revisit current CSO and SW management strategies that focus on the treatment of early discharge volumes.

KEYWORDS

CSO, sanitary sewers, fecal contamination, *E. coli*, caffeine, carbamazepine, acetaminophen

4.1 Introduction

Combined sewer systems (CSS) are generally used to evacuate wastewaters in many of the largest cities in the world; as an example, approximately 40 million people are served by such systems in the United States (USEPA, 2004). During intense rainfall periods, wastewaters and stormwaters are mixed in the combined sewers and the total flow can exceed the transport capacity of the sewer network and/or the treatment capacity of the wastewater treatment plant (WWTP). The excess flows, called combined sewer overflows (CSOs), are generally released directly into the receiving surface waters without any treatment. CSOs have been identified as a major source of microbiological and physico-chemical contaminants (including wastewater micropollutants (WWMPs)) (Chambers et al., 1997; Gasperi et al., 2008; Gasperi et al., 2012b; Passerat et al., 2011; Phillips & Chalmers, 2009; Phillips et al., 2012; USEPA, 2004) and are widely known to severely degrade the quality of the receiving natural environments (Chambers et al., 1997; Holeton et al., 2011; USEPA, 2004). Acute and cumulative receiving water contamination is a concern because of its impacts on both public health and the economy with regards to bathing area closures, fish

and shellfish consumption restriction and drinking water resource contamination (Chambers et al., 1997; Harremoës, 1988; Holeton et al., 2011; USEPA, 2004).

CSO concentration and/or load characterizations are usually performed in environmental studies with regards to classical physico-chemical parameters (Total Suspended Solids (TSS), organic matter, nutrients). Studies examining WWMP compounds and/or microbiological contaminants in addition to physico-chemical characteristics in CSOs are rare and generally rely upon composite sampling (Gasperi et al., 2008; Gasperi et al., 2012b; Passerat et al., 2011; Phillips et al., 2012).

The temporal variability of TSS, *E. coli* and WWMP loads is rarely assessed although it is needed for source water protection planning (Signor et al., 2005) and evaluating potential treatment options (Bertrand-Krajewski et al., 1998). WWMP concentrations in receiving waters, WWTP effluents and CSOs can be used to estimate CSO WWMP loads, especially for components well removed by treatment. WWMP mass balances can be used for a first assessment of the potential contribution of CSOs to trace contaminant loads in receiving waters (Benotti & Brownawell, 2007; Buerge et al., 2006; Daneshvar et al., 2012; Weyrauch et al., 2010).

Concentrations of contaminants during CSO events result from different simultaneous phenomena: (1) the concentration in sanitary waters, (2) internal sewage contribution by in-sewer sediment resuspension and (3) contribution from external stormwater draining to the sewers (Chebbo et al., 2001; Gromaire et al., 2001). Studies have shown the importance of the contribution of sewer deposit (SD) resuspension, which in some circumstances can account for up to 80% of TSS total loads and for up to 71% of *E. coli* total loads during CSO events occurring (Chebbo et al., 2001; Gasperi et al., 2010; Gromaire et al., 2001; Passerat et al., 2011). SDs are known to have a high content of organic matter which is a controlling factor in the retention of pharmaceuticals in soils (Kinney et al., 2006a) and thus, SD could be a sink for WWMPs. The high variability of SD resuspension depends on the sewershed, the sewer system configuration, the rainfall intensity and the antecedent dry period. Little is known about the dynamic processes during an event for a combination of *E. coli*, TSS and WWMPs and these data are needed to understand how the system will respond to changes in the sewershed (e.g. implementation of best management practices or treatment processes). The contribution of SD resuspension was shown to impact TSS loads during an entire event and not just at the beginning of a rain event (Gromaire et al., 2001). But, to our knowledge, similar studies have not been performed on microbiological parameters and WWMPs.

CSO loads and concentrations also provide an indication of potential concentrations and loads from WWTP effluent in the case of treatment failure. WWTP and CSO waters have been characterized with regards to several hormones and pharmaceutical loads (Phillips et al., 2012). Although WWMPs and *E. coli* have been investigated with regards to their concentrations (Madoux-Humery et al., 2013), their relationships with flowrates and loads need to be elucidated to evaluate CSO management and treatment options.

SD can be considered as a reservoir of microbial contaminants (Ellis & Yu, 1995) and studies are needed for microbiological parameters as well as human discharge contamination tracers in order to assess public health risk of CSOs.

The main objective of the present study was to investigate the impact of temporal mass loads of *E. coli*, TSS and WWMPs on CSO management strategies. The specific objectives of this paper were to: (1) assess *E. coli*, TSS and WWMP mass loading variability within and across CSO events for an entire year, (2) estimate seasonal mass loadings of *E. coli*, TSS and WWMPs discharged by a CSO outfall, (3) determine source processes (wastewater, runoff and in-sewer deposit resuspension) and assess their relative contribution to CSO loadings during events and (4) determine the impacts of contamination sources and their temporal variability on the potential efficacy of management and treatment options.

4.2 Materials and Methods

4.2.1 Study site

The studied CSS serves approximately 280,000 residents of the Greater Montreal Area and conveys the sewage to an advanced primary wastewater treatment plant (WWTP) treating approximately 240,000 m^3/d. Treatment consists of screening, grit removal, primary settling and UV disinfection from May to October. The WWTP is the only facility that discharges treated wastewater along the studied portion of the river (approximately 40 km) (Figure 4.1). Approximately 100 CSO and sanitary sewer overflow outfalls were identified for this sewer system (Figure 4.1) and some have been characterized with regards to frequency and flowrate. Canadian provincial regulations restrict the annual discharge frequency for each outfall based upon the time of the year, the form of precipitation (rainfall vs snowmelt) and the assimilative capacity of the receiving water. From 2009-2011, 1411 overflow events occurred on average per year (MAMROT, 2012) for this sewage

collection system along the river. A total of 27 of these outfalls are located upstream from Drinking Water Intakes (DWIs) (Figure 4.1).

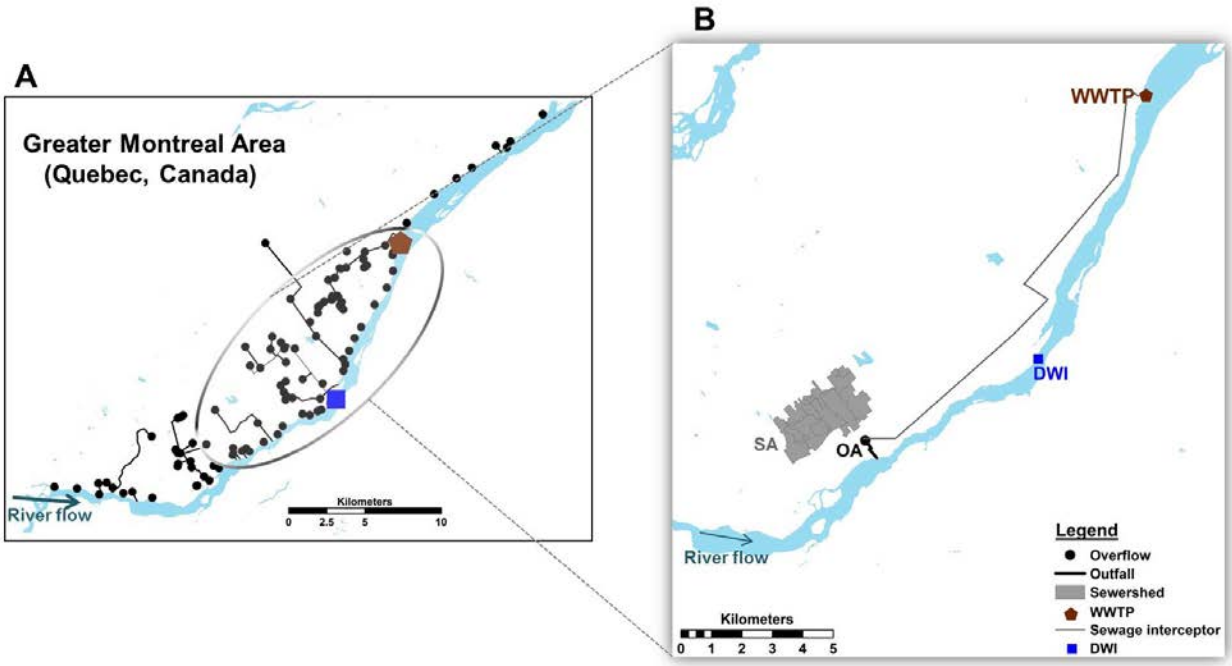

Figure 4.1: Maps of (A) the study area and (B) the sampling area

4.2.2 Sample collection

CSO events (n=9) as well as WWTP influent (n=13) and effluent (n=12) were monitored between October 2009 and July 2011.

CSO events were sampled during three different seasons (spring (n=2), summer (n=3), fall (n=4)) at one overflow outfall (overflow A – OA) (Figure 4.1). Grab samples were also collected in the sewershed A (SA) (n=9) in dry weather conditions, immediately upstream of the CSO outfall to assess raw sewage mean concentration and variability and thus, the relative contribution of wastewater to CSO loads. In order to compare loads discharged by both WWTP and CSOs, WWTP effluent was characterized by daily (24h) flow-proportional composite samples, collected in both dry and wet weather conditions, as well as WWTP influent.

CSO sample collection was performed using automated ISCO samplers (Teledyne ISCO, NB, USA) equipped with an ISCO 750 area velocity module (Teledyne ISCO, NB, USA) recording

water level and average cross-sectional velocity at a time StaRRE of 1 minute as soon as the water level exceeded 10 cm in the conduit. CSO samples were collected every 5 minutes during the first 30 minutes and then each 30 minutes over the course of 6 hours (when events lasted 6 hours or more) (n=138). More information with regards to CSO outfall, sampling methodology, samples conservation and preservation are available elsewhere (Madoux-Humery et al., 2013). *E. coli* concentrations for event 7 were only available for the beginning of the event because of analytical difficulties. Thus, *E. coli* concentrations below the detection limit in event 7 were not included in the interpretation of results requiring the full event data, but were studied with regards to intra-event variations. Only *E. coli* concentrations were analyzed for event 9.

4.2.3 Analytical Methods

E. coli concentrations were measured using the IDEXX Quanti-Tray 2000 method (IDEXX, ME, USA) having a detection limit of 1 MPN/100mL. WWMP selection was explained elsewhere (Madoux-Humery et al., 2013) and WWMPs were analyzed by an on-line solid-phase extraction combined with liquid chromatography electrospray tandem mass spectrometry with positive electrospray ionisation (SPE-LC-ESI-MS/MS). The analytical method was previously described in detail (Sauvé et al., 2012; Viglino et al., 2008). Detection limits were 9 ng/L for caffeine (CAF), 2 ng/L for carbamazepine (CBZ), 6 ng/L for theophylline (THEO) and 10 ng/L for acetaminophen (ACE) (as estimated from 5 replicate measurements of a field sample and corresponding to three times the standard deviation). All samples were analyzed in duplicate and all CSO and raw wastewater samples were above the detection limit. Laboratory and field blanks were analyzed and all values were below detection limits. WWMP uncertainties with regards to analytical methods were expected to be lower than 25% (Boleda et al., 2013). Total Suspended Solids (TSS) concentrations were analyzed in accordance with Standard Methods(American Public Health Association (APHA) et al., 2012) and associated uncertainties with regards to analytical methods were expected to be less than 10% (American Public Health Association (APHA) et al., 2012).

4.2.4 Calculations

4.2.4.1 Determination of flowrate

Flowrate calculations were estimated at 1 min intervals with the Flowlink software (Teledyne ISCO, NB, USA) to have an average relative uncertainty varying from 4 to 26% depending on the

event (Bertrand-Krajewski et al., 2008; Fletcher & Deletic, 2008). Velocity values were not measured for a 160 min period during event 8 due to technical problems. Missing velocity data were interpolated using a polynomial regression calculated from level and velocity measurements recorded before and after the technical issue. Flowrates were then calculated using the area velocity relation (Fletcher & Deletic, 2008). Even if the uncertainty relative to the extrapolation method could not be determined, the source of uncertainty was considered in the interpretation of the results.

4.2.4.2 Loads and Event Mean Concentrations (EMCs)

The sample collection was initiated when the water level in the overflow pipe exceeded 10 cm as measured by the area-velocity module (Teledyne ISCO, NB, USA) and samples were collected every 5 min for the first 15 min and then every 30 min for the next 6 hours. As flowrate measurements and sample collection did not follow the same interval of time, concentration data were interpolated using Matlab 7.1 (Mathworks, MA, USA) to determine intermediate concentration values between samples. The contaminant concentrations at the beginning of the event (as recorded by the area velocity module) was set to equal the concentration of the first sample collected. As the final sample typically occurred prior to the end of the event, the final concentration was used to represent the concentration until the end of the event, as proposed elsewhere (Bach et al., 2010b). Loads were calculated for each time interval by multiplying the concentration by the volume. For each event, total loads were calculated and then, EMCs were determined by dividing the total load by the total volume. Uncertainties ranged from 5 to 65% for loads and from 10 to 52% for EMCs. However, we judged worthwhile to only used interpolated concentrations up to the last sample collected to reduce uncertainties. Thus, except for EMCs, figures and data analysis did not take into account concentrations or loads estimated after the last sample collected.

4.2.4.3 Statistical methods

As CSO load data were neither normally nor log-normally distributed, non-parametric statistical analyses using Spearman's rank correlation and Kruskal Wallis tests were performed in Statistica Version 10 (Statsoft, OK, USA) and differences were considered significant if $p<0.05$, unless otherwise stated. Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers corresponding to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are

represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5. Analysis of the trends of EMCs to event mean flowrate was performed on log transformed data using linear regression. A covariance analysis was performed to compare the significance of the EMC factor (CSO, WWTPinfluent (WWTPaff) and WWTPeffluent (WWTPeff)) on each of the responses using log Flowrate as a covariate. The covariance analysis results (Figure A2-1 and Table A2-1 in the Supplementary Information) show that in all cases the EMC factor has a significant impact on each of the responses. Tobit regression was not warranted (Phillips et al., 2012) as the data were not left censored because of low WWMP detection limits.

4.2.4.4 Source apportionment model

The loads in overflows (L_{CSO} [X/min]) result from the apportionment of wastewater loads (L_{WW} [X/min]), stormwater loads (L_{SW} [X/min]) as well as loads resulting from sewer deposit resuspension (L_{SD} [X/min]), (where X could be MPN, mg or ng depending on the contaminant) (Equation 4.1) and were calculated with measures performed during the overflow event (Equation 4.2). Wastewater loads were calculated (Equation 4.3) and the sum of runoff and in-sewer deposits resuspension were estimated with the following mass balance (Equation 4.4).

$L_{CSO}(t) = L_{WW}(t) + L_{SW}(t) + L_{SD}(t)$ Equation 4-1

with

$L_{CSO}(t) = (C_{CSO}(t) \times V_{CSO}(t))$ Equation 4-2

$L_{WW}(t) = C_{WW} \times HCR \times Q_{WW} \times QR$ Equation 4-3

$L_{SW}(t) + L_{SD}(t) = L_{CSO}(t) - L_{WW}(t)$ Equation 4-4

Where $C_{CSO}(t)$ is the concentration measured in CSO samples. $V_{CSO}(t)$ is the volume discharged for each time interval ($V_{CSO}(t)$ (L)= Q_{CSO} (L/s)* 60), C_{WW} [MPN/L, mg/L or ng/L] is the median concentration measured at the sewage outfall in dry weather conditions, HCR is the hourly concentration ratio estimated with the ratio between the concentration measured each hour and the average daily concentration of the WWTP influent [dimensionless], Q_{WW} is the wastewater flow rate observed in the sewer in dry weather conditions and was fixed to be 500 L/s, i.e. 60% of maximal flow rate capacity, based on the design characteristics of the sewer (Passerat et al., 2011), QR is the flow rate ratio as a function of the time of day and accounts for temporal variability of flow and was determined elsewhere (Brière, 2006) [dimensionless].

Our approach differs from the methodology developed in other studies (Chebbo et al., 2001; Gasperi et al., 2010; Gromaire et al., 2001) as runoff concentrations were not directly measured in the sewershed studied. Therefore, CSO loads apportionment will be presented and discussed as fractions coming from WW and the sum of SW and SD.

4.3 Results and Discussion

A representative example of the variations of flowrate and concentrations of *E. coli*, TSS and WWMP concentrations during a CSO event is presented in Figure A2-2 in the Supplementary Information.

4.3.1 Temporal load variations in CSOs

4.3.1.1 Within event variations

Examples of flowrate and mass load variations during an overflow event (#7) are presented in Figure 4.2. *E. coli*, TSS and WWMP loads increased with flowrate and these variation patterns were similar for other events. Two limbs could be identified corresponding to the rising and falling limbs of the flowrate. In general, loads increased rapidly (by approximately 3 log during the first limb), then tapered off before falling during the second limb as the flowrate decreased. Loads measured were always higher for the rising limb than for the falling limb for a given flowrate. For event 7, load average values during the first limb were approximately 2 times higher for CAF, CBZ, ACE and TSS and 24.5 times for *E. coli* than during the falling limb (Figure 4.2). Ratios between the average loads for both limbs were calculated for three flowrate ranges (100 to 500 L/s, 500 to 1000 L/s and up to 1000 L/s) and differences among ratios were more pronounced at flowrates lower than 1000L/s. The differences were higher at flowrates of 50-500 L/s while smaller differences were noted at flows exceeding 1000 L/s (17.0 to 1.3 times for CAF, approximately 7.5 to 1.5 times for CBZ and ACE and 8.8 to 1.4 times for TSS). *E. coli* loads were available for the rising limb and only for a few samples for the falling limb of the event. The event occurred during the night (from 1 to 7am) and thus, the concentration fell to below the detection limit (as per the usual dilution used during analysis) during the falling limb. Given the uncertainty of the *E. coli* concentrations in the falling limb, only measured values above the detection limit are presented.

The dilution factor increased with the flowrate and remained high even during the limb of decreasing flowrate for event #7.

The high variability of studied contaminant loads during an event results from a combination of the variation of flowrate and concentrations that depend on raw sewage concentrations, the dilution by runoff water, the time of the day (Madoux-Humery et al., 2013) and the resuspension of pollutants from SD that are lower during the falling limb. From t=201min to t=378min, flowrate values were low, ranging from 34 to 204 L/s and the volume discharged corresponded to 14% of the total volume. However, during this period of low flow, loads were generally not negligible for WWMPs as cumulative loads were 9% of CAF and CBZ, 18% of ACE and 20% of THEO of the total load discharged. This large variability of load values demonstrates the importance of studying load temporal variations for source water protection, as concentrations of contaminants at drinking water intakes will be determined by the temporal variability of all cumulative loads.

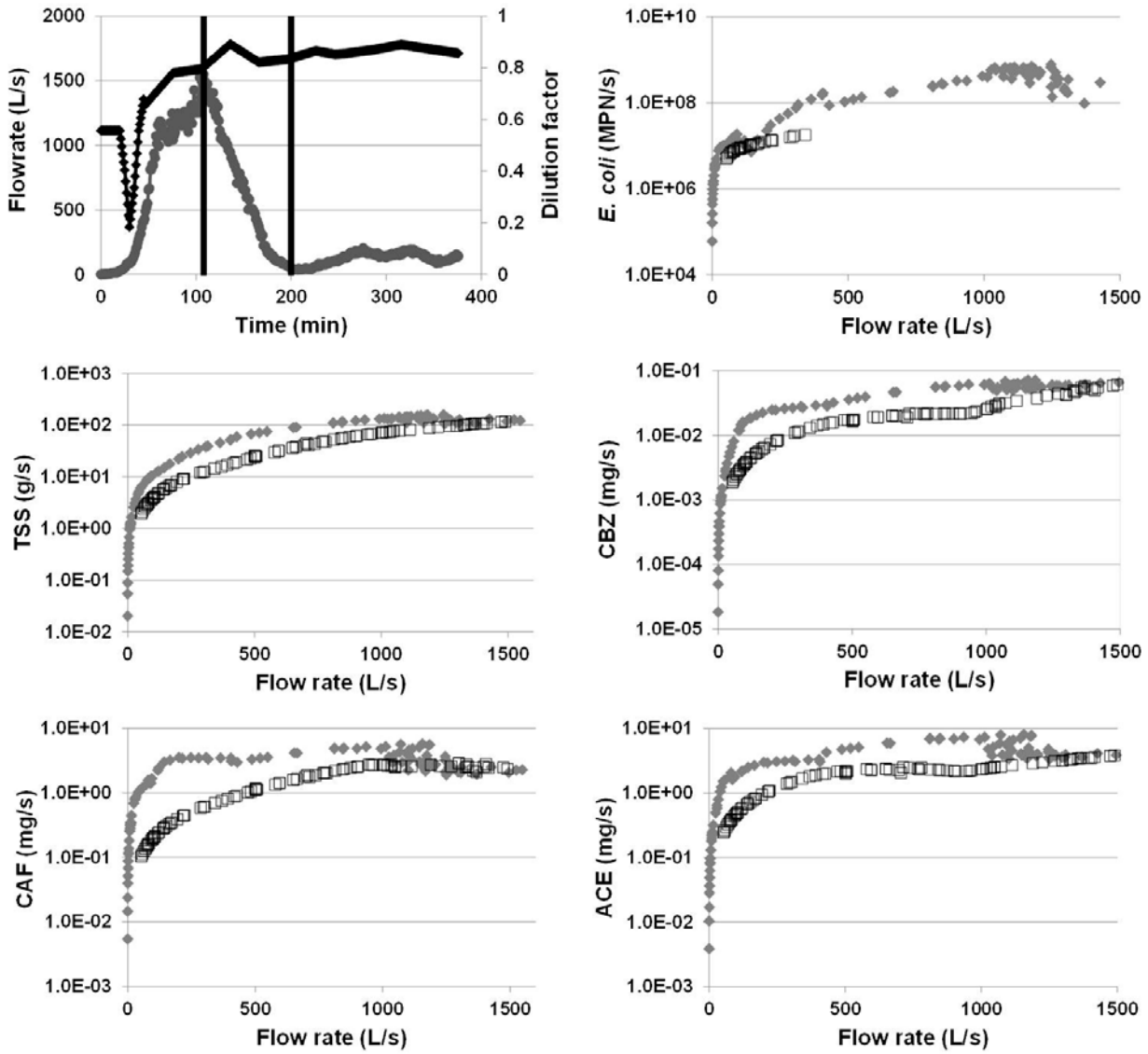

Figure 4.2: (A) Fluctuations of the flowrate and the dilution factor during an overflow event occurring in fall (event 7). Variations of estimated mass fluxes as a function of the flowrate during the flowrate rising limb (grey diamond) (from t=0 to t=108 minutes) and falling limb (empty square) (from t=109 to t=200 minutes), (B) *E. coli* (due to analytical difficulties, *E. coli* loads are only represented for some samples for the falling phase), (C) TSS, (D) CBZ, (E) CAF, (F) ACE. The proportion of stormwater, i.e dilution factor, during CSO events was calculated using CBZ as a reference tracer as detailed elsewhere (Madoux-Humery et al., 2013)

The fraction (%) of total loads discharged with regards to event volume fraction for the 9 events monitored is presented in Figure A2-3 in the Supplementary Information. Median fraction of total load discharged with the first 25% of total CSO volume varied between 28% (THEO) and 40% (TSS). No significant first flush effect was observed when using the stringent definition of 80% of the total contaminant mass has to be discharged with the first 30% of the volume (Bertrand-Krajewski et al., 1998). Furthermore, the first flush is a rare phenomenon, site-specific, and can be used to develop strategies with regards to the treatment of wet weather flow discharges34. In this study, between 72% (THEO) and 87% (TSS) of total loads median values were discharged with the first 75% of the total volume. During the discharge of the final 25% of the total CSO volume, the loads remained high with an average value of 1.7×10^{9} MPN/min and 15.5 mg/min for *E. coli* and TSS, respectively. Sustained high loads over the course of CSO events have to be considered in CSO and WW management strategies that focus on the treatment of early discharge volumes.

4.3.1.2 Inter-event variations

When considering all events, median loads were estimated at 1.30×10^{9} *E. coli*/s, 0.44 mg CAF/s, 0.01 mg CBZ/s, 0.59 mg ACE/s, 0.31 mg THEO/s and 12.8 g TSS/s. Of note, the instantaneous compound loads varied by approximately three orders of magnitude during each event Figure A2-4 in the Supplementary Information).

Overall, no significant seasonal variations of loads were observed among snowmelt, summer and fall sampling events (Figure 4.3). Median *E. coli* and TSS loads were respectively 2.1×10^{9} MPN/s and 15.0 g/s in snowmelt period, 3.5×10^{9} MPN/s and 20.4 g/s in summer as well as 1.8×10^{8} MPN/s and 9.6 g/s in fall (Figure 4.3). CSO events occurring during the snowmelt period were 2 times less frequent than events occurring during the summer but were 2.5 times longer (MAMROT, 2014). As recreational uses are limited in winter in Canada, federal guidelines generally do not restrict the frequency of CSO discharges and by extend do not require the disinfection of the WWTP effluent during the snowmelt period. According to the common belief, CSO concentrations in snowmelt periods are likely to be highly diluted. However, our data showed elevated concentrations and loads discharged by CSOs during snowmelt that will have a major impact on river water quality. CSO frequency during snowmelt should therefore be regulated and considered in discharge limits as they may constitute a threat to drinking water intakes and other water usages downstream.

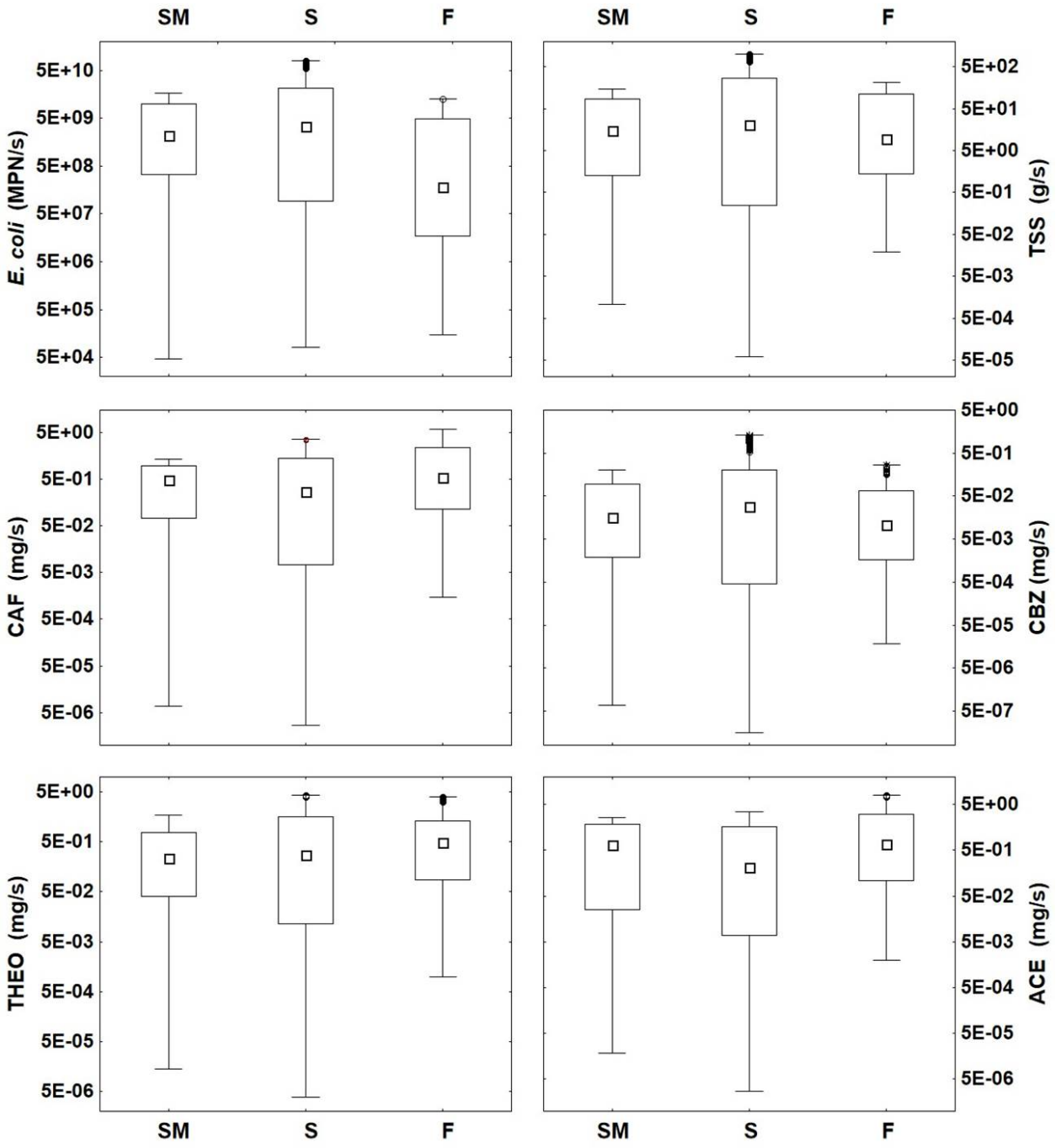

Figure 4.3: Box-plots of contaminant loads measured in CSOs for different seasons (SM: Snowmelt (n=713); S: Summer (n=657); F: Fall (n=1022 but $n_{E.\ coli}$=875). (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF, (D) CBZ, (E) THEO, (F) ACE

4.3.2 Source contribution in CSOs

4.3.2.1 Identification of apportionment processes

Figure 4.4 shows daily average concentration in the influent and effluent of the WWTP versus mean daily flow and the EMCs of various CSO events plotted versus their average flowrate.

EMCs of contaminants studied in CSOs expressed as a function of the mean CSO event flowrate showed a slope lower than 1 (in Log-Log plots) (Figure 4.4). This indicates that when the flowrate increases, the concentrations decrease at a slower rate suggesting an increasing contribution of non-wastewater sources to the loads. This trend was previously observed by Phillips et al. (2012) for hormones and WWMP concentrations in CSOs by using a statistical concentration-discharge model with flowrates ranging from 14 to 3,000 L/s. Figure 4.4 shows three groups with regards to the concentration-discharge slope: TSS (with a slope of -0.13), *E. coli* (with a slope of -0.32) and WWMPs (with slopes ranging from -0.40 to -0.60). All slopes remain above below -0.7 and thus, are indicative of significant sewer or external contributions to the CSO (Phillips et al., 2012). For the range of mean CSO event flowrate investigated, EMCs cannot be explained solely by dilution. TSS concentrations coming from both SD resuspension and suspended solids from stormwater runoff are not negligible. TSS loads in CSOs were previously identified to originate predominantly from SD resuspension and to a lesser extent from runoff (Chebbo et al., 2001; Passerat et al., 2011). With regards to *E. coli* and WWMPs, internal contributions including sewage are of greater importance than external contributions coming from runoff. *E. coli* concentrations in SW are approximately 2 log lower than in WW (Madoux-Humery et al., 2013) and WWMPs should not be found in runoff. CAF EMCs in our CSOs (the only WWMP common to both studies) are lower than CAF concentrations adapted from the study of Phillips et al. (2012) (Figure 4.4C) because concentrations in raw sewage of our study are lower due to a higher per capita water usage and significant infiltration (Brière, 2006).

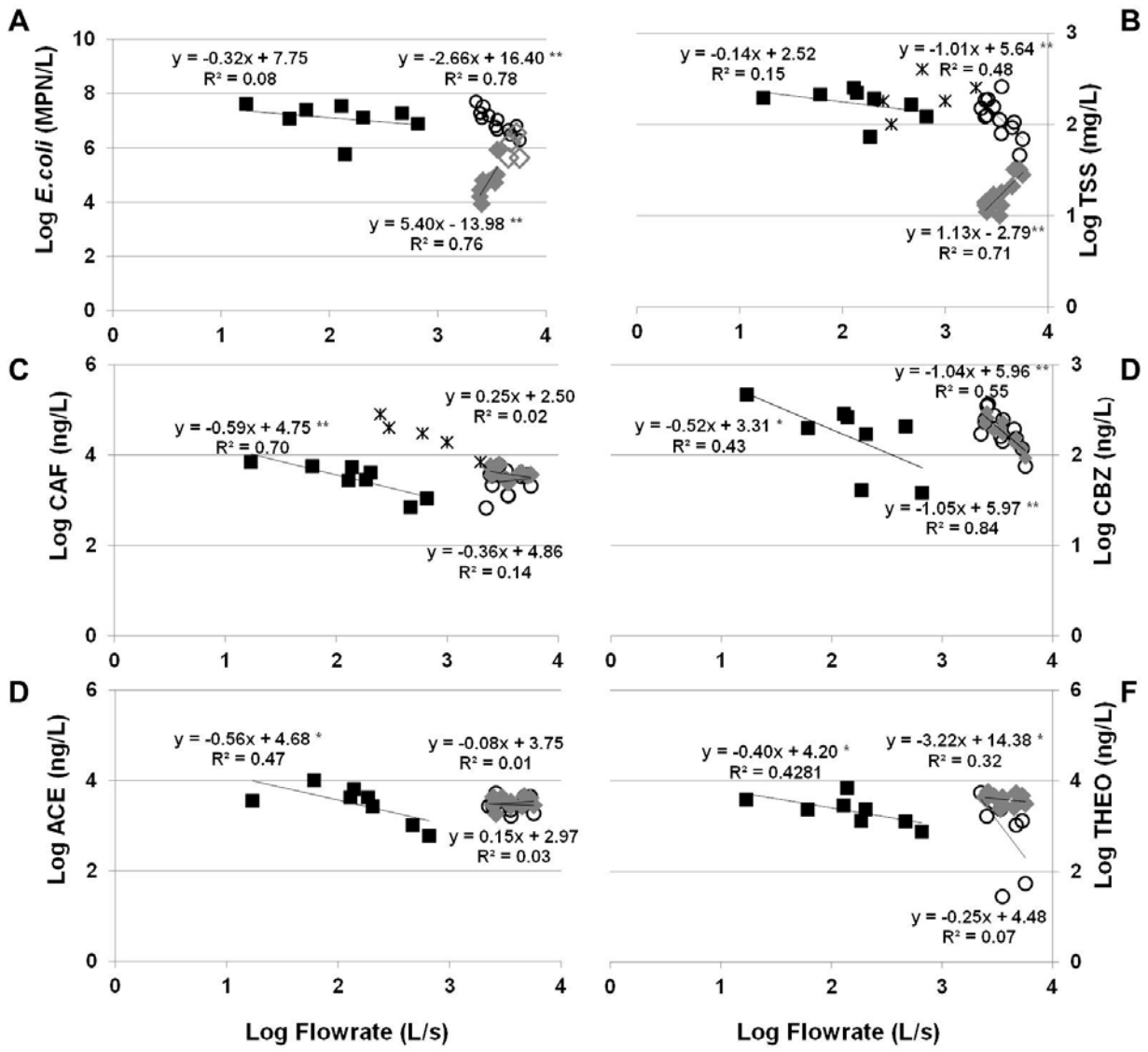

Figure 4.4: EMCs of contaminants measured in CSOs (black squares), daily mean concentrations in the influent (circles) and in the effluent (gray diamonds – empty gray diamonds are *E. coli* daily mean concentrations without UV disinfection) of the WWTP versus the mean flowrate in Log-Log plots. (A) *E. coli*, (B) CAF, (C) TSS, (D) CBZ, (E) ACE, (F) THEO. Asterisks denoted significant regression (* for $p<0.1$ and ** for $p<0.05$). Black crosses represented the samples published by Phillips et al. (2012)

4.3.2.2 Temporal variations of source contribution

The source apportionment of CSO water samples was estimated for each event. The resulting estimates of wastewater and the combination of stormwater and sewer deposit contributions (as a percentage of total CSO loads) are presented in Figure 4.5. Calculations were performed for each portion of 25% of the total volume discharged. Source apportionments were highly variable, especially for *E. coli* and TSS resulting from flow and concentration dynamics observed within events (Madoux-Humery et al., 2013) and overall between events.

By observing the median value, approximately 75% of TSS came from WW and 25% from the combination of SW and SD during events (Figure 4.5B). However, events 3, 5 and 7 were distinct as TSS loads originated primarily from SW and SD (from 73 to 95%) for the first 50% (events 3 and 5) or for the first 75% (event 7) of the total discharged volume (data not shown). No relationship was observed between the antecedent dry period for these events and the fraction of the total load discharged. However, maximum flowrate values for these 3 events were from 2.4 to 30.8 times higher (Qmax=3485, 2037 and 1549 L/s for events 3, 5 and 7 respectively) than maximum flowrates observed for the other events. The highest load proportions from the sum of SW and SD were always observed with the first 25% of the volume discharged, which coincided with an increase of flowrate. The contribution of TSS in sewer deposit resuspension has been characterized (Gasperi et al., 2010) and (1) varied significantly from one rain event to another, and (2) exceeded 60% for high-intensity rain events. Our results showed that loads came predominantly from WW rather than SW and SD during snowmelt events when the mean and peak flowrates were the lowest.

E. coli loads came primarily from raw sewage (median value of 63%), as mentioned in a previous study (Madoux-Humery et al., 2013), and to a higher extent towards the end of CSO events. *E. coli* loads originated predominantly from the mix of SW and SD throughout events 3 and 5 and for the first 75% of the discharged volume of event 9. As previously discussed, *E. coli* concentrations in SW runoff are approximately 2 orders of magnitude lower than in wastewaters, thus, the contribution of *E. coli* from runoff is expected to be negligible compared to raw wastewater (Madoux-Humery et al., 2013; Passerat et al., 2011). Elevated concentrations of *E. coli* in SW have generally been associated with wastewater or septic cross-connections (McCarthy et al., 2012; Sauvé et al., 2012). SD were also previously reported to contribute to approximately 45% of total

E. coli loads (Passerat et al., 2011) for a CSO event resulting from an intense rainfall. The fate of *E. coli* depends on its build-up and persistence in SD as they are known to have a highly organic layer favourable for the survival of fecal bacteria (Ellis & Yu, 1995; McCarthy et al., 2012; Passerat et al., 2011).

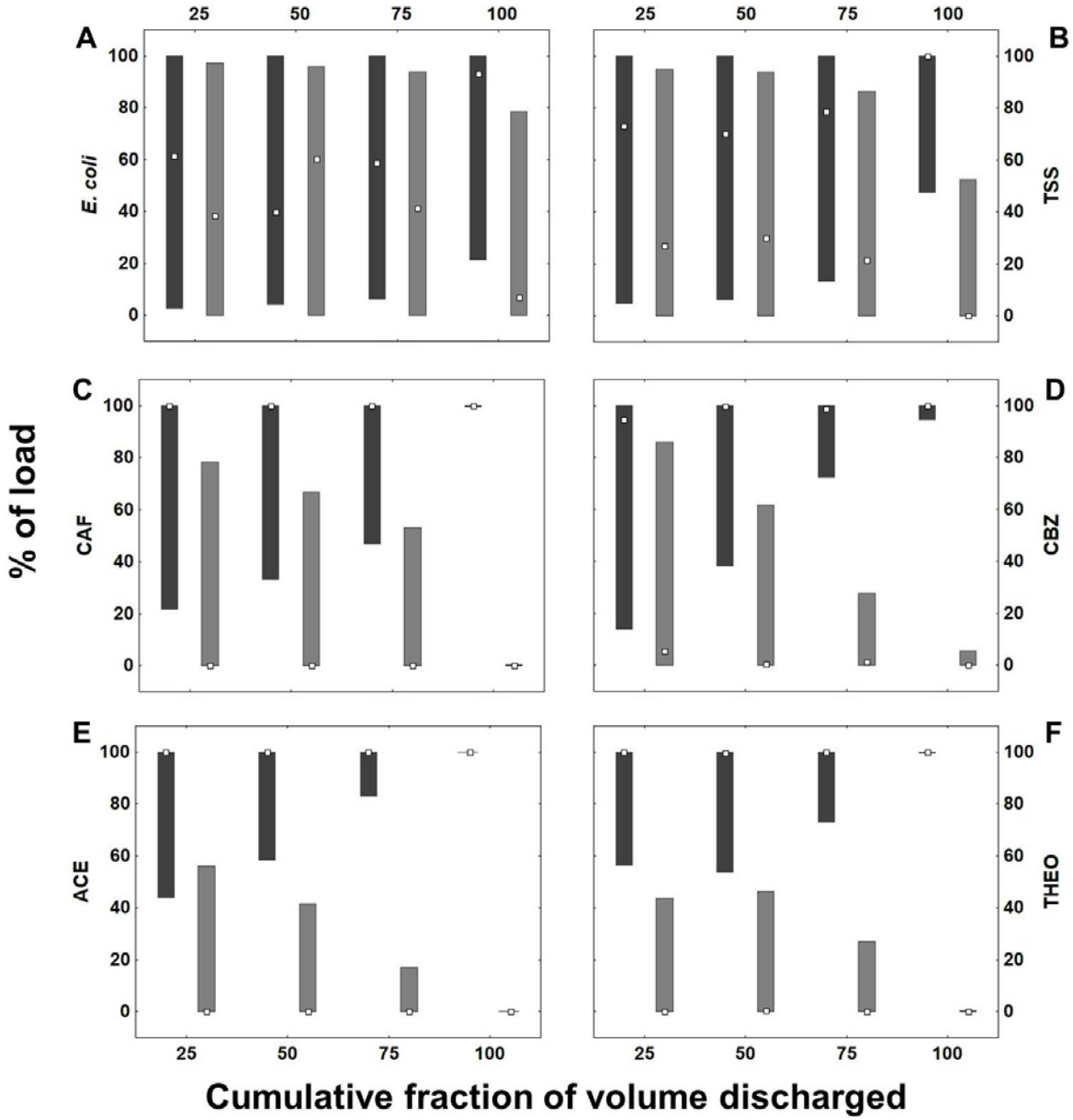

Figure 4.5: Contributions (%) of wastewater (dark grey) and the mix of runoff and in-sewer deposits (light grey) to CSO contaminant loads as a function of the cumulative fraction of volume discharged. (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF, (D) CBZ, (E) ACE, (F) THEO

WWMPs originate mainly from WW from the beginning to the end of CSO events, as a WW contribution median value of 100% was observed for CAF, ACE and THEO and reached at least 95% for CBZ for the total volume discharged (Figure 4.5C, D, E and F). These results are confirmed by the fact that WWMP concentrations in CSOs were found to depend primarily on raw sewage concentrations and the level of dilution (Madoux-Humery et al., 2013).

Nevertheless, SD and SW contribution of WWMP was sometimes identified to be significant, especially for events 5 and 7. Generally, the largest fraction of WWMPs was discharged with the first 50% of the total discharged volume and reached 78% for CAF (event 5), 86% for CBZ (event 3), 56% for ACE (event 7) and 46% for THEO (event 5). Furthermore, as we expected no WWMPs in runoff waters, it can be assumed that the contribution comes exclusively from SDs. SDs were more frequently estimated to be a source of CBZ (5 events of 8 studied) than other WWMPs and that could be explained by the fact that CBZ has a higher Kow value (logKowCBZ=2.45) and is less biodegradable (Kinney et al., 2006a; Sauvé et al., 2012; Tadeo et al., 2012).

SDs remain a concern in terms of concentrations released during high CSO flows. More attention has been dedicated to the development of new devices for Real Time Control (RTC) of solids in sewer pipes in order to enable effective management of SDs (Campisano et al., 2013). Treatment processes of CSO volumes are limited with regards to volumes that can be treated. In this study, the main source of contaminants alternated between raw sewage and SDs and the loads discharged were highly variable during CSO events and remained high until the end. Moreover, a large proportion of the load was not discharged at the beginning of the event, for example with the first 25% of the volume. Thus, the effort to reduce runoff volumes by the application of SW best management practices will reduce CSO volumes but may not sufficiently reduce peak loads as previously shown with the implementation of rain gardens (by allowing SD to increase during dry weather with only a marginal reduction of peak flows for the largest events) (Autixier et al., 2014). Thus, the cost-to-benefit ratio of such load reduction should be carefully evaluated.

4.3.3 Implications for CSO management

The cumulative impact of all the discharge points (CSO outfalls and WWTP) for a specific period must be considered from an urban drainage management perspective, especially for meeting environmental water quality objectives.

Interestingly, it can be noted on Figure 4.4 (A, B and D) that daily mean concentrations of TSS, *E. coli* and CBZ decreased in the WWTP influent as flowrate increased. Patterns observed in the WWTP influent are related to the dilution of raw wastewaters with runoff waters which also increase the variability of concentrations between dry and wet weather conditions (Lucas et al., 2014). However, no specific trend was noted for CAF, THEO and ACE. During high flows, the velocity increases, therefore the travel time in the sewer is reduced. Less biodegradation of the WWMPs occurs when the travel time is reduced. As CBZ is known for its refractory behavior, dilution is a more important process than biodegradation for this WWMP. In WWTP effluents, TSS and *E. coli* concentrations increased with increasing flowrates (Figure 4.4A and B). This was previously observed for TSS (Phillips et al., 2012) and *E. coli* (Lucas et al., 2014) reflecting the decrease of the treatment efficiency during wet weather conditions with the decrease of the hydraulic retention time. Furthermore, two sub-groups could be identified for *E. coli* depending on the use or not of UV disinfection at the WWTP (Figure 4.4A). As expected, *E. coli* concentrations were higher when no UV disinfection was applied. With UV disinfection, *E. coli* concentrations increased with increasing flowrates. As TSS concentrations in the effluent increase with flowrates, one can assume that the fraction of *E. coli* attached to TSS is less efficiently removed in the primary settlers (Lucas et al., 2014) and that the UV efficiency is reduced by the presence of the particles (Liang et al., 2013; Wang et al., 2006). In our case, no decrease of WWMP EMCs was observed in the WWTP. Our measurements at the influent and effluent of the WWTP indicate that these compounds are not removed by the advanced primary treatment in place (Figure 4.4C, D, E and F). Thus, their concentrations are influenced primarily by dilution and degradation processes.

The location of CSO outfalls and the duration of events may also cause acute conditions for several subsequent uses such as drinking water treatment located downstream of several of these CSOs (Madoux-Humery et al., 2013; Smeets et al., 2010). Pathogen loads are critical from a public health perspective and limiting CSO event frequency and duration as well as improving WW treatment are required. Sustained high loads observed over the course of this CSOs study challenge the validity of conventional CSO and SW interception and treatment practices that focus on early volumes to capture a large fraction of the loads. Our observations also demonstrate the need to implement efficient management practices to reduce the volume of CSOs, as capturing the entire volume is generally not technically and financially feasible. Strategies for reducing peak flow in

the sewershed could be effective for reducing peak loads, provided that they do not lead to increased accumulation of SDs.

Improving wastewater treatment is essential for the removal of WWMPs and thus, improving aquatic biota protection. However, the upgrade of the treatment at the WWTP will increase the relative contribution of WWMPs from CSOs versus the WWTP. CSO discharges of compounds that are effectively removed during wastewater treatment are known to contribute a substantial portion of the total mass discharged to the receiving water (Benotti & Brownawell, 2007; Phillips et al., 2012). Contaminant removal efficiency decreases in wet weather conditions at the WWTP resulting in a disproportionate amount of total loads of some contaminants occurring during wet weather, even in the absence of CSOs. Thus, both the treatment of the WWTP and the management of CSOs need to be considered in an urban management plan to improve the quality of water resources.

4.3.4 Conclusions

- *E. coli*, TSS and WWMP instantaneous loads varied generally by approximately three orders of magnitude during each event. Contaminant load variations followed the flowrate dynamics, i.e loadings increased rapidly with flowrate and, then tapered off and falled as the flowrate decreased. Loads were generally higher during the rising limb of the flowrate than during the falling limb.
- Substantial loads are discharged throughout events and not only at the beginning (with the first 25% of the total volume).
- CSO events during the snowmelt period appear to discharge the same range of loads as during other seasons. CSO discharge frequency should be regulated for the snowmelt period as this period has been identified to be critical for downstream drinking water treatment plants.
- *E. coli* and TSS loads appeared to originate primarily from the WW during events even if the contribution of SW and SD resuspension was not negligible. WW was the primarily source of WWMP loads and SD resuspension was not negligible for CBZ loads.

- WWMPs removal requires advanced treatment. Thus, total annual WWMP loads will not be reduced with conventional CSO treatment. RTC and retention of CSO total volumes upstream of DWIs is critical for reducing *E. coli* loads.
- Emphasis should be placed on improving treatment at the WWTP and reducing volumes to be treated in wet weather while considering the reduction of peak loads.

CHAPITRE 5 ARTICLE 3 – THE EFFECTS OF COMBINED SEWER OVERFLOW EVENTS ON RIVERINE SOURCES OF DRINKING WATER

Dans le cadre de cet article, une approche statistique novatrice permettant d'analyser la variabilité des concentrations en *E. coli* au niveau des prises d'eau a été testée sur les données de suivi de l'eau brute d'une décennie afin de mettre en évidence les pointes de concentration en *E. coli* et d'identifier les causes de ces épisodes. De plus, les travaux ont permis de déterminer si les protocoles de suivi routiniers demandés par la réglementation permettent d'identifier les périodes de risques élevés correspondant à des DEU. Pour ce faire, un protocole d'échantillonnage bi-mensuel par temps sec et par temps de pluie a été développé afin d'évaluer les impacts des DEU sur la qualité de l'eau du milieu récepteur, en différents points de la rivière (ponts B1, B2 et B3) ainsi qu'aux prises d'eau potable (DWI-1 et DWI-2) et le suivi spécifique des concentrations en rivière lors de DEU échantillonnés a été réalisé. Cet article a été accepté par le journal *Water Research* et est actuellement sous presse. Des informations additionnelles sont présentées dans l'Annexe 3.

THE EFFECTS OF COMBINED SEWER OVERFLOW EVENTS ON RIVERINE SOURCES OF DRINKING WATER

Anne-Sophie Madoux-Humery[a],*, Sarah Dorner[b], Sébastien Sauvé[c], Khadija Aboulfadl[c], Martine Galarneau[d], Pierre Servais[e], Michèle Prévost[a]

[a] NSERC Industrial Chair on Drinking Water. Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec) Canada.

[b] Canada Research Chair on the Dynamics of Microbial Contaminants in Source Waters. Civil, Geological and Mining Engineering, École Polytechnique de Montréal, Montréal (Québec) Canada.

[c] Chemistry Department, University of Montreal, Montréal (Québec) Canada

[d] City of Laval, Engineering Services, Laval (Québec) Canada

[e] Écologie des Systèmes Aquatiques, Université Libre de Bruxelles, Bruxelles, Belgium

ABSTRACT

This study was set out to investigate the impacts of Combined Sewer Overflows (CSOs) on the microbiological water quality of a river used as a source of drinking water treatment plants. *E. coli* concentrations were monitored at various stations of a river segment located in the Greater Montreal Area including two Drinking Water Intakes (DWIs) in different weather conditions (dry weather and wet weather (precipitation and snowmelt period)). Long-term monitoring data (2002-2011) at DWIs revealed good microbiological water quality with *E. coli* median concentrations of 20 and 30 CFU/100mL for DWI-1 and DWI-2 respectively. However, *E. coli* concentration peaks reached up to 510 and 1,000 CFU/100mL for both DWIs respectively. Statistical Process Control (SPC) analysis allowed the identification of *E. coli* concentration peaks in almost a decade of routine monitoring data at DWIs. Almost 80% of these concentrations were linked to CSO discharges caused by precipitation exceeding 10 mm or spring snowmelt.

Dry weather monitoring confirmed good microbiological water quality. Wet weather monitoring showed an increase of approximately 1.5 log of *E. coli* concentrations at DWIs. Cumulative impacts of CSO discharges were quantified at the river center with an increase of approximately 0.5 log of *E. coli* concentrations. Caffeine (CAF) was tested as a potential chemical indicator of CSO discharges in the river and CAF concentrations fell within the range of previous measurements performed for surface waters in the same area (~20 ng/L). However, no significant differences were observed between CAF concentrations in dry and wet weather, as the dilution potential of the river was too high. CSO event based monitoring demonstrated that current bi-monthly or weekly compliance monitoring at DWIs underestimate *E. coli* concentrations entering DWIs and thus, should not be used to quantify the risk at DWIs. High frequency event-based monitoring is a desirable approach to establish the importance and duration of *E. coli* peak concentrations entering DWIs

KEYWORDS

Combined sewer overflows, drinking water intakes, *Escherichia coli*, fecal indicator bacteria, caffeine

5.1 Introduction

Meteorological conditions are known to affect the microbiological contamination of rivers and precipitation has previously been linked to waterborne disease outbreaks (Curriero et al., 2001; Nichols et al., 2009; Rose et al., 2000). Indeed, degraded river water episodes with regards to indicators of fecal contamination (e.g. fecal coliforms, *E. coli*) and pathogens have been reported during and after intense rain events (Atherholt et al., 1998; Burnet et al., 2014; Kistemann et al., 2002; Signor et al., 2005). Different processes are driving these increases: resuspension of contaminated sediments due to increases in river discharges and velocities, increased runoff, decrease in the efficiency of wastewater treatment plants (WWTPs) and possible by-pass of some treatment stages, and combined sewer overflows (CSOs) (Amirat et al., 2012; Lucas et al., 2014; Pachepsky & Shelton, 2011; Passerat et al., 2011; Quilliam et al., 2011; Wu et al., 2009). In dense urban areas equipped with combined sewers, the release of a mixture of domestic wastewater and urban runoff waters by CSOs has been shown to be a major source of microbiological contaminants during rainy periods (Gibson III et al., 1998; Madoux-Humery et al., 2013; Passerat et al., 2011; USEPA, 2004). CSOs are highly transient phenomena typically discharging during a couple of hours; they can induce very rapid and important increases in the concentration of fecal indicators and pathogens in the receiving waters. In rivers, the importance of the peak of contamination depends on the ratio between the CSO discharge and the river flow rate, the mixing conditions and the concentration of microbial contaminants in the CSO. Some studies have reported increases in the concentration of *E. coli* in rivers of one order of magnitude (Passerat et al., 2011) and even two orders of magnitude (Ouattara et al., 2014) as a result of a CSO discharge.

When river water is used as the source for drinking water production, degraded microbiological water quality can increase the likelihood of treatment breakthroughs and waterborne disease outbreaks. Microbiological water quality impairment at drinking water intakes (DWI) during wet weather combined with a malfunction of the treatment at the drinking water plant have led to waterborne disease outbreaks (Auld et al., 2004; Jagai et al., 2015; Mac Kenzie et al., 1994; O'Neil et al., 1985). To minimize this risk, different measures can be taken: (1) multiple drinking water treatment barriers should be present and provide effective removal of pathogens; (2) drinking water source protection plans should identify potential threats located upstream from DWIs and assess

the vulnerability of the DWIs to transient microbiological contamination; (3) regulations on CSO frequency and discharge volumes must be introduced in legislation.

Several countries have implemented rigorous regulations on drinking water treatment based on the surveillance and removal of *Cryptosporidium* considered as a major risk for waterborne disease (Craun et al., 2006), while most regulations rely on widely recognized fecal indicators such as *E. coli* to assess microbiological quality of source water (Ashbolt et al., 2001; Tallon et al., 2005). Thresholds of *E. coli* concentrations in source water have been used to determine the log removal requirements by treatment processes for *Cryptosporidium*, *Giardia* and viruses. In the 2010 revised Long Term 2 Enhanced Surface Water Treatment Rule (LT2ESWTR) (USEPA, 2010) expensive *Cryptosporidium* monitoring is not required unless high densities of *E. coli* (i.e. mean concentration higher than 100 *E. coli*/100mL) are present in source waters of small systems in the United States (<10,000 people). This *E. coli* threshold is considered to safely predict densities of *Cryptosporidium* below 0.075 oocysts/L in source waters. Below this threshold of 100 *E. coli*/100 mL (Bin 1), treatment requirements are the removals of at least 3 log for Giardia and 4 log for viruses that can be met by conventional filtration and disinfection. A recent meta-analysis suggested that *E. coli* can underestimate the presence of *Cryptosporidium* in agricultural source waters, while *E. coli* was considered as a conservative surrogate for *Cryptosporidium* in urban waters (Lalancette et al., 2014).

Wastewater micropollutants (WWMPs) have been used as tracers of sewage contamination in surface waters (Benotti & Brownawell, 2007; Buerge et al., 2003; Weyrauch et al., 2010) as some organic compounds are ubiquitous in sewage waters and could be more persistent in surface waters than some microbial contaminants (Gasser et al., 2010). In the present study, caffeine (CAF) was the WWMP chosen to be investigated as it was always abundant in wastewaters as well as in rivers in urban areas (Daneshvar et al., 2012; Guérineau et al., 2014; Viglino et al., 2008) and was previously proposed as an indicator of recent untreated wastewater discharge through CSOs (Buerge et al., 2006).

In this paper, we set out to investigate the impact of CSOs on river water quality at DWIs located in the Greater Montreal Area as CSOs in drinking water sources can have a measurable health effect (Jagai et al., 2015). Multiple CSO-event based monitoring were also performed in the river to assess *E. coli* peak concentrations at DWIs. This type of monitoring has not previously been

conducted as only one similar event (not multiple) has been published (Passerat et al. 2011). This study therefore characterizes the variability of CSO impacts on a river. Our objectives were to: (1) propose a novel statistical approach to analyze the variability of *E. coli* concentrations at DWIs; (2) quantify the short-term and seasonal variability of *E. coli* concentrations upstream and at DWIs; (3) document the baseline and peak events of *E. coli* and WWMPs contamination upstream and at DWIs during dry weather and after confirmed CSO discharges; (4) verify if routine bi-monthly samples can identify high risk periods corresponding to CSO discharge periods.

5.2 Materials and methods

5.2.1 Study area

River and DWIs

This study was conducted in a river segment, located in the Greater Montréal area draining a watershed of approximately 146,000 km^2 and used as source for two DWIs (Figure 5.1) serving approximately 280,000 inhabitants. The water flowing in the studied river stretch is coming from a lake located upstream which is fed by a river in which sewerage systems serving approximately 1.2 million people discharge. The study area has a humid continental climate with average annual precipitation falling as rainfall of 62.4 cm/year and average cumulative precipitation falling as snow of approximately 200 cm/year, mostly occurring from November to April.

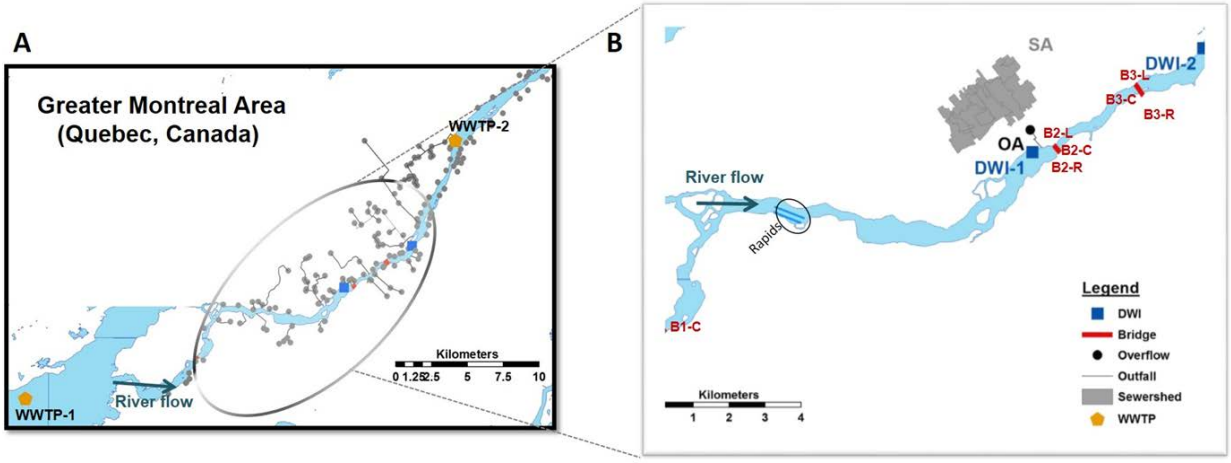

Figure 5.1: Maps of (A) the study area and (B) the sampling area

The river flow rate ranged from 473 to 2,678 m^3/s (with a median annual value of 1,186 m^3/s) between 2002 and 2011 (Centre d'expertise hydrique du Québec, 2012). The low-flow period occurs at the end of summer; the lowest monthly median value of 776 m^3/s was observed in August. High flow events for the river occur in spring and are attributed to the local snowmelt period in April (with a median monthly value of 1,795 m^3/s and a maximum monthly value of 2,678 m^3/s) and to the snowmelt in the upstream watershed in May (with a median monthly value of 1,460 m^3/s and a maximum monthly value of 2,408 m^3/s) (Figure A3-1). A detailed discussion on river flows is available in Jallifier-Verne et al. (2015). The average residence time of the river segment between sampling stations B1 and DWI-2 was estimated to range from 2 to 5 hours.

Contamination sources

WWTP-1 serving approximately 7,600 people and treating 2,900 m^3/d discharges on a lake is located upstream from the B1 station (Figure 5.1). WWTP-2 treats 240,000 m^3/d and is located downstream of the studied DWIs (Figure 5.1). Treatment at WWTP-1 consists of an aerated pond and at WWTP-2 of primary treatment with physico-chemical phosphorus removal; both WWTP effluents are disinfected with UV disinfection from May to September. CSO discharges are the main source of microbial contaminants in the studied river segment. In the previous study, concentrations of *E. coli* and WWMPs were observed to follow a diurnal pattern, Concentrations were not heavily diluted, particularly during the snowmelt period (Madoux-Humery et al., 2013). A total of 27 CSO outfalls are located between sampling station B1 and DWI-2 (Figure 5.1) and discharge without any treatment during rainfall events and the snowmelt period when the hydraulic capacity of the sewer system (serving approximately 280,000 people) and/or the WWTP-2 is exceeded. Occasionally, a small number of dry weather discharges occur, but these are not permitted. A total of 2,258 CSO events were reported upstream from DWI-2 during the 2009-2011 period (MAMROT, 2014).

5.2.2 Sampling program

A tiered sampling and analysis approach was implemented to compare long-term and short-term monitoring results and to compare various short-term monitoring strategies. A detailed description of the tiered sampling program is provided in Table 5.1. Local precipitation data were obtained from four nearby rain gauges and a weighted daily average was calculated.

Table 5.1 : Tiered sampling program

Sampling type	Objectives	Meteorological conditions	Statistical analyses
Long-term monitoring	Assess the variability of *E. coli* concentrations from weekly monitoring at DWIs and identify peak concentrations	Dry weather: no precipitation recorded 3 days prior to sampling Wet weather: precipitation exceeded 10mm/day. *E. coli* concentration for days with precipitation ranging for 0.1 and 10 mm were not included in the analysis	SPC analysis
Short-term monitoring	Assess the representativeness of grab sampling	Dry weather: no precipitation recorded 3 days prior to sampling	CV
Bi-monthly monitoring	Assess the impact of CSO discharges on the river water quality and at DWIs	Dry weather: no precipitation recorded 3 days prior to sampling Wet weather: precipitation and confirmation that CSO occurred (100% of precipitation days lead to CSO discharge)	Kruskal Wallis ANOVA tests
CSO event-based monitoring	Assess the short-term impacts of CSO discharges on river water quality	Wet weather: monitoring of the discharge of CSO at outfall OA (rainy and snowmelt periods)	

The source water characterization of DWI-1 and DWI-2 was performed by compiling weekly *E. coli* monitoring data available at both DWIs from 2002 to 2011. The river has a width of 520 m at DWI-1 and 260 m at DWI-2 and both intakes are located approximately 70 m from the left bank of the river. Rapids providing mixing are located approximately 8 km upstream from DWI-1 (Figure 5.1). Unlike B3, bridge B2 is located downstream of these rapids that mix the discharges of the 6 CSO outfalls located upstream. Bridge B2 is mostly impacted by 18 CSO outfalls located downstream from the rapids and distributed over a distance of 8 km. In addition to the CSO discharges between B1 and B2, B3 is also impacted by the discharges of 9 additional CSO outfalls distributed over 3 km.

A bi-monthly monitoring program was performed at the 9 sampling stations from October 2009 to March 2011 in both dry (n=16) and wet (n=11) weather conditions, except in winter when ice covered the river. River water grab samples were collected in both DWIs and from 3 bridges (B1-C, B2-C and B3-C) (Figure 5.1) in order to provide a longitudinal distribution of contaminants across the river. Additionally, transversal sampling was conducted across the river on bridges B2 and B3, i.e. close (approximately 50 m) from the left and right banks of the river (B2-L, B2-R, B3-L, B3-R). Sampling was generally performed at the same hour during the different sampling campaigns and lasted approximately 3 hours for the nine stations.

The short-term temporal variation of contaminant concentrations was assessed to evaluate the representativeness of grab sampling results for 9 sampling locations in the study area. Sampling was performed once in dry weather conditions over the course of 6 hours at the 2 DWIs and at the bridges (total of 9 sampling stations), every 5 minutes during the first 30 minutes and then each 30 minutes for the next 6 hours (n=18).

A total of 5 specific CSO events were monitored in the river by sampling at bridges B2 and B3 while also monitoring the water quality of a CSO at outfall OA (Figure 5.1). Monitoring results of CSO discharges for this outfall OA (n=9) were presented in previous papers (Madoux-Humery et al., 2015; Madoux-Humery et al., 2013). River samples were collected downstream from the CSO outfall (n=36) on bridges B2 and B3, 3 hours after the beginning of the CSO discharge. Samples were collected at center (B2-C and B3-C) and at left (B2-L and B3-L) and right (B2-R and B3-R) banks of the river in order to assess the longitudinal and transversal mixing of CSOs in the river water.

During each sampling campaign, 1-L grab samples were collected at the same depth (approximately 50 cm below the water surface to avoid collecting the surface microlayer) using a plunger equipped with autoclaved bottles. Samples were stored in 250 mL pre-autoclaved in polypropylene bottles in the dark at 4°C. Microbiological analyses were performed within 6 hours after sample collection. For CAF analysis, a sample volume of 40 mL was immediately filtered through 0.45 µm mixed cellulose membranes (Millipore, MA, USA) in pre-cleaned glass bottles (12 hours-washing in 25% HCl solution followed by 5 hours in oven at 500°C) and acidified at pH 2 using a formic acid solution (purity 98%) (Fluka Analytical, SIGMA-ALDRICH, Oakville, ON, CA) in order to avoid degradation. The CAF concentration measurements were performed within 3 weeks.

5.2.3 Analytical methods

A volume of 100 mL were used to enumerate *E. coli* by using plate count on EC-MUG medium (Method 9221F) (American Public Health Association (APHA) et al. 2012) and expressed in CFU/100 mL during the long term monitoring at the DWIs and using the IDEXX Quanti-Tray 2000 most probable number method (IDEXX, ME, USA) and expressed in MPN/100 mL during the sampling campaigns performed in the scope of the present study. Caffeine analyses were performed by an on-line solid-phase extraction combined with liquid chromatography electrospray tandem mass spectrometry with positive electrospray ionisation (SPE-LC-ESI-MS/MS) first developed by Viglino et al. (2008) and modified by Sauvé et al. (2012). The detection limit (6.8 ng/L) was estimated as three times the standard deviation of 5 replicate measurements. All samples were analyzed in duplicate.

5.2.4 Calculations and statistical methods

Statistics, such as the determination of coefficients of variations (CVs), were performed in Statistica Version 12.5 (Statsoft, OK, USA).

A Statistical Process Control (SPC) analysis was used as a tool to interpret *E. coli* concentrations data at DWIs from 2002 to 2011. Quality Control Charts module based on Shewhart charts were determined to estimate the common variability of *E. coli* concentrations and to detect significant changes of *E. coli* concentration variations. A significant variation is called an upper control limit (UCL) and is generally defined as 3 times standard deviation away from the baseline data.

As contaminant concentrations measured in rivers were neither normally nor log-normally distributed, non-parametric statistical analyses using Spearman's rank correlation and Kruskal Wallis ANOVA tests were performed. Differences between concentrations in dry and wet weather were considered significant if $p<0.05$, unless stated otherwise.

5.3 Results

5.3.1 Long-term monitoring

From 2002 to 2011, *E. coli* concentrations at both DWIs generally reveal good microbiological water quality with *E. coli* arithmetic mean concentrations of 43 and 62 CFU/100 mL observed at DWI-1 (n=601) and DWI-2 (n=723), respectively (Figure 5.2). As these concentrations are below the benchmark of 100 *E. coli*/100mL, according to the USEPA regulations both DWIs are classified in the Bin 1 category.

The data collected at both DWIs were used to investigate seasonal variation of fecal contamination. Seasonal *E. coli* median concentrations varied from 10 to 40 CFU/100mL at DWI-1 and from 20 to 60 CFU/100mL at DWI-2 (Figure A3-2). The range between the lowest and the highest *E. coli* concentrations was approximately 2 orders of magnitude during each season. *E. coli* concentrations were significantly higher during the winter than the summer for both DWIs. However, fewer CSOs occurred during winter (approximately 15% of the total annual CSOs) and the flowrate of the river is approximately 1.5 times higher (Figure A3-1) during winter than summer increasing the potential dilution of microbial contaminants. Several factors could explain the higher *E. coli* concentrations in winter: (1) WWTPs located upstream from B1-C release higher concentrations of fecal bacteria in winter as there is no disinfection treatment in WWTPs at this period of the year; (2) *E. coli* survival in river waters is longer in cold water in winter than during summer (water temperature ranging from 0.6 to 27.3°C (median value: 9.1°C)) (Blaustein et al., 2013; de Brauwere et al., 2014), (3) higher streamflow velocities in the winter compared to the summer lead to greater dispersion of *E. coli* towards the drinking water intakes (Jalliffier-Verne, 2015).

E. coli concentration peaks were observed at both DWIs and reached up to 510 and 1000 CFU/100mL at DWI-1 and DWI-2, respectively (Figure 5.2). In the case of the studied river stretch where there is very limited input of treated wastewaters, the most probable hypothesis to explain the observed peaks of *E. coli* concentration is the release from CSOs upstream of DWIs.

Thus, different data mining approaches were tested to highlight the impact of CSOs on *E. coli* concentrations variability at DWIs.

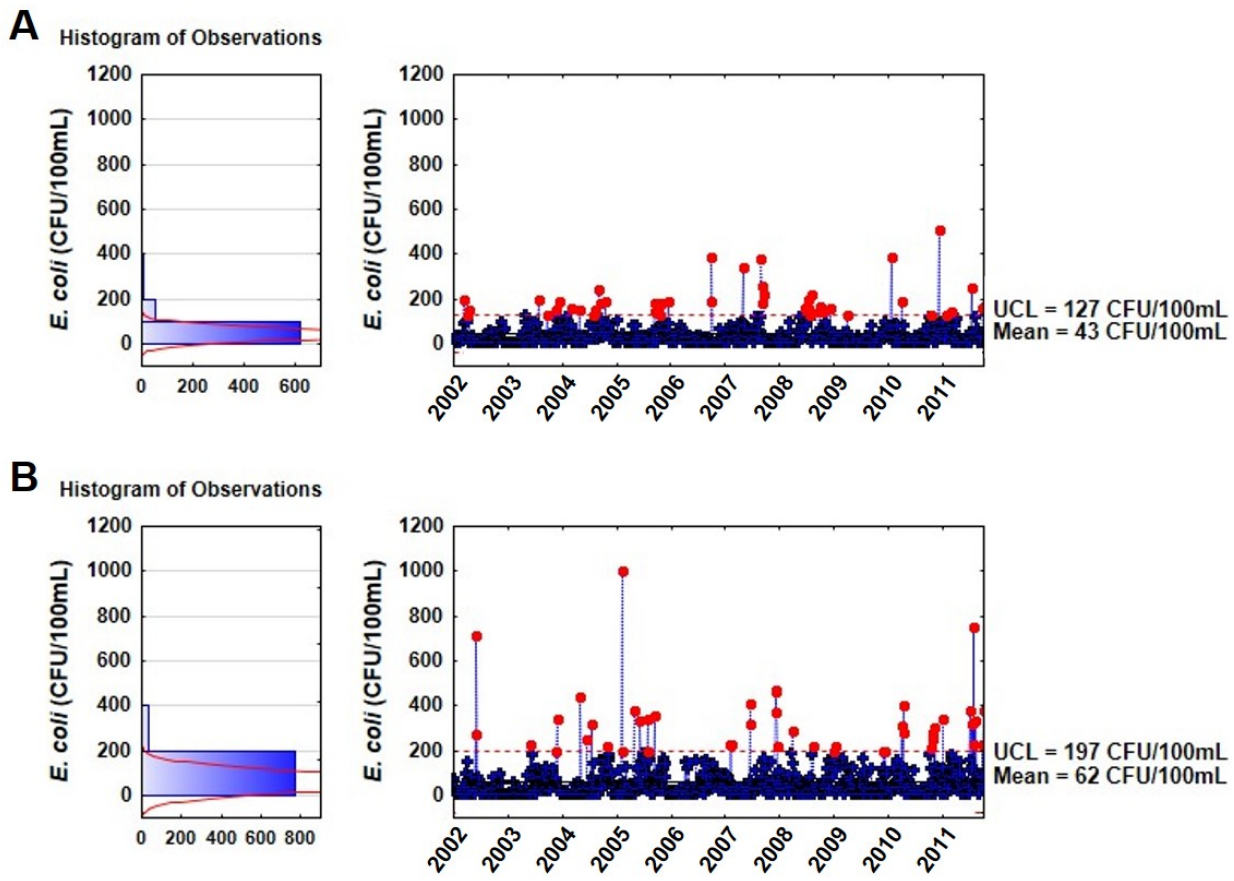

Figure 5.2: Quality control chart of long-term *E. coli* monitoring at DWI-1 (A) and DWI-2 (B) from 2002 to 2011. Observations in blue were identified by the SPC analysis as common data and points in red are above the UCL

Table 5.2: Number of events when *E. coli* concentrations measured at DWIs (2002-2011) exceeded the UCL (127 *E. coli*/100mL at DWI-1 and 197 *E. coli*/100mL at DWI-2) during snowmelt (SM) period and rainy period (precipitation >10mm/24 hours)

DWI	# events > UCL	**Snowmelt** All flow rate (Flow rate>75th percentile)*	**Precipitations** All flow rate (Flow rate<25th percentile)*	Other conditions (dry conditions, not in the SM period)
DWI-1	49	21 (12)	20 (3)	8
DWI-2	45	14 (5)	20 (14)	11

* Percentiles were determined using 2002-2011 river flowrate data (Hydrology Expertise Center 2015): 25th percentile: 835 m^3/s - 75th percentile: 1450 m^3/s

The *E. coli* concentrations were classified with regards to meteorological conditions, i.e. dry weather versus wet weather. At both DWIs, *E. coli* concentrations were not significantly different between dry and wet weather conditions (Figure 5.3A) and varied over 2 orders of magnitude between minimum and maximum values. This approach is biased by the fact that high *E. coli* concentrations due to CSOs caused solely by snowmelt and not by precipitations were classified in the dry weather conditions. When we distinguish the data measured during the period when snowmelt could occur from the dry and wet weather data (Figure 5.3B), significantly lower values were observed in dry weather as compared to wet weather and during snowmelt. These observations are compatible with an impact of CSOs on the microbiological quality at DWIs.

The SPC was also used as a statistical tool to assess the variability of *E. coli* concentrations. The upper control limit (UCL) estimated by the SPC analysis was 127 *E. coli*/100mL at DWI-1 and 197 *E. coli*/100mL at DWI-2 (Figure 5.2). A total of 49 and 45 measurements of *E. coli* concentrations at DWI-1 and DWI-2, respectively, exceeded the UCL (Figure 5.2). Approximately 80% of the cases occurred during the snowmelt period and wet weather conditions when precipitation exceeded 10 mm (Table 5-1) demonstrating the likely discharge of CSOs. No specific explanation could be found for approximately 20% of cases for both DWIs but technical issues such as repairs or maintenance of the sewer system could be responsible for sewage releases. Overall, approximately 42% of *E. coli* peak events at both DWIs occurred in the presence of

precipitation and among these cases, 15% and 70% occurred in low-flow period (Q<25th percentile) for DWI-1 and DWI-2 respectively. We also observe that 47% and 31% of *E. coli* peak events occurred during the snowmelt period at DWI-1 and DWI-2, respectively, and, among these, 57% and 36% were in high-flow period (Q>75th percentile). .

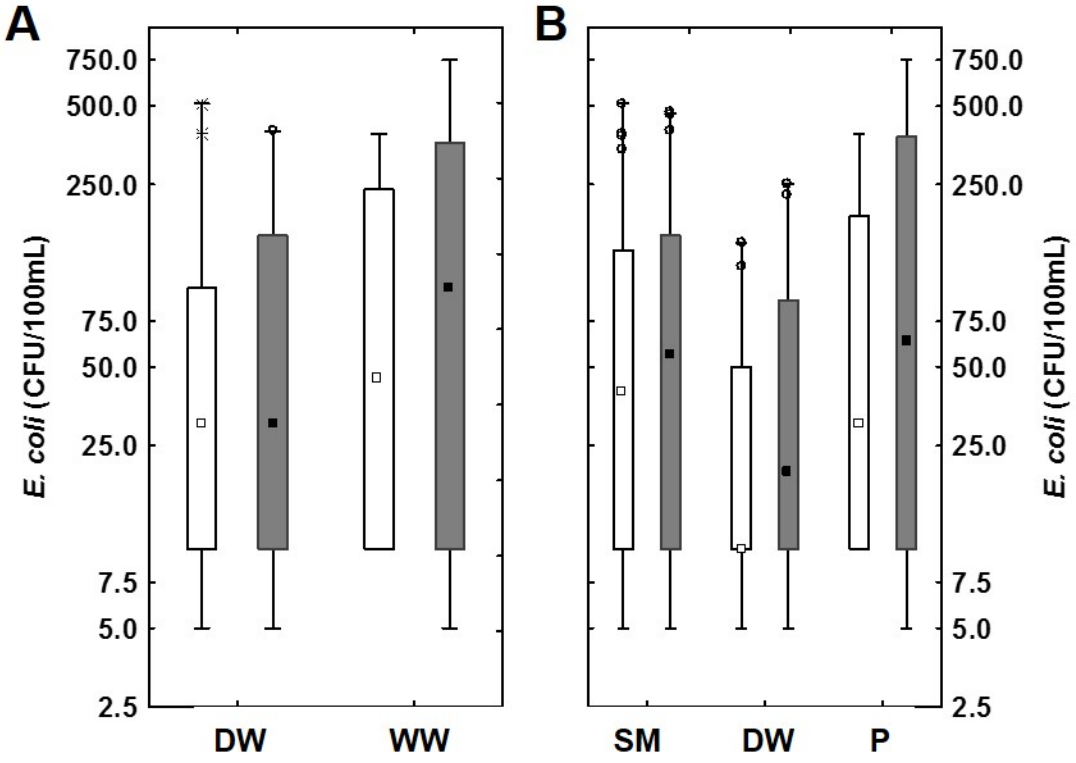

Figure 5.3 : Box-plot of *E. coli* concentrations (in log scale) measured at DWI-1 (in white) and at DWI-2 (in grey): A. in dry weather (DW) and in wet weather (WW) conditions; B. in the snowmelt period (SM) (data from November 15th to April 15th), in dry weather (DW) conditions and during precipitations (P). Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5

5.3.2 Short-term monitoring

Short-term monitoring (over a six-hour period in dry weather conditions) was performed once at each of the 9 sampling stations in the river. No trend of *E. coli* and CAF concentrations variations

was observed during the 6 hours. Mean CVs were 38% (ranging from 12 to 63%) for *E. coli* (Table 5.3). The accuracy of the MPN microplate method was previously investigated by Lebaron et al. (2005) and Prats et al. (2008) for a wide range of *E. coli* concentrations (15-5,000 MPN/100mL). CVs ranged from 8 to 68% and increased for *E. coli* concentrations below 300 MPN/100mL (Lebaron et al., 2005; Prats et al., 2008). Therefore, CVs for *E. coli* were within the range of expected uncertainties of the analytical methods of the MPN enumeration. Mean CVs were 33% (11-45%) for CAF. The uncertainty relative to WWMP analyses is expected to be approximately 50% (Boleda et al., 2013), as concentrations are close to the detection limit. Thus, the variability of concentrations could be explained by the uncertainties of the analytical methods.

.

Table 5.3: Median, mean and CV values of *E. coli* and CAF concentrations for short-term monitoring at sampling points – Dry weather conditions

Sampling points	***E. coli***				**CAF**			
	n	Median (MPN/100mL)	Mean (MPN/100mL)	CV (%)	n	Median (ng/L)	Mean (ng/L)	CV (%)
B1-C	18	2	2	45.0	18	7.2	6.3	43.7
B2-C	18	5	5	54.4	18	3.4	4.2	45.0
B2-L	18	423	422	63.1	18	6.9	6.1	33.4
B2-R	18	19	18	32.6	18	8.6	8.7	35.1
B3-C	18	136	145	36.4	18	9.0	9.4	37.3
B3-L	18	330	341	34.4	18	14.1	15.0	36.4
B3-R	18	69	68	11.7	18	10.1	10.7	28.9
DWI-1	18	110	111	38.7	18	8.8	8.2	24.0
DWI-2	18	154	156	21.5	18	10.9	10.9	11.2

5.3.3 Bi-monthly monitoring

5.3.3.1 Dry weather conditions

The *E. coli* concentrations entering the studied river segment at station B1-C were highly variable (approximately 1.5 order of magnitude between maximum and minimum values) in dry weather conditions (Figure 5.4). *E. coli* concentrations measured along the river center were low with a

median value of 26 MPN/100mL in dry weather conditions. No significant gradient of *E. coli* concentrations was observed at the center from upstream to downstream (Figure 5.4A).

With regards to transversal sampling at bridge B2, *E. coli* median concentrations were higher at the left bank (B2-L) (0.6 log) and the right bank (0.8 log) than in the center (B2-C). *E. coli* concentrations increased significantly at the shores of bridge B2 but were similar to those measured in the center at bridge B3. At DWIs, *E. coli* concentrations were low with a median value of approximately 25 MPN/100mL, confirming the good water quality observed during the long term monitoring. Water quality monitoring at the river center is consistent with DWIs located between the shoreline and the center of the river.

No significant difference of CAF median concentrations was observed between the river center and both river banks. CAF median concentrations ranged from 15.6 ngCAF/L to 22.8 ngCAF/L (Figure A3-3) and fell within the range of previous measurements performed for surface water in the same area (Viglino et al., 2008).

5.3.3.2 Wet weather conditions

E. coli concentrations were more variable in wet weather (2.7 orders of magnitude) than in dry weather (1.5 orders of magnitude). These variations can be explained by: (1) the high variability of CSOs with regards to their occurrence, duration and concentrations released; (2) the higher *E. coli* concentrations discharged by WWTP as the treatment is less effective during rainfall (Lucas et al., 2014); (3) possible upstream wastewater contamination coming from cross-connected sewers (Sauvé et al., 2012) and (4) resuspension of contaminated river sediments. At B1-C, *E. coli* median concentrations were marginally higher in wet weather (46 MPN/100mL) than in dry weather (15 MPN/100mL) (non-significant difference) (Figure 5.4A). At the other stations in the river center, namely B2-C and B3-C, significantly higher *E. coli* concentrations were measured in wet weather than in dry weather conditions (Figure 5.4A). *E. coli* median concentrations at the river center increased from 46 (B1-C) to 170 MPN/100mL (B3-C) in wet weather conditions demonstrating the cumulative impacts of CSO discharges at the river center. A significant increase of *E. coli* concentrations between dry and wet weather conditions was observed at both DWIs (Figure 5.4A). *E. coli* concentrations measured at river banks, namely B2-L and B2-R as well as B3-L and B3-R, were significantly higher than concentrations observed at the river center B2-C

and B3-C (Figure 5.4B). CSO discharges are located along the river close to the banks; thus, their impacts were more important and quantifiable at the river bank monitoring stations.

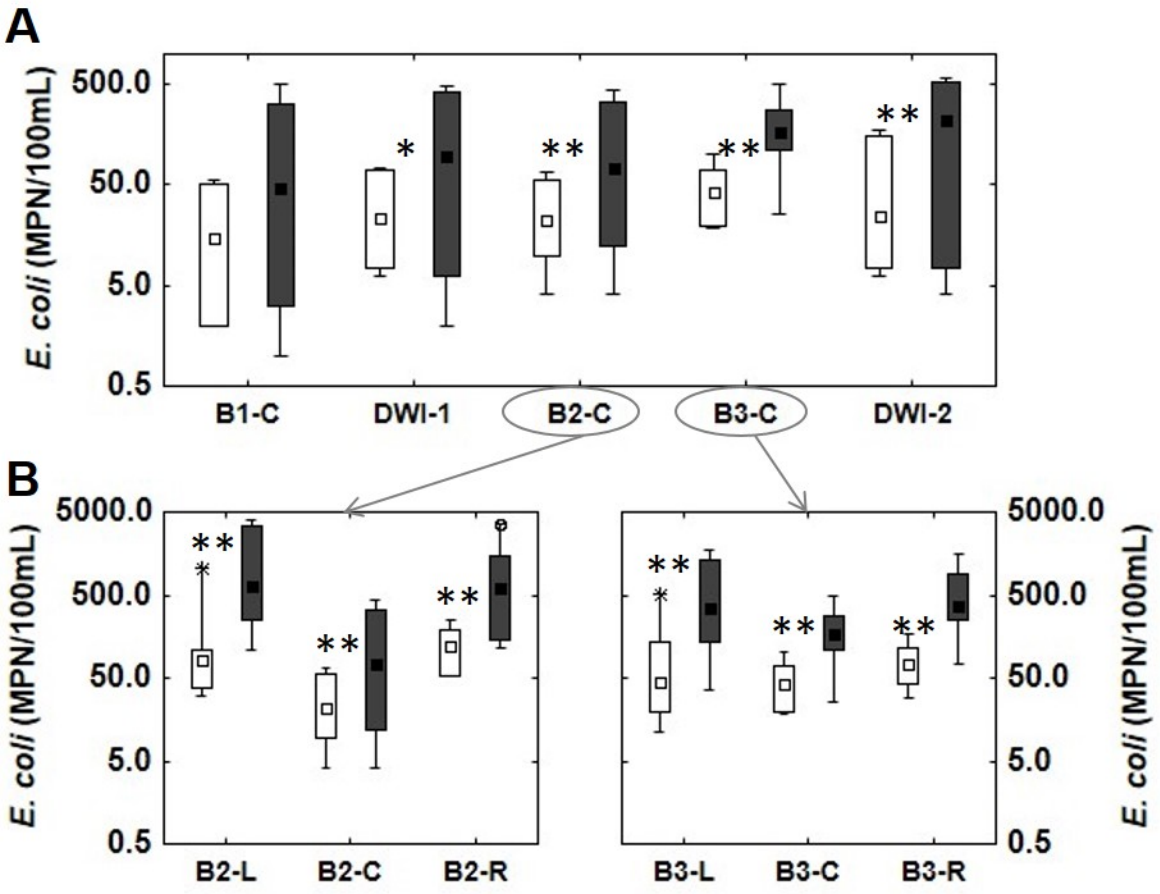

Figure 5.4: Box-plots of *E. coli* concentrations (in log scale) during dry weather (white) and wet weather (dark grey). A. Longitudinal profiles in the river center at B1-C, DWI-1, B2-C, B3-C and DWI-2. B. Transversal profiles at bridges B2 (B2-L, B2-C, B2-R) and B3 (B3-L, B3-C, B3-R). Asterisks * denote significant difference ($p<0.05$) and ** highly significant difference ($p<0.01$) between dry and wet weather conditions (Non parametric statistical analysis performed on non log-transformed data). Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5

No significant variations of CAF concentrations were observed between dry and wet weather conditions at the river center as well as at river shores (Figure A3-3). The dilution potential of the studied river is so high than differences in CAF concentrations discharged by CSOs could not be detected with actual detection limits (Madoux-Humery et al., 2013). However, significant correlations were established between *E. coli* and CAF ($\rho=0.35$, $p<0.05$, $n=99$) in wet weather conditions confirming the presence of a human source of contamination.

5.3.4 CSO event based monitoring

CSO discharges were monitored during the snowmelt period and in summer at the sewage overflow outfall OA. The results of event-based monitoring of *E. coli* of 5 CSO events are presented inTable 5.4. The impact of these CSOs on the river water quality was measured 3 hours after the beginning of the CSO events by monitoring *E. coli* concentrations at bridges B2 and B3 (Figure 5.5). *E. coli* concentrations at bridges B2 and B3 during bi-monthly in wet weather are also reported on Figure 5.5.

The differences of *E. coli* concentrations observed between the two bridges can be explained by differences in mixing conditions, the number of discharge points and their location. Given the strong mixing of the rapids upstream from B2, there is a stronger mixing upstream from B2 than from B3; B3 is also more impacted by CSO outfalls located on both banks of the river than B2. At bridge B2, *E. coli* concentrations measured for most CSO events were significantly higher at B2-L and marginally higher at B2-R than concentrations measured during the bi-monthly monitoring. *E. coli* concentrations were in the same range at the bridge center (B2-C). At bridge B3, CSO events #2, #4 and #5 fall out the range of up to 2 orders of magnitude at the bridge center and banks (B3-C, B3-L and B3-R).

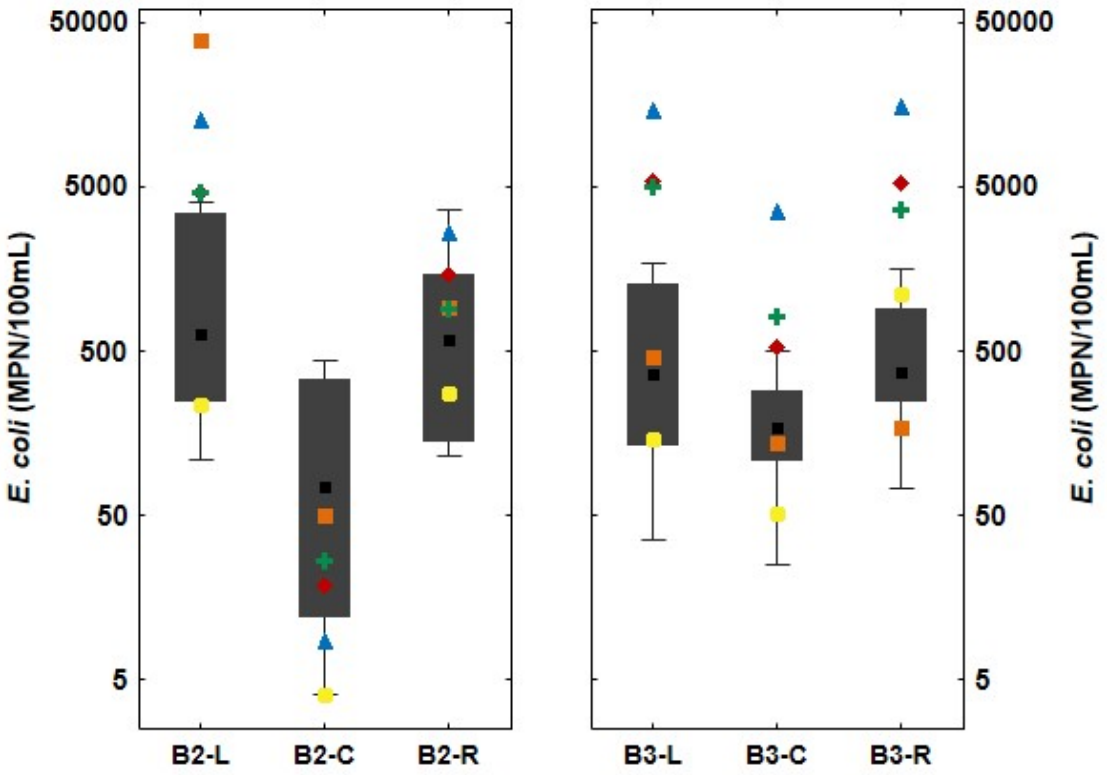

Figure 5.5: Box-plots of *E. coli* concentrations (in log scale) at bridges B2 (B2-L, B2-C, B2-R) (left panel) and B3 (B3-L, B3-C, B3-R) (right panel) during wet weather (dark grey boxes). *E. coli* concentrations measured during specific CSO event-based monitoring: CSO#1 (orange square), CSO#2 (blue triangle), CSO#3 (yellow circle), CSO#4 (red diamond) and CSO#5 (green cross). Box-plots show 10th and 90th percentile (box), median values (square in the box) and whiskers correspond to the minimum and maximum values. Outliers and extremes are represented by circles and asterisks, respectively, and were both determined using an outlier coefficient of 1.5

5.4 Discussion

5.4.1 Comparison of sampling strategies

Numerous studies have shown the impact of CSOs on the microbiological quality of receiving rivers (Gibson III et al., 1998; Kim et al., 2005; Marsalek et al., 1996; Passerat et al., 2011; Rechenburg et al., 2006). However, few studies have simultaneously monitored CSO discharges and their associated plumes in a river, mainly because of logistic and technical difficulties. This study presented results of river monitoring during several CSO discharges of outfall OA. Other discharges to the river also occurred simultaneously and the sampling program implemented allowed for an analysis of cumulative impacts of CSO discharges to the river. Outfall OA is a major outfall in this area with regards to its discharge frequency as 38 CSO events per year occurred on average and thus it was a useful model CSO for initiating river sampling

Table 5.5 enables the comparison, for each event monitored, the flux of *E. coli* transported by the river at station DWI-1 (within a 3-hour period) with the 3-hour duration flux of *E. coli* released by a single CSO at outfall OA located immediately downstream. Data from Table 5.5 shows that for CSO events #1, #2 and #4, a single CSO released between 6.4 and 35.4 times more *E. coli* than those transported by the river highlighting the major impact of one single CSO discharge into the river. In contrast, during CSO#3 event, both fluxes were of the same order of magnitude (Table 5.5) highlighting that *E. coli* concentrations measured at bridges 3 hours after the beginning of this event were in the range or even lower than during the bi-monthly wet weather monitoring.

As the main objective of monitoring fecal indicators at the water intakes is to evaluate periods of recurring and peak vulnerability to fecal contamination, it is paramount to understand whether long term bi-weekly or weekly sampling is capable of detecting prolonged periods of peak contamination. Our results show that (1) routine sampling, i.e. every week for 10 years (2) bi-monthly *E. coli* wet or dry weather monitoring clearly underestimate peak *E. coli* concentrations arriving at DWI during and/or after CSO events, as evidenced by the large increases observed during event based sampling. In addition, as the number of samples increases from long-term sampling, the standard deviation and 95th percentile decrease (McBride, 2005). Therefore, although the probability of capturing a peak concentration increases with the number of samples,

Table 5.4: Duration, discharged volume, flowrate and *E. coli* event mean concentration (EMC) characterizing sampled CSO events at outfall OA

CSO event	**Duration of overflows (min)**	**Overflows discharged volume (m 3)**	**Flow rate (L/s) average (max)**	***E. coli* EMC (MPN/100mL)**
CSO#1	403	3138	130 (560)	3.5×10^{6}
CSO#2	694	19530	470 (3490)	1.9×10^{6}
CSO#3	89	92	17 (50)	4.1×10^{6}
CSO#4	146	5813	660 (2040)	7.7×10^{5}
CSO#5	194	7867	630 (2720)	ND

ND: Not determined

Table 5.5: Flux of *E. coli* (MPN/3h) transported by the river at DWI-1 in wet weather and released at OA for different studied CSO events

CSO event	**A: Flux of *E. coli* transported by the river at DWI-1 (MPN/3h) [a]**	**B: Flux of *E. coli* released by a single CSO (OA) (MPN/3h) [b]**	**Ratio between fluxes B and A**
CSO #1	1.4×10^{13}	9.1×10^{13}	6.4
CSO#2	6.1×10^{12}	2.1×10^{14}	35.4
CSO#3	5.7×10^{12}	3.8×10^{12}	0.7
CSO#4	6.4×10^{12}	4.5×10^{13}	7
CSO#5	6.8×10^{12}	ND	ND

a: Flux A was calculated by multiplying daily average flow rate of the river by the median of *E. coli* concentration at DWI-1 in wet weather for a 3-hour duration

b: Flux B was determined by multiplying *E.coli* concentration by the volume of CSO released for a 3-hour duration. Details on loads calculation methodology are available in Madoux-Humery et al. (2015)

ND: Not determined

reliance on the traditional statistics (i.e., mean, median, 95th percentiles) of a long-term data set could result in spurious conclusions regarding the vulnerability of a drinking water intake. The SPC analysis of long-term data provides a more robust estimate of the variability of *E. coli* for drinking water production. Short-term bimonthly compliance monitoring should not be used to quantify the risk at DWIs during wet weather as this type of random sampling will not likely capture peak concentrations. On the other hand, grab sampling even if done frequently over the course of CSO discharges as performed during this study does not provide a satisfactory estimation of the full duration of peak events that may challenge the treatment barriers and potentially lead to breakthrough unless the high frequency sampling continues over many hours (e.g. > 20 hours as demonstrated by Passerat et al. (2011). Dry weather short-term monitoring (over the course of 6 hours) showed that the concentrations showed variability within the uncertainties of analytical methods; however, similar wet-weather short-term monitoring would likely have produced different results, but was not characterized given the large number of sampling locations and focus on the OA CSO discharge.

Short-time high frequency compliance monitoring, such as every hour during CSO discharges, is challenging to implement at DWIs. From a practical perspective, *E. coli* concentrations would only be known 24 hours after sample processing, thus not particularly useful for adapting drinking water treatment operations in response to rapidly changing raw water conditions. Therefore, on line monitoring certainly appears to be a desirable approach to establish the importance and duration of *E. coli* peak concentrations entering DWIs. The use of online monitoring of *E. coli* concentrations has been recently proposed by Ryzinska-Paier et al. (2014) for karstic waters; the device is based on the measurement of a specific enzymatic activity of *E. coli*, the glucuronidase activity. Even if technical problems must still to be solved for the online use of the automated device for river waters, it is promising technology that in the near future will surely provide an opportunity to monitor wet-weather events, identify periods of sustained elevated microbiological contamination and determine reference conditions for drinking water treatment process selection and design.

5.4.2 Vulnerability of DWIs

As the revised regulation of the LT2ESWTR (United States Environmental Protection Agency (USEPA) 2010) on the design of the treatment processes is based on average *E. coli* concentrations without taking into account peak concentrations, there is no guarantee that, during high

concentrations of microbial contaminants periods, the treatment line will be efficient enough to adequately remove the pathogens. Furthermore, CSOs resulting from snowmelt are known to discharge high *E. coli* concentrations, contradicting the common belief that CSO concentrations are likely to be highly diluted during this period (Madoux-Humery et al. 2013). Typical CSO discharges during the snowmelt period are also long duration events and may impact DWIs even when the potential for dilution of the river is high. As drinking water treatment is less effective in cold water temperature with regards to pathogen removal (Payment et al., 2000), the snowmelt period (April-May in this case) could be highlighted as a critical period for drinking water quality.

The different *E. coli* patterns observed at the two bridges monitored clearly show that the location of the intake is critical in determining its vulnerability, as fecal contamination in this case is clearly higher nearer the shores. With regards to drinking water source protection plans implemented in the province of Ontario, Canada, the vulnerability of DWIs is based on: (1) the depth of the intake; (2) the distance from the shore and (3) the number of recorded drinking water issues related to the intake (Government of Ontario, 2009b). According to their detailed methodology, a deep (>3m) intake located in the main stream of a river or in the center of a lake (>200m from the shore) is considered less vulnerable in both dry and wet weather conditions (Government of Ontario, 2009a). Indeed, if episodes of fecal contamination are not highlighted by long-term source water monitoring, DWIs located on large lakes or rivers with a high potential of dilution will not be classified as vulnerable.

5.5 Conclusions

- Long-term and dry weather monitoring generally demonstrated a good microbiological river water quality. However, *E. coli* concentrations at DWIs are significantly higher during the winter and their annual variability require event based monitoring to identify peaks of contamination. SPC analysis allowed to identify *E. coli* peaks of concentrations in almost a decade of routine monitoring data at DWIs. Almost 80% of these concentrations were linked to CSO discharges caused by precipitation that exceeded 10 mm or snowmelt.
- Bi-monthly monitoring program over a period of one year identified significant increases of *E. coli* concentrations between dry and wet weather conditions highlighting the impact of CSOs.

- CAF concentrations were correlated with *E. coli*, demonstrating a human origin of observed fecal contamination.
- Wet-weather monitoring showed that *E. coli* concentrations during or following CSO discharges increase significantly (1) at DWIs, suggesting that specific CSO event based monitoring has to be performed to allow the detection of *E. coli* peak concentrations (2) close to river banks, confirming the location of outfalls close to shores (3) at river center, demonstrating the cumulative impacts of CSOs along the river.
- Current *E. coli* weekly compliance monitoring at DWIs underestimate *E. coli* peak concentrations and should not be used to quantify the risk at DWIs during wet weather. High frequency event-based monitoring certainly appears a desirable approach to establish the importance and duration of *E. coli* peaks concentrations entering DWIs

CHAPITRE 6 DISCUSSION

L'objectif général de cette thèse était de caractériser les concentrations et les charges associées aux débordements d'égouts unitaires (DEU) afin d'évaluer le risque sanitaire sur les prises d'eau potable situées en aval de ces rejets. La première étape a été de développer un protocole d'échantillonnage des DEU permettant d'étudier la variabilité temporelle des concentrations et des charges de multiples évènements au cours d'une année, incluant la période de fonte des neiges afin de répondre à trois des questions du projet : (1) existe-t-il des variations caractéristiques des concentrations et des charges au cours d'un évènement de surverse ou entre les saisons ?; (2) quelle est la période de rejets des DEU la plus critique pour les prises d'eau potable situées en aval ?; et (3) les produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) peuvent-ils être utilisés comme traceur d'eaux usées dans les DEU ? Par la suite, le développement d'un modèle nous a permis d'identifier les sources (eaux usées, eaux de ruissellement, dépôts) des contaminants rejetés et d'évaluer l'évolution de leur répartition lors des DEU; le but étant d'estimer si les technologies actuelles de contrôle et de traitement des DEU pourraient diminuer les concentrations et charges rejetées pour protéger les prises d'eau potable. La dernière étape de ce projet a été d'évaluer l'impact des DEU sur la qualité microbiologique de l'eau du milieu récepteur, et plus particulièrement au niveau des prises d'eau potable.

Cette discussion est présentée selon deux sous-thèmes. La caractérisation de la variabilité des contaminants entre les évènements est, tout d'abord, discutée en termes de concentrations (Article 1) et de charges (Article 2). De plus, les analyses statistiques (Articles 1 et 2) et le modèle de répartition (Article 2) permettent d'identifier les sources des contaminants. La validité de l'utilisation des PPSP comme traceur d'eaux usées dans les DEU est également débattue. Le second sous-thème décrit, par la suite, la variabilité saisonnière (Articles 1 et 2) ainsi que les impacts des DEU sur la qualité microbiologique de l'eau du milieu récepteur afin d'établir des mesures de gestion des DEU. Les différentes étapes du projet présentées en fonction des objectifs spécifiques et de la discussion sont résumées à la Figure 6.1. Les conclusions du projet de recherche ainsi que les recommandations concernant les mesures à prendre pour diminuer le risque sanitaire au niveau des prises d'eau potable sont présentées au dernier chapitre.

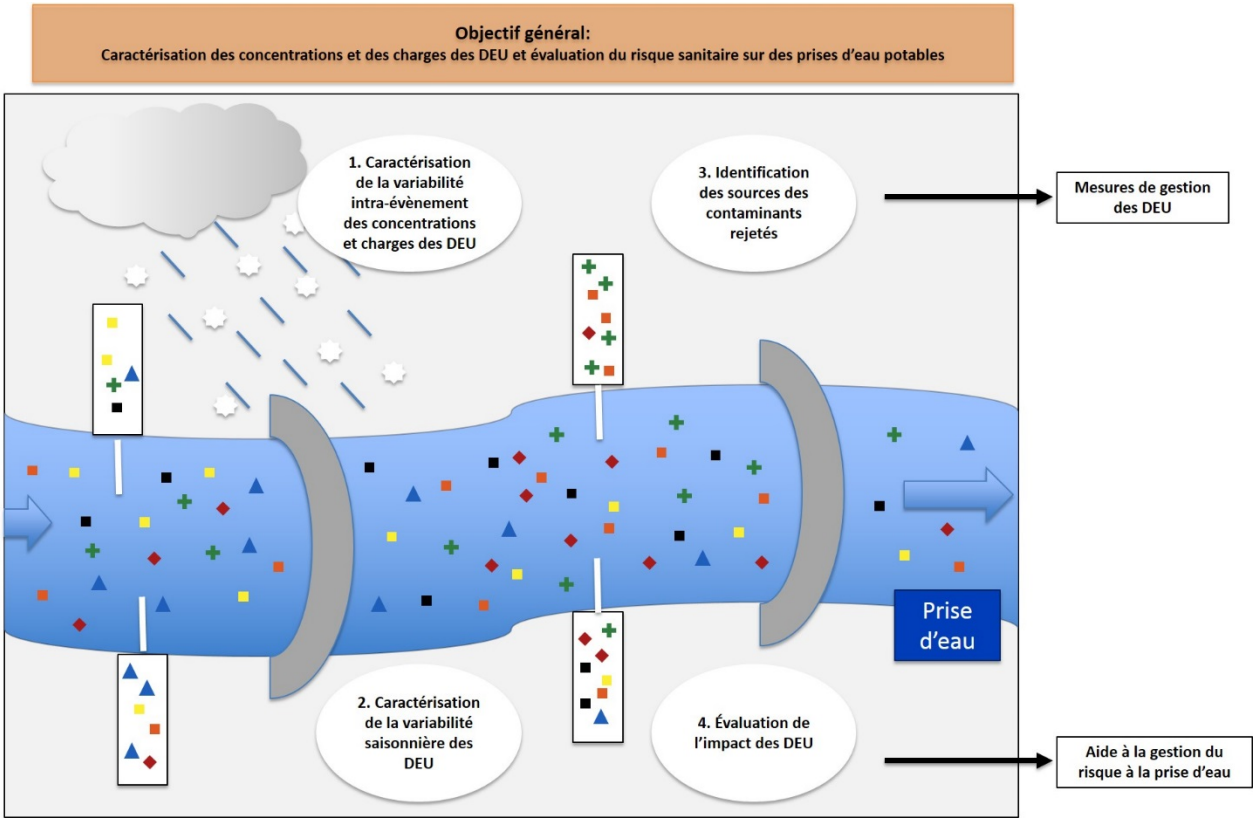

Figure 6.1: Schéma résumant le projet de recherche

6.1 Caractérisation de la variabilité intra-évènement des DEU et identification des sources des contaminants

Tel qu'indiqué dans la revue de la littérature, les concentrations mesurées dans les DEU varient beaucoup d'une conduite de débordement à une autre (Figure 3.1). Les concentrations en *E. coli*, MES et en PPSP par temps sec sont différentes entre les deux bassins de drainage (Figure 3.1). Ces disparités sont probablement dues à des usages du territoire différents (un quartier résidentiel/commercial vs une école), à la population et à la taille du bassin de drainage tel qu'observé par Teerlink et al. (2012) pour des composés organiques. Pour les deux bassins de drainage étudiés, une grande variabilité des concentrations et des charges a été observée pour chaque évènement et pour chaque paramètre suivi (Figure 3.1, Figure 3.3, Figure 4.2 et Figure A2-4). La proportion d'eaux de ruissellement dans les DEU avait été estimée par Passerat et al. (2011) à partir des valeurs de conductivité. Malheureusement, les conditions hivernales et l'utilisation de sels de déglaçage tel que le chlorure de sodium sur les routes ne permettent pas d'utiliser la

conductivité pendant la période de fonte des neiges. Dans cette étude, le facteur de dilution a été estimé, pour la première fois, en utilisant la carbamazépine comme un traceur d'eaux usées pour chacun des évènements suivis. Un sous-ensemble des données des concentrations des DEU de l'été et de l'automne a révélé une forte corrélation entre la conductivité et la CBZ (ρ=0,51, $p \leq 0,05$, n= 38) renforçant ainsi l'utilisation de ce composé comme traceur.

6.1.1 E. coli

Les CME mesurées dans les DEU varient entre $5,8.10^4$ *E. coli*/100mL et $3,5.10^7$ *E. coli*/100mL. Les concentrations en *E. coli* fluctuent d'environ 1 ordre de grandeur au cours des évènements (Figure 3.3) et sont corrélées avec la proportion d'eaux de ruissellement (-0,48, $p \leq 0,05$, n=125). Les dynamiques des concentrations en *E. coli* sont directement liées à celle du facteur de dilution, principalement pour les DEU qui se sont déroulés l'été et l'automne (évènements A1 et A9 de la Figure 3.3). Toutefois, les concentrations mesurées à la fin des évènements demeurent élevées avec une valeur moyenne de $6,1 \pm 4,6.10^5$ *E. coli*/100mL et ce, malgré un facteur de dilution très élevé (Figure 3.3). Les eaux de ruissellement sont moins contaminées que les eaux usées par 1,6 ordre de grandeur, et sont responsables d'une diminution des concentrations en *E. coli* dans les DEU, mais d'une diminution modérée uniquement. Les concentrations en *E. coli* sont censées être plus élevées au début du ruissellement en raison du lessivage des rues. La dilution par les eaux de ruissellement est donc supposée être plus importante en milieu et fin d'évènement. L'évolution des concentrations en *E. coli* dans les DEU en fonction des heures d'échantillonnage (Figure 3.4) met en évidence le fait que les variations des concentrations en *E. coli* durant les DEU suivent les variations journalières du contaminant à l'affluent de la StaRRE (Figure 3.2). Tout comme les MES (Metcalf and Eddy Inc., 2003), les concentrations en *E. coli* suivent un profil typique durant la journée : les concentrations augmentent graduellement (à partir de 7:00 dans notre étude) et atteignent un maximum en après-midi (vers 13:00), puis diminuent graduellement. Une variation d'environ un ordre de grandeur est observée sur la journée. *E. coli* est uniquement associé à la matière fécale dont l'excrétion a majoritairement lieu le matin entre 7:00 et 8:00 (Heaton et al., 1992). En tenant compte du temps de résidence dans le réseau d'égouts, la concentration de pointe en *E. coli* est observée à la StaRRE en début d'après-midi. La moyenne des EMC des DEU qui ont eu lieu durant la journée est de $2,2.10^6$ *E. coli*/100mL tandis que celle de DEU qui se sont déroulés la nuit est de $9,8.10^5$ *E. coli*/100mL. Les DEU se déroulant durant la journée auront généralement

des concentrations plus élevées d'un demi ordre de grandeur que les DEU ayant lieu la nuit et surtout, seront caractérisés par des concentrations plus élevées en fin d'évènement.

Les concentrations observées durant les évènements sont également très variables avec des CME variant entre $5{,}9.10^5$ *E. coli*/100mL (évènement A3) et $4{,}1.10^7$ *E. coli*/100mL (évènement A8) (Figure 3.4 et Figure 4.4). L'identification des sources des contaminants peut se faire à l'aide du modèle 'concentration vs débit' pour lequel une pente unitaire négative signifie la dilution des contaminants présents dans les eaux usées par les eaux de ruissellement; avec l'hypothèse que le contaminant n'est pas présent dans ces dernières. Les valeurs CME des contaminants estimées pendant les DEU en fonction du débit moyen de l'évènement suivent une pente supérieure à -1 (Figure 4.4). Ceci revient à dire que lorsque le débit augmente, les concentrations diminuent à un rythme moins élevé, suggérant la contribution d'une source externe (Phillips et al., 2012). La pente des CME en *E. coli* en fonction des débits est de -0,32 et est donc indicatrice de source significative, externe ou interne. Des facteurs de dilution négatifs ont été observés au début des DEU suggérant une remise en suspension des dépôts (Figure 3.3). En général, les charges en *E. coli* proviennent majoritairement de l'eau usée au cours des évènements, avec une valeur médiane de 63% (Figure 4.5). Toutefois, pour 3 des évènements, elles proviennent principalement de la combinaison des dépôts et des eaux de ruissellement. Tel qu'indiqué précédemment, les concentrations en *E. coli* présentes dans les eaux de ruissellement sont d'environ 2 ordres de grandeur inférieures à celles des eaux usées. Leur contribution aux charges en *E. coli* peut donc être considérée comme étant négligeable (Passerat et al., 2011). De plus, une contribution des dépôts d'environ 45% sur les charges totales en *E. coli* a précédemment été reportée pour un évènement pluvieux intense (Passerat et al., 2011). Le devenir d'*E. coli* dépend de son accumulation et de sa persistance sur les dépôts, reconnus comme ayant une couche hautement organique favorable à la survie des bactéries fécales (Ellis & Yu, 1995; McCarthy et al., 2012; Passerat et al., 2011).

6.1.2 Matières en suspension (MES)

Les concentrations en MES suivent toujours la même tendance durant les évènements de surverse (Figure 3.3). En effet, des concentrations significativement plus élevées ont été mesurées au début des évènements simultanément à l'augmentation du débit, lorsque le facteur de dilution était négatif ou bas. Les concentrations de pointe mesurées dans les DEU sont plus élevées d'un facteur variant de 2,3 et 3,0 que les concentrations en MES mesurées dans les eaux usées sanitaires par temps sec.

Ces concentrations de pointe étaient reliées à des facteurs de dilution faibles ou négatifs et suggèrent donc qu'une partie des MES est associée à la remise en suspension des dépôts. Cette constatation est renforcée par le fait que : (1) la pente des CME des MES était de -0,13 (Figure 4.4), indiquant la contribution de sources interne et/ou externe et (2) 75% des charges en MES proviennent de l'eau usée et 25% de la combinaison des dépôts et des eaux de ruissellement (Figure 4.5). Cette combinaison a été identifiée comme la source principale des charges en MES durant le rejet des premiers 50 % ou 75% du volume total (Article 2) de 3 des évènements suivis. Ces évènements étaient caractérisés par des valeurs de débits maximales plus élevées de 2,4 à 30,8 fois que les autres évènements, suggérant une remise en suspension des dépôts plus importante. Les charges en MES ont précédemment été identifiées comme provenant majoritairement de la remise en suspension des dépôts et dans une moindre mesure des eaux de ruissellement (Chebbo et al., 2001; Passerat et al., 2011). Les concentrations en MES lors de la remise en suspension des dépôts ont été caractérisées par Gasperi et al. (2010) et varient significativement d'un évènement de pluie à un autre. De plus, la contribution des MES provenant de la remise en suspension des dépôts dépasse 60% lors des évènements de pluie de forte intensité. On peut donc conclure que les MES proviennent majoritairement des eaux usées et de la remise en suspension des dépôts, la proportion de cette dernière sera d'autant plus grande que les débits permettront la remise en suspension.

Environ 40% de la charge totale en MES est rejetée avec les premiers 25% du volume total de surverse (Figure A2-3), ce qui correspond à la phase d'augmentation du débit et donc de la remise en suspension des dépôts. Aucun 'first flush' n'a été observé dans cette étude, en se basant sur la définition 30/80 de Bertrand-Krajewski et al. (1998) (Chapitre 1.2.7.2). En fait, 87% de la charge totale en MES a été rejetée avec les premiers 75% du volume total (Figure A2-3). De plus, les charges rejetées avec les derniers 25% du volume étaient de l'ordre de 15,5 mg/min.

6.1.3 Produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP)

Les PPSP ont démontré des tendances de variations très importantes, que ce soit durant les DEU ou entre les DEU, et ces évolutions sont différentes selon les composés (Figure 3.3 et Figure 3.4). Les PPSP étaient corrélés au facteur de dilution (-0,41 pour CAF, -0,31 pour ACE et -0,52 pour THEO, $p \leq 0.05$, n=125), suggérant que les concentrations en PPSP étaient principalement le résultat de la dilution des eaux usées par les eaux de ruissellement. Toutefois, les variations des concentrations en PPSP ne peuvent pas uniquement s'expliquer par la dilution. Une augmentation

des concentrations en CAF a par exemple été observée à la fin de certains évènements lorsque la proportion d'eaux de ruissellement était très élevée; cette augmentation n'a pas été observée pour la CBZ ni l'ACE. Le suivi horaire des concentrations en PPSP à l'affluent de la StaRRE nous a démontré que les concentrations en PPSP dans les eaux usées varient au long d'une journée (Figure 3.2). Ces variations reflètent (1) des modes de consommation différents en fonction des composés, (2) des modes d'absorption par l'organisme ainsi que des modes d'excrétion différents en fonction des composés; soit majoritairement par les selles (CBZ), soit principalement par l'urine (CAF et ACE); et (3) la taille du bassin de drainage, qui influence le mélange et la dispersion des composés. Des variations significatives des concentrations en PPSP ont précédemment été rapportées dans les affluents de la StaRRE au cours d'une journée (Vieno et al., 2005; Zhou et al., 2009) ainsi qu'entre différentes journées à l'effluent (Nelson et al., 2010). Ces résultats reflétaient (1) la consommation intermittente des différents médicaments; (2) des temps de demi-vie différents dans l'organisme ainsi que des voies d'excrétion différentes selon les composés et (3) des temps de rétention dans le réseau d'assainissement. Les concentrations en PPSP dépendent donc des dynamiques des concentrations dans les eaux usées et de la proportion d'eau de ruissellement.

Les PPCP ont été corrélés entre eux dans les DEU (CAF/ACE (ρ=0,72, $p \leq 0,05$, n=125), CAF/THEO (ρ=0,67, $p \leq 0,05$, n=125) and CBZ/THEO (0,52, $p \leq 0,05$, n=125). Les concentrations maximales en CBZ coïncident avec les concentrations de pointe en MES et la CBZ a été significativement corrélée avec les MES (ρ=0,73, $p \leq 0,05$, n=124). Des échantillons préalablement filtrés ont été utilisés pour les analyses des PPSP suggérant que la CBZ adsorbée sur les dépôts pourrait être désorbée lors de la remise en suspension des dépôts et ainsi contribuer aux concentrations en CBZ dissoute. L'adsorption de la CBZ a précédemment été observée sur des sols, des biosolides et des sédiments (Chapitre 1.2.4). La CBZ est le seul PPCP parmi les 4 étudiés qui soit majoritairement excrété par les selles (environ 70%), expliquant qu'il soit le seul à être corrélé avec *E. coli* (ρ= 0,29, $p \leq 0,05$, n=120).

6.1.4 Utilisation des PPSP comme traceur d'eaux usées

Les plages dynamiques[10] de concentrations ont été calculées pour les PPSP étudiés et varient de 846 pour CBZ à 3 785 pour ACE. Les PPSP sont donc des traceurs potentiels des eaux usées dans

[10] Traduction personnelle de dynamic ranges

les DEU (Benotti & Brownawell, 2007). Cependant, la variabilité des concentrations en PPSP est très importante car elle reflète les modes de consommation et d'excrétion des composés. Les variations seront plus élevées dans les bassins de drainage de petite taille que dans des collecteurs amenant les eaux usées à la StaRRE. Les concentrations ponctuelles en PPSP mesurées dans le milieu récepteur ne peuvent donc pas directement être utilisées pour estimer la proportion d'eaux usées provenant des DEU. Cependant, les concentrations moyennes issues d'un suivi de longue durée durant différentes conditions météorologiques peuvent être utilisées pour évaluer (1) la contribution des DEU par rapport à celle des StaRRE et (2) la charge rejetée par les DEU dans un milieu récepteur ne recevant pas d'effluent de StaRRE (comme c'est le cas dans cette étude). La CBZ nous apparait comme le composé ayant le plus de potentiel à être utilisé comme traceur d'eaux usées dans les DEU dans les réseaux d'assainissement puisqu'il s'agit du composé (1) le plus stable et le plus persistant parmi les composes étudiés et (2) le mieux corrélé avec *E. coli* et les MES en raison de son mode d'excrétion.

6.1.5 Choix d'un indicateur de suivi des DEU en rivière

Les PPSP suivis durant cette étude (CAF, CBZ, ACE) ont été comparés afin d'évaluer leur potentiel en tant qu'indicateur de contamination fécale rejetée par les DEU et ayant un impact potentiel sur les prises d'eau potable situées en aval des conduites de déversement. Pour ce faire, les concentrations en *E. coli*, CAF, CBZ et ACE, rejetées et diluées dans la rivière, ont été estimées en utilisant des facteurs de dilution potentielle. Les limites de détection de chacune des substances dans les eaux de surface ont été utilisées comme valeurs seuils à la prise d'eau potable afin d'estimer l'impact des DEU arrivant à l'usine de filtration. Ces valeurs seuils sont : (1) 10 *E. coli*/100mL; (2) 6,5 ng CAF/L; (3) 0,5 ng CBZ/L et (4) 10 ng ACE/L. Les concentrations attendues en rivière suite aux DEU ont été estimées avec des facteurs de dilution potentielle fixés entre 1 et 10 000, et ce, en posant l'hypothèse d'un mélange parfait des eaux de débordement dans la rivière. Le ratio entre la durée de DEU pendant laquelle les concentrations en contaminants une fois rejetées dans la rivière sont supérieures à la limite de détection et la durée totale des DEU a été déterminé pour chacun des composés, *E. coli*, CAF, CBZ et ACE. La Figure 3.5 illustre ce ratio exprimé en pourcentage. Un impact du rejet de ces 4 composés pourrait être mesuré aux prises d'eau si le facteur de dilution de la rivière n'est pas plus grand que 100. Dans le cas de la rivière étudiée, c'est-à-dire pour un facteur de dilution supérieur à 1000, seul *E. coli* a le potentiel d'être

fréquemment détecté au niveau des prises d'eau potable. Dans cette étude, et avec les limites de détection des PPSP actuelles, *E. coli* apparait comme le traceur de contamination fécale le plus approprié.

6.2 Caractérisation de la variabilité saisonnière

Nous avons vu précédemment, ainsi que dans la revue de littérature (Section 1.2.5), que les concentrations et les charges varient durant l'évènement ainsi que d'un évènement à l'autre. Les études essaient, en général, de relier les concentrations mesurées à la pluviométrie (intensité, précipitations, période de temps sec) ainsi qu'au débit mais peu ou pas de travaux ont regardé les rejets en contaminants en fonction des saisons. La pluviométrie est bien sûr différente en fonction des saisons avec une pluviométrie: (1) surtout de courte durée mais de forte intensité l'été; (2) surtout de moyenne durée et intensité l'automne et (3) un mélange de pluie et de neige ou des précipitations inexistantes avec une augmentation de température durant la fonte des neiges. L'intérêt d'étudier les concentrations et les charges rejetées par les DEU en fonction des saisons vient en fait de la législation. En effet, les règlementations concernant les DEU n'imposent aucune limite de fréquence de déversement durant la fonte des neiges. En effet, les critères de rejet d'eaux usées durant l'hiver sont principalement basés sur le maintien de la vie aquatique et la poursuite des activités récréatives. Ces dernières étant limitées au Canada durant l'hiver, ni la désinfection des effluents de StaRRE, ni le contrôle des DEU n'est demandé. De plus, (1) les volumes d'eau à traiter ou à stocker avant leur traitement et leur rejet dans l'environnement sont beaucoup trop élevés; (2) le traitement au niveau de la StaRRE est moins efficace lorsque les charges de l'affluent sont plus faibles et (3) la croyance générale est que la dilution par les eaux de ruissellement est tellement importante que les concentrations rejetées doivent être faibles. Or, l'hiver correspond à la période la plus critique pour le traitement des pathogènes à l'usine de filtration (Payment et al., 2000) et nous avons voulu évaluer l'impact des DEU durant cette période.

Les concentrations moyennes par DEU (ou CME) évaluées pendant la fonte des neiges sont de $3{,}0.10^6$ *E. coli*/100mL, 4 170 ng CAF/L, 240 ng CBZ/L, 7050 ng ACE/L. Les concentrations en *E. coli*, et en PPSP mesurées dans les DEU sont similaires en été et durant la fonte des neiges et sont significativement plus élevées que celles mesurées durant l'automne (Figure 3.1). Les concentrations en MES varient entre chaque saison et une valeur maximale de 231 mg MES/L a été observée durant les DEU de fonte des neiges (Figure 3.1).

Aucune différence significative n’a été observée entre les charges en *E. coli*, MES et PPSP entre les différentes saisons (Figure 4.3). Durant l’hiver, les vitesses d'écoulement et les niveaux d'infiltration sont plus faibles que durant les autres saisons et peu d’évènements de pluie ont lieu, ce qui facilite la formation de dépôts dans les conduites. La fonte des neiges va apporter une dilution continue mais modeste des usées sanitaires dans les égouts, entrainant une augmentation des flux de contaminants, de l'infiltration et du ruissellement. Les concentrations des PPSP, moins diluées que durant les autres saisons sont donc aussi élevées; leur biodégradation étant, par ailleurs, moins rapide en eaux froides. La fonte des neiges va surtout se dérouler durant la journée, lorsque les températures dépassent le point de congélation. Les DEU ont donc majoritairement lieu la journée et, comme nous l’avons vu dans la section précédente, les concentrations en *E. coli* rejetées sont plus élevées durant la journée (Figure 3.4). Les effets du déglaçage des routes sont également très importants à considérer puisque les concentrations de pointe en MES seront d’autant plus élevées après l’application des sels en cas d’évènement pluvieux ou de fonte de la neige (Ashley & Crabtree, 1992), ce qui explique les pointes de concentrations en MES observées. Les graviers utilisés pour le déglaçage des rues contribueraient à environ 30% des charges totales annuelles en MES (Ashley & Crabtree, 1992). Il est également important de noter que la couverture neigeuse en milieu densément urbanisé contient des MES, des métaux et des composés organiques (Reinosdotter & Viklander, 2006) qui vont se retrouver dans les DEU de fonte des neiges.

Nos résultats démontrent que les concentrations et les charges en contaminants rejetées durant les DEU de la fonte des neiges sont au moins aussi élevées que celles des autres saisons. Le nombre de DEU lors de la fonte des neiges est deux fois moins élevé que lors des autres périodes de l’année mais leur durée est deux fois et demie plus longue que celle des autres saisons. Ces évènements se concentrent également sur une période relativement courte (2 à 3 semaines) et peuvent avoir un impact majeur sur la qualité de l’eau du milieu récepteur. L’une des premières étapes réglementaires devrait être de limiter la fréquence et la durée des débordements durant cette période. Il serait également nécessaire que la méthode de priorisation des ouvrages de débordement développée dans le cadre de la Stratégie pancanadienne (Chapitre 1.1.3.3.2) prenne en considération les prises d’eau potable dans son calcul. De plus, des travaux de curetage des zones à faible vitesse d’écoulement dans les égouts devraient être réalisés durant l’hiver afin de limiter les dépôts et donc leur remise en suspension lors des évènements de fonte. Finalement, la neige des milieux densément urbanisés (≥ 20 000 personnes) devrait être retirée des rues, puis déposée dans

des dépôts à neige où le contrôle et le traitement des eaux de fonte pourraient être réalisés (Reinosdotter & Viklander, 2006). Cette dernière mesure permettrait de limiter le volume de fonte des neiges qui ruissellerait dans le réseau afin de diminuer le nombre de débordements.

6.3 Bilan sur les stratégies de contrôle des DEU

Les charges mesurées dans le cadre de ce projet peuvent être utilisées pour évaluer l'importance relative de tous les points de débordement par rapport aux rejets de la StaRRE. Entre 2009 et 2011, un total de 1 411 DEU a été comptabilisé en moyenne chaque année le long de la rive gauche de la rivière (pour tous les émissaires de DEU). Les charges totales annuelles rejetées par les DEU le long de ce système d'assainissement peuvent être estimées en utilisant une valeur moyenne de charge ainsi qu'une durée de 3 heures pour les 1 411 DEU enregistrés. Les charges totales annuelles estimées, pour l'ensemble des 1 411 DEU, représentent jusqu'à 40% de la charge totale en *E. coli* et 20% de la charge annuelle totale en MES rejetée par la StaRRE de ce même réseau d'assainissement. Les charges totales annuelles estimées rejetées par les DEU ne représentent qu'une petite fraction de la masse annuelle totale des PPSP rejetée par la StaRRE : 1,7% (CAF), 2,3% (ACE et CBZ) et 1,4% (THEO). En effet, la StaRRE n'ayant pas été conçue pour l'enlèvement des PPSP (Figure 4.4), il n'est pas surprenant qu'un rejet de StaRRE, continu et important en termes de débit, soit la source la plus importante. Ces résultats sont en contraste avec des études précédentes qui ont observé que les DEU sont le contributeur principal, sur une base annuelle, (jusqu'à 90%) des charges en hormones et en micropolluants rejetées lorsque la StaRRE est équipée d'un traitement biologique (Phillips et al., 2012). Par conséquent, l'importance relative des DEU par rapport aux rejets des StaRRE dans un système d'assainissement dépend : (1) des débits relatifs et (2) de l'efficacité d'élimination d'un contaminant.

L'amélioration du traitement des eaux usées est également essentielle pour l'élimination des PPSP et donc, la bonification de la protection des organismes aquatiques. Toutefois, la mise à niveau du traitement de la StaRRE augmentera la contribution relative des PPSP rejetés par les DEU par rapport à ceux rejetés par la StaRRE. Les rejets de composés qui sont effectivement éliminés pendant le traitement des eaux usées sont connus pour contribuer de façon substantielle à la masse totale rejetée dans les eaux réceptrices (Benotti & Brownawell, 2007; Phillips et al., 2012). L'efficacité d'élimination des contaminants diminue par temps de pluie à la StaRRE et certains contaminants, qui sont par temps sec bien éliminés, sont rejetés en une quantité disproportionnée,

et ce, même en l'absence de DEU. Le traitement de la StaRRE et la gestion des DEU doivent, par conséquent, être pris en compte dans un plan global de gestion urbaine pour améliorer la qualité des ressources en eau.

Dans une perspective de santé publique, il est essentiel de considérer les charges en pathogènes. Dans ce sens, l'emplacement des points de rejet des DEU et la durée des événements peuvent causer des contaminations critiques pour les activités situées en aval telles que les activités récréatives nautiques et l’alimentation en eau potable (Smeets et al., 2010). Il est indispensable de limiter la fréquence et la durée des débordements et d’améliorer l’efficacité du traitement à la StaRRE. Dans cette étude, la principale source de contaminants alternait entre les eaux usées et les dépôts. Les concentrations et les charges rejetées étaient très variables lors des événements et demeuraient élevées jusqu'à la fin des débordements. En outre, une grande partie de la charge n'a pas été rejetée au début de l'événement, par exemple avec le premier 25% du volume total. Ces résultats contestent la validité des pratiques conventionnelles d’interception et de traitement des eaux de ruissellement et de débordement qui mettent l'accent sur la rétention des premiers volumes afin de capturer une grande partie des charges. Nos travaux ont démontré le besoin de mettre en place des pratiques de gestion efficaces afin de réduire les volumes de débordement, puisque la capture du volume total n’est faisable ni techniquement ni financièrement. Cette thèse a également mis en évidence que les dépôts sont une préoccupation en termes de concentrations libérées, d’autant plus lorsque les débits des DEU sont élevés. Plus d'attention doit donc être consacrée à la mise au point de nouveaux dispositifs de contrôle en temps réel (RTC) des matières solides dans les conduites d'égout afin de permettre une gestion efficace des dépôts (Campisano et al., 2013). Le lavage des rues constitue également une méthode efficace de limitation des dépôts dans les conduites (Ahyerre, 2001). Les procédés de traitement des DEU sont limités en ce qui concerne les volumes qui peuvent être traités. De plus, les stratégies pour réduire les volumes de ruissellement par l'application de meilleures pratiques de gestion peuvent être efficaces pour la réduction du débit de pointe en réseaux d'égout mais ne seraient pas suffisantes pour diminuer les pointes de charge comme indiqué précédemment lors de la mise en œuvre de jardins de pluie (Autixier et al., 2014). Ainsi, le rapport coût-bénéfice de cette réduction de charge doit être soigneusement évalué.

6.4 Impacts des DEU sur la qualité microbiologique du milieu récepteur

Selon la réglementation actuelle, les exigences de traitement des usines de filtration sont définies à partir de la concentration moyenne en *E. coli* mesurée au niveau des prises d'eau potable. Pour les concentrations moyennes inférieures à 150 *E. coli*/100mL, ces exigences sont de 3 log d'abattement de *Crypto/Giardia* et de 4 log d'abattement des virus et sont en général rencontrées par la mise en place d'une filtration conventionnelle et d'une désinfection. Cependant, l'utilisation de la moyenne ne permet pas de prendre en compte les concentrations de pointe. Lors des périodes de fortes concentrations en contaminants microbiens, la filière de traitement pourrait ne pas être suffisamment efficace pour éliminer de manière adéquate les parasites.

Les travaux réalisés dans cette partie de l'étude avaient pour objectif de (1) proposer une approche statistique permettant d'analyser la variabilité des concentrations en *E. coli* au niveau des prises d'eau et de mettre en évidence les pointes de concentration et (2) de déterminer si les protocoles de suivi routiniers demandés par la réglementation permettent d'identifier les périodes de risques élevés correspondant à des DEU. Pour ce faire, un protocole d'échantillonnage bi-mensuel par temps sec et par temps de pluie a été développé afin d'évaluer les impacts des DEU sur la qualité de l'eau du milieu récepteur, en différents points de la rivière (ponts B1, B2 et B3) ainsi qu'aux prises d'eau potable (DWI-1 et DWI-2) et le suivi spécifique des concentrations en rivière lors de DEU échantillonnés a été réalisé.

6.4.1 Mise en évidence des pointes de concentration aux prises d'eau

La Maîtrise Statistique des Procédés (MSP)[11] a été utilisée comme outil statistique pour évaluer la variabilité des concentrations en *E. coli*. La limite supérieure de contrôle (UCL) estimée par l'analyse MSP était de 127 *E. coli*/100mL à la prise d'eau DWI-1 et de 197 *E. coli*/100mL à la prise d'eau DWI-2 (Figure 5.2). Un total de 49 et 45 des mesures des concentrations en *E. coli* à DWI-1 et DWI-2, respectivement, a dépassé l'UCL (Figure 5.2). Environ 80% des dépassements sont survenus pendant la période de la fonte des neiges et de temps de pluie, lorsque les précipitations cumulées dépassaient 10mm (Table 5-1), démontrant le rejet probable de DEU. Aucune explication

[11] Traduction personnelle de Statistical Process Control (SPC)

n’a pu être trouvée pour environ 20% des dépassements pour les deux prises d’eau, mais des problèmes techniques tels que les réparations ou l'entretien du réseau d'égouts pourraient être responsables de surverses. Nous observons également que 47% et 31% des événements de concentration de pointe en *E. coli* ont eu lieu pendant la période de la fonte des neiges aux prises d’eau DWI-1 et DWI-2, respectivement. Il est très intéressant de remarquer que parmi ces évènements, 57% et 36% ont eu lieu en période de haut débit (Q> 75ème percentile). Comme nous l’avons décrit précédemment, les DEU résultant de la fonte des neiges rejettent des concentrations en *E. coli* élevées et ce, pendant de longues durées, et ont un impact sur la qualité microbiologique de l’eau aux prises d’eau malgré le potentiel de dilution de la rivière plus important durant cette période de l’année. Le traitement de l'eau potable étant moins efficace en température froide en ce qui concerne l'élimination des parasites (Payment 2000), la période de la fonte des neiges (avril-mai dans ce cas) pourrait être considérée comme une période critique pour la qualité de l'eau potable.

6.4.2 Évaluation générale de l’impact des DEU

Le programme d’échantillonnage bi-mensuel de différentes stations de suivi en rivière (centre et rives) ainsi qu’aux prises d’eau a permis de mettre en évidence des augmentations significatives des concentrations en *E. coli* entre le temps sec et le temps de pluie: (1) pour les points situés au centre de la rivière, démontrant ainsi les impacts cumulatifs des rejets des différentes conduites de DEU situées le long des deux rives de la rivière; (2) au niveau des prises d’eau potable et (3) pour les points en rives par rapport aux points situés au centre. Les conduites de débordement étant généralement situées le long de la rivière à proximité des rives, leurs impacts sont plus importants dans les stations de suivi situées en rive (Figure 5.4).

6.4.3 Évaluation spécifique des impacts des DEU

Les différentes tendances observées pendant ces échantillonnages spécifiques au niveau des stations de suivi en rivière (Figure 5.5) montrent clairement que l'emplacement de la prise d’eau est essentiel pour déterminer sa vulnérabilité. En effet, les conduites de débordement étant situées fréquemment en rive, la contamination fécale est significativement plus élevée près des rives; et plus la prise d’eau sera située près de la rive, plus le risque de contamination par le DEU sera élevé. En ce qui concerne les plans de protection des sources d'eau mis en place en Ontario, au Canada,

la vulnérabilité des prises d'eau est basée sur: (1) la profondeur de la prise d'eau; (2) la distance entre la prise d'eau et la rive et (3) l'historique de problèmes rencontrés et le nombre d'incidents pour lesquels les normes ont été dépassées (Government of Ontario, 2009a). Selon cette méthodologie détaillée, une prise d'eau située en profondeur (> 3m) dans le chenal principal d'une rivière ou dans le centre d'un lac (à plus de 200 m de la rive) est considérée comme moins vulnérable dans les conditions de temps sec et de pluie (Government of Ontario, 2009b). En fait, si des épisodes de contamination fécale ne sont pas observés par le programme de surveillance à long terme, alors la prise d'eau située dans un grand lac ou dans une rivière à fort potentiel de dilution ne sera pas considérée comme étant vulnérable.

L'objectif principal du suivi des indicateurs fécaux au niveau des prises d'eau potable étant d'évaluer les périodes de récurrence et le pic de la vulnérabilité à la contamination fécale, il est primordial de comprendre si l'échantillonnage bi-mensuel ou hebdomadaire réalisé sur le long terme est capable de détecter des périodes prolongées de contamination de pointe. Nos résultats montrent que l'échantillonnage hebdomadaire des concentrations en *E. coli* au niveau des prises d'eau sous-estime manifestement les concentrations en *E. coli* qui arrivent à la prise d'eau pendant et/ou après les DEU, comme en témoignent les fortes augmentations observées lors de l'échantillonnage ciblé. Par conséquent, le suivi hebdomadaire requis par la réglementation ne devrait pas être utilisé pour quantifier le risque à la prise d'eau par temps de pluie en milieu densément urbanisé. D'autre part, un échantillonnage ponctuel en période de risque, tel que réalisé au cours de cette étude, ne permet pas d'évaluer la durée de la période à risque de contamination. Or l'ampleur de la contamination et la durée de la période de contamination déterminent le risque à la prise d'eau. Une contamination prolongée augmente le risque de percée d'une contamination de l'eau traitée si les barrières de traitement n'étaient pas suffisamment efficaces.

L'échantillonnage à haute fréquence durant les DEU, toutes les heures par exemple, serait très compliqué et couteux à mettre en place aux prises d'eau. De plus, pour des raisons analytiques, les concentrations en *E. coli* ne seraient connues que 24 heures après l'échantillonnage. Une solution alternative et plus à la portée des municipalités est maintenant envisageable, le suivi en continu de la contamination fécale. Cette approche est souhaitable car elle permettrait d'établir l'intensité et la durée des pointes de concentrations en *E. coli* entrant dans l'usine de filtration. L'utilisation du suivi en continu des concentrations en *E. coli* a récemment été proposée par Ryzinska-Paier et al. (2014) pour les eaux karstiques; le dispositif est basé sur la mesure de l'activité enzymatique

spécifique à *E. coli*, l'activité glucuronidase. Même si des problèmes techniques doivent toujours être résolus pour l'utilisation de l'appareil automatisé en continu pour les eaux de rivière, cette technologie va surement bientôt nous permettre de surveiller l'impact des DEU pour identifier les périodes de contamination microbiologique soutenue afin de mieux protéger les unités de traitement d'eau potable.

.

CHAPITRE 7 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

La réalisation de ce projet de recherche a permis de contribuer à l'avancement des connaissances relatives à la variabilité temporelle et spatiale des concentrations et charges rejetées par les DEU. Ceci fut réalisé à l'aide d'échantillonnages intensifs et détaillés des DEU au cours d'une année. L'évaluation des produits pharmaceutiques et de soins personnels (PPSP) comme traceur de contamination fécale par les DEU a également été réalisée. L'impact des DEU sur la qualité microbiologique de l'eau du milieu récepteur a également été évalué par le suivi bi-mensuel des concentrations à différents points de la rivière (incluant les prises d'eau potable) et par l'échantillonnage de différents points en rivière durant des DEU. En conséquence, ces travaux ont permis de répondre aux questions suivantes : Existe-t-il des variations caractéristiques des concentrations au cours d'un évènement ou entre les saisons ? Quelles sont les sources importantes des contaminants rejetés ? Quelle est la période de rejets la plus critique pour les prises d'eau potable ? Les PPSP peuvent-ils être utilisés comme traceur d'eaux usées dans les surverses ? Les PPSP peuvent-ils être utilisés comme traceur de surverse au niveau des prises d'eau potable ? Des conclusions concernant la gestion des réseaux de collecte des eaux usées et des DEU ainsi que sur la protection des prises d'eau potable en milieu densément urbanisé ont également été tirées.

Les conclusions relatives à la variabilité temporelle des contaminants durant les DEU sont les suivantes :

- Les concentrations en *E. coli* fluctuent d'environ un ordre de grandeur au cours des évènements. Les dynamiques des concentrations en *E. coli* sont directement liées à celles de la proportion des eaux de ruissellement ainsi qu'à l'heure à laquelle se déroule l'évènement, en raison des variations intrinsèques du contaminant. Les concentrations mesurées à la fin des évènements demeurent élevées.
- Les concentrations en MES suivent toujours la même tendance : des concentrations significativement plus élevées au début des évènements simultanément à l'augmentation du débit, puis les concentrations diminuent.
- Les PPSP ont démontré des tendances de variations très importantes, que ce soit durant les DEU ou entre les DEU, et ces évolutions sont différentes entre les composés. Les concentrations en PPSP dépendent des dynamiques des concentrations dans les eaux usées et de la proportion d'eau de ruissellement. Les variations reflètent (1) des modes de

consommation différents en fonction des composés, (2) des modes d'absorption par l'organisme ainsi que des modes d'excrétion différents en fonction des composés; soit majoritairement par les selles (CBZ), soit principalement par l'urine (CAF et ACE) et (3) la taille du bassin de drainage qui influence le mélange et la dispersion des composés

- Les charges importantes en contaminants sont rejetées tout au long des évènements et non uniquement au début de l'évènement (avec le premier 25% du volume total).

Les conclusions relatives aux sources des contaminants sont les suivantes :

- *E. coli* provient majoritairement des eaux usées et dans une moindre mesure de la remise en suspension des dépôts et des eaux de ruissellement
- Les MES proviennent majoritairement des eaux usées et de la remise en suspension des dépôts et des eaux de ruissellement
- Les PPSP proviennent majoritairement des eaux usées. La CBZ pourrait également provenir de la remise en suspension des dépôts.

Les conclusions relatives à l'utilisation des PPSP comme traceur d'eaux usées dans les DEU sont les suivantes :

- La variabilité des concentrations en PPSP est trop importante durant les DEU pour que des concentrations ponctuelles mesurées dans le milieu récepteur puissent être utilisées pour estimer la proportion d'eaux usées provenant des DEU
- Le suivi de longue durée de concentrations moyennes en PPSP pour différentes conditions météorologiques pourrait permettre d'évaluer (1) la contribution des DEU par rapport à celle des StaRRE et (2) la charge rejetée par les DEU dans un milieu récepteur ne recevant pas d'effluent de StaRRE
- La CBZ nous apparait comme le composé ayant le plus de potentiel à être utilisé comme traceur d'eaux usées dans les DEU dans les réseaux d'assainissement puisqu'il s'agit du composé (1) le plus stable et le plus persistant parmi les composes étudiés et (2) le mieux corrélé avec *E. coli* et les MES en raison de son mode d'excrétion.

Les conclusions relatives à l'utilisation des PPSP comme traceur de DEU dans le milieu récepteur sont les suivantes :

- Même si les DEU ont un fort potentiel d'utilisation comme traceur de DEU dans les rivières, les limites de détection actuelles ne permettent pas encore l'utilisation des PPSP dans une rivière ayant un potentiel de dilution aussi élevé (environ 1000). Toutefois, l'utilisation de ces composés serait utile dans une rivière ayant un potentiel de dilution moindre et des sources multiples de rejets en *E. coli* pour identifier les sources de contamination fécale humaine. Les développements des méthodes analytiques permettront d'en diminuer les seuils de détection et d'en augmenter la sensibilité.
- L'utilisation d'une combinaison de plusieurs composés permettrait également de différencier différents types de contaminations telles que des contaminations récentes avec l'ACE et des contaminations cumulées avec la CBZ.

Les conclusions relatives à la variabilité saisonnière des concentrations et charges dans les DEU sont les suivantes :

- Contrairement à la croyance générale, les concentrations et charges rejetées par les DEU de fonte des neiges sont élevées. Les concentrations en *E. coli* et en PPSP mesurées dans les DEU sont similaires en été et durant la fonte des neiges et sont significativement plus élevées que celles mesurées durant l'automne. Les concentrations maximales en MES ont été observées durant les DEU de fonte des neiges. Aucune différence significative n'a été observée entre les charges en *E. coli*, MES et PPSP entre les différentes saisons.

Les conclusions relatives aux stratégies de gestion et de contrôle des DEU sont les suivantes :

- L'amélioration du traitement de la StaRRE pour l'élimination des PPSP et la gestion des DEU doivent être pris en compte dans un plan global de gestion urbaine pour améliorer la qualité des ressources en eau
- Des pratiques de gestion efficaces afin de réduire les volumes de débordement doivent être mises en place puisque la capture du volume total n'est faisable ni techniquement ni

financièrement. La mise en place de contrôle en temps réel pour gérer les flux dans les conduites est nécessaire afin de réduire au maximum les volumes rejetés

- La mise au point de nouveaux dispositifs de contrôles en temps réel (RTC) des matières solides dans les conduites d'égout doit être effectuée afin de permettre une gestion efficace des dépôts. De plus, le lavage hebdomadaire des rues demeure l'un des meilleurs moyens à ce jour pour diminuer l'accumulation des dépôts dans les conduites
- La fonte des neiges ayant été identifiée comme une période critique pour la protection des prises d'eau potable, la limitation de la fréquence et de la durée des débordements durant cette période devrait apparaitre dans la règlementation. La neige devrait être retirée des rues et déposée dans des dépôts à neige où le contrôle et le traitement des eaux de fonte pourraient être réalisés. Des travaux de curetage des zones à faible vitesse d'écoulement dans les égouts devraient être réalisés afin de limiter les dépôts et donc leur remise en suspension lors des DEU.

Les conclusions relatives aux impacts des DEU sur la qualité microbiologique des prises d'eau potable et sur la protection des prises d'eau potable sont les suivantes :

- La Maîtrise Statistique des Procédés a permis d'identifier les pointes de concentration en *E. coli* au niveau des prises d'eau potable à partir d'une base de données d'une décennie. Environ 80% de ces évènements de pointe étaient reliés à des DEU causés par des précipitations de plus de 10 mm ou par la fonte des neiges
- Le suivi par temps de pluie a montré que les concentrations en *E. coli* pendant ou après les DEU augmentent significativement (1) aux prises d'eau potable, suggérant que le suivi spécifique des DEU doit être effectué afin de permettre la détection de concentrations de pointe en *E. coli*; (2) à proximité des rives, ce qui confirme l'emplacement des conduites de débordement près des berges; et (3) au centre de la rivière, ce qui démontre les effets cumulatifs des DEU le long de la rivière
- L'échantillonnage réglementaire hebdomadaire aux prises d'eau sous-estime manifestement les pointes de concentration en *E. coli* qui arrivent à la prise d'eau pendant et/ou après les DEU et ces résultats ne doivent pas être utilisés pour quantifier le risque aux prises d'eau par temps de pluie. Le suivi à haute fréquence des concentrations en *E. coli* à la prise d'eau

lors de DEU, voire même le suivi en continu, apparaissent comme des approches souhaitables car elles permettraient d'établir l'intensité et la durée des pointes de concentrations en *E. coli* entrant dans l'usine de filtration.

Ces travaux de doctorat ont également suscité de nouvelles questions et idées qui pourraient ouvrir la voie à de nouveaux projets de recherche. Il serait intéressant de:

- Caractériser les dépôts de différents collecteurs en termes de concentrations en *E. coli*, PPSP et MES
- Évaluer le potentiel d'adsorption et de désorption de ces dépôts dans des eaux de DEU et des eaux de rivière
- Caractériser la neige et évaluer l'impact des graviers utilisés pour le déglaçage sur les concentrations en MES
- Évaluer le potentiel des pratiques de gestions optimales sur la diminution des volumes de ruissellement et leur impact sur la diminution des débits, volumes et charges rejetés par les DEU
- Évaluer l'impact des changements climatiques sur les volumes et charges rejetés par les DEU
- Développer des plans de gestion du risque au niveau des prises d'eau par temps de pluie.

BIBLIOGRAPHIE

Ab Razak, I. A., & Christensen, E. R. (2001). Water quality before and after deep tunnel operation in Milwaukee, Wisconsin. *Water Research, 35*(11), 2683-2692.

Aboulfadl, K., De Potter, C., Prévost, M., & Sauvé, S. (2010). Time-dependent integrity during storage of natural surface water samples for the analysis of traces of pharmaceutical products, feminizing hormones and pesticides. *Chemistry Central Journal, 4*(10), 1-8.

Agg, A. R., & Derick, M. (1990). Storm sewage discharges to coastal waters in the Netherlands, West Germany, Denmark and France (Fondation for Water Research ed., pp. 45).

Ahyerre, M. (2001). Les dépôts en réseau d'assainissement unitaire, une importante source de pollution des rejets urbains de temps de pluie. *Houille Blanche-Revue Internationale De L'Eau*(6-7), 21-27.

Ahyerre, M., Chebbo, G., & Saad, M. (2000). Sources and erosion of organic solids in a combined sewer. *Urban Water, 2*(4), 305-315.

Ahyerre, M., Chebbo, G., & Saad, M. (2001a). Nature and dynamics of water sediment interface in combined sewers. *Journal of Environmental Engineering, 127*(3), 233-239.

Ahyerre, M., Oms, C., & Chebbo, G. (2001b). The erosion of organic solids in combined sewers. *Water Science and Technology, 43*(5), 95-102.

American Public Health Association (APHA), American Water Works Association (AWWA), & Water Environment Federation (WEF). (2012). *Standard methods for the examination of water and wastewater* (Vol. 5). Washington, D.C.: American Public Health Association.

Amirat, L., Wildeboer, D., Abuknesha, R. A., & Price, R. G. (2012). *Escherichia coli* contamination of the river Thames in different seasons and weather conditions. *Water and Environment Journal, 26*(4), 482-489.

Andoh, R. Y. G. (2010, May 16-20, 2010). *Why we need improved characterization of solids in wastewater, stormwater and combined sewer flows.* Paper presented at the World Environmental and Water Resources Congress: Challenges of Change, Providence, Rhode Island, USA.

Arnone, R. D., & Walling, J. P. (2006). Evaluating *Cryptosporidium* and *Giardia* concentrations in combined sewer overflow. *Journal of Water and Health, 4*(2), 157-165.

Arthur, S., & Ashley, R. M. (1998). The influence of near bed solids transport on first foul flush in combined sewers. *Water Science and Technology, 37*(1), 131-138. doi: Doi: 10.1016/s0273-1223(97)00762-2

Arthur, S., Ashley, R. M., & Nalluri, C. (1996). Near bed solids transport in sewers. *Water Science and Technology, 33*(9), 69-76.

Ashbolt, N., Grabow, W. O. K., & Snozzi, M. (2001). Indicators of microbial water quality. In L. Fewtrell & J. Bartram (Eds.), *Water Quality: Guidelines, Standards and Health. Assessment of risk and risk management for water-related infectious disease. Chapter 13: Indicators of microbial water quality*. London: On behalf of WHO by IWA Publishing.

Ashley, R. M., & Crabtree, R. W. (1992). Sediment origins, deposition and build-up in combined sewer systems. *Water Science and Technology, 25*(8), 1-12.

Ashley, R. M., & Dabrowski, W. (1995). Dry and storm weather transport of coliforms and faecal streptococci in combined sewage. *Water Science and Technology, 31*(7), 311-320.

Ashley, R. M., Fraser, A., Burrows, R., & Blanksby, J. (2000). The management of sediment in combined sewers. *Urban Water, 2*(4), 263-275.

Atherholt, T. B., LeChevallier, M. W., Norton, W. D., & Rosen, J. S. (1998). Effect of rainfall of *Giardia* and *Crypto*. *Journal of the American Water Works Association, 90*(9), 66-80.

Auld, H., MacIver, D., & Klaassen, J. (2004). Heavy rainfall and waterborne disease outbreaks: the Walkerton example. *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A, 67*(20), 1879-1887.

Autixier, L., Mailhot, A., Bolduc, S., Madoux-Humery, A.-S., Galarneau, M., Prévost, M., & Dorner, S. (2014). Evaluating rain gardens as a method to reduce the impact of sewer overflows in sources of drinking water. *Science of the Total Environment, 499*, 238-247. doi: 10.1016/j.scitotenv.2014.08.030

Bach, P. M., McCarthy, D. T., & Deletic, A. (2010a). The development of a novel approach for assessment of the first flush in urban stormwater discharges. *Water Science and Technology, 61*(10), 2681-2688.

Bach, P. M., McCarthy, D. T., & Deletic, A. (2010b). Redefining the stormwater first flush phenomenon. *Water Research, 44*(8), 2487-2498.

Bachoc, A. (1992). *Le transfert des solides dans les réseaux d'assainissement unitaires* (Thèse de Doctorat), Institut National Polytechnique de Toulouse, France.

Bailey, T. M. (2007). *Impact of the 25th street combined sewer overflow on the Ohio River* (Master degree), Marshall University, West Virginia.

Barco, J., Papiri, S., & Stenstrom, M. K. (2008). First flush in a combined sewer system. *Chemosphere, 71*, 827-833.

Beausse, J. (2004). Selected drugs in solid matrices: a review of environmental determination, occurrence and properties of principal substances. *TrAC Trends in Analytical Chemistry, 23*(10-11), 753-761. doi: 10.1016/j.trac.2004.08.005

Becouze-Lareure, C. (2010). *Caractérisation et estimation des flux de substances prioritaires dans les rejets urbains par temps de pluie sur deux bassins versants expérimentaux* (Thèse de doctorat), Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France. Retrieved from http://www.esprit-rhodanos.fr/publications/th-se-version-finale.pdf

Bennerstedt, K., & Brattberg, G. (1984, June 4-8, 1984). *Effects on Lake Malaren from combined sewer overflow*. Paper presented at the 3rd International Conference on Urban Storm Drainage, Goteborg, Sweden.

Benotti, M. J., & Brownawell, B. J. (2007). Distributions of pharmaceuticals in an urban estuary during both dry- and wet-weather conditions. *Environmental Science and Technology, 41*(16), 5795-5802.

Benowitz, N. L. (1990). Clinical pharmacology of caffeine. *Annual Review of Medicine, 41*(1), 277-288. doi: 10.1146/annurev.me.41.020190.001425

Bertrand-Krajewski, J.-L., & Bardin, J.-P. (2001). Estimation des incertitudes de mesure sur les débits et les charges polluantes en réseau d'assainissement: application au cas d'un bassin de retenue-décantation en réseau séparatif pluvial. *La Houille Blanche, 6-7*(6-7), 99-108.

Bertrand-Krajewski, J.-L., Chebbo, G., & Saget, A. (1998). Distribution of pollutant mass vs volume in stormwater discharges and the first flush phenomenon. *Water Research, 32*(8), 2341-2356.

Bertrand-Krajewski, J.-L., Laplace, D., Joannis, C., & Chebbo, G. (2008). *Mesures en hydrologie urbaine et assainissement* (Tec & Doc Ed.): Lavoisier.

Bijlmakers, L. L., & Dierx, R. A. M. (1990). Impact of overflow on surface-water quality in east-Brabant, The Netherlands. *Water Science and Technology, 22*(10-11), 277-278.

Birch, H., Mikkelsen, P. S., Jensen, J. K., & Holten Lützhøft, H.-C. (2011). Micropollutants in stormwater runoff and combined sewer overflow in the Copenhagen area, Denmark. *Water Science and Technology, 64*(2), 485-493.

Blaustein, R. A., Pachepsky, Y., Hill, R. L., Shelton, D. R., & Whelan, G. (2013). *Escherichia coli* survival in waters: Temperature dependence. *Water Research, 47*(2), 569-578. doi: 10.1016/j.watres.2012.10.027

Boleda, M. R., Galceran, M. T., & Ventura, F. (2013). Validation and uncertainty estimation of a multiresidue method for pharmaceuticals in surface and treated waters by liquid chromatography-tandem mass spectrometry. *Journal of Chromatography A, 1286*, 146-158. doi: 10.1016/j.chroma.2013.02.077

Brière, F. G. (2006). *Distribution et collecte des eaux* (2ème ed.): Presses Internationales de l'École Polytechnique de Montréal.

Brunelle, D., Cartier, P., Charron, A., Colas, H., & Lavallée, P. (1993). Étude intégrée du fonctionnement des intercepteurs centre et marigot (Addenda, Étape 1, Phase IIa) (pp. 200): Ville de Laval, Service de l'environnement et le Consortium Asseau inc.

Bueno-Martínez, M. J., Gomez, M. J., Herrera, S., Hernando, M. D., Agüera, A., & Fernández-Alba, A. R. (2012). Occurrence and persistence of organic emerging contaminants and priority pollutants in five sewage treatment plants of Spain: Two years pilot survey monitoring. *Environmental Pollution, 164*(0), 267-273. doi: 10.1016/j.envpol.2012.01.038

Buerge, I. J., Poiger, T., Müller, M. D., & Buser, H.-R. (2003). Caffeine, an anthropogenic marker for wastewater contamination of surface waters. *Environmental Science and Technology, 37*(4), 691-700.

Buerge, I. J., Poiger, T., Müller, M. D., & Buser, H.-R. (2006). Combined sewer overflows to surface waters detected by the anthropogenic marker caffeine. *Environmental Science and Technology, 40*(13), 4096-4102.

Burnet, J.-B., Penny, C., Orgorzaly, L., & Cauchie, H.-M. (2014). Spatial and temporal distribution of *Cryptosporidium* and *Giardia* in a drinking water resource: Implications for monitoring and risk assessment. *Science of the Total Environment, 472*, 1023-1035.

Butler, D., & Davies, J. W. (2011). *Urban drainage*. London: Spon Press.

Campisano, A., Cabot Ple, J., Muschalla, D., Pleau, M., & Vanrolleghem, P. A. (2013). Potential and limitations of modern equipment for real time control of urban wastewater systems. *Urban Water Journal, 10*(5), 300-311. doi: 10.1080/1573062x.2013.763996

Centre d'expertise hydrique du Québec. (2012). Données historiques des niveaux et des débits Retrieved 12/07/2012, from Gouvernement du Québec - Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs (MDDEP) http://www.cehq.gouv.qc.ca/hydrometrie/historique_donnees/info_validite.htm

Chambers, P. A., Allard, M., Walker, S. L., Marsalek, J., Lawrence, J., Servos, M., Busnarda, J., Munger, K. S., Adare, K., Jefferson, C., Kent, R. A., & Wong, M. P. (1997). Impacts of municipal wastewater effluents on Canadian waters: a review. *Water Quality Research Journal of Canada, 32*(4), 659-713.

Chebbo, G., Gromaire, M. C., Ahyerre, M., & Garnaud, S. (2001). Production and transport of urban wet weather pollution in combined sewer systems: the "Marais" experimental urban catchment in Paris. *Urban Water, 3*(1-2), 3-15.

Chefetz, B., Mualem, T., & Ben-Ari, J. (2008). Sorption and mobility of pharmaceutical compounds in soil irrigated with reclaimed wastewater. *Chemosphere, 73*(8), 1335-1343.

Choi, K., Kim, Y., Park, J., Park, C. K., Kim, M. Y., Kim, H. S., & Kim, P. (2008). Seasonal variations of several pharmaceutical residues in surface water and sewage treatment plants of Han River, Korea. *Science of the Total Environment, 405*(1-3), 120-128.

Chow, M. F., Yusop, Z., & Mohamed, M. (2011). Quality and first flush analysis of stormwater runoff from a tropical commercial catchment. *Water Science and Technology, 63*(6), 1211-1216

Christensen, E. R., Phoomiphakdeephan, W., & Ab Razak, I. A. (1997). Water quality in Milwaukee, Wisconsin, versus intake crib location. *Journal of Environmental Engineering, 123*(5), 492-498.

City of Ottawa. (2010). Combined Sewer Overflow (CSO) activity. from http://www.ottawa.ca/residents/waterwaste/combined_overflows/index_en.html

Cladière, M., Gasperi, J., Lorgeoux, C., & Tassin, B. (2011, 6-10 june 2011). *Discharges of endocrine disrupting chemicals by combined sewer overflows into receiving water: case-study of the Paris conurbation* Paper presented at the 11th edition of the World Wide Workshop for Young Environmental Scientists (WWWYES-2011), Arcueil -France.

Colston, N. V. (1974). Characterization and treatment of urban land runoff (pp. 171). Washington, DC, USA: United States Environmental Protection Agency (USEPA).

Commission européenne. (2010). *Directive 2000/60/CE du Parlement européen et du Conseil du 23 octobre 2000 établissant un cadre pour une politique communautaire dans le domaine de l'eau*. (L327 22 décembre 2000). Journal officiel des Communautés européennes.

Commission North Battleford. (2002). Report of the Commission of Inquiry into matters relating the safety of the public drinking water in the City of North Battleford (pp. 372). Saskatchewan, Canada.

Conseil Canadien des Ministres de l'environnement (CCME). (2009). Stratégie pancanadienne pour la gestion des effluents d’eaux usées municipales (pp. 23).

Crabtree, R. W. (1989). Sediments in sewers. *Journal of the Institution of Water and Environment Management, 3*(6), 569-578.

Craun, M. F., Craun, G. F., Calderon, R. L., & Beach, M. J. (2006). Waterborne outbreaks reported in the United States. *Journal of Water and Health, 4*(S2), 19-30.

Curriero, F. C., Patz, J. A., Rose, J. B., & Lele, S. (2001). The association between extreme precipitation and waterborne disease outbreaks in the United States, 1948-1994. *American Journal of Public Health, 91*(8), 1194-1199.

da Silva, B. F., Jelic, A., Lopez-Serna, R., Mozeto, A. A., Petrovic, M., & Barcelo, D. (2011). Occurrence and distribution of pharmaceuticals in surface water, suspended solids and sediments of the Ebro river basin, Spain. *Chemosphere, 85*(8), 1331-1339. doi: 10.1016/j.chemosphere.2011.07.051

Daneshvar, A., Aboulfadl, K., Viglino, L., Broséus, R., Sauvé, S., Madoux-Humery, A. S., Weyhenmeyer, G. A., & Prévost, M. (2012). Evaluating pharmaceuticals and caffeine as indicators of fecal contamination in drinking water sources of the Greater Montreal region *Chemosphere, 88*(1), 131–139. doi: 10.1016/j.chemosphere.2012.03.016

de Brauwere, A., Ouattara, N. K., & Servais, P. (2014). Modeling fecal indicator bacteria concentrations in natural surface waters: a review. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 44*, 2380-2453. doi: 10.1080/10643389.2013.829978

Deletic, A. (1998). The first flush load of urban surface runoff. *Water Research, 32*(8), 2462-2470.

Dembélé, A. (2010). *MES, DCO et polluants prioritaires des rejets urbains de temps de pluie : mesure et modélisation des flux événementiels* (Thèse de doctorat), Institut National des sciences Appliquées (INSA) de Lyon, France. Retrieved from http://www.esprit-rhodanos.fr/publications/fulltext-phd-a.-dembele-2010-public-version-.pdf

Diaz-Fierros T, F., Puerta, J., Suarez, J., & Diaz-Fierros V, F. (2002). Contaminant loads of CSOs at the wastewater treatment plant of a city in NW Spain. *Urban Water, 4*(3), 291-299.

Donovan, E., Unice, K., Roberts, J. D., Harris, M., & Finley, B. (2008). Risk of gastrointestinal disease associated with exposure to pathogens in the water of the Lower Passaic River. *Applied and Environmental Microbiology, 74*(4), 994-1003.

Dorner, S. M., Anderson, W. B., Slawson, R. M., Kouwen, N., & Huck, P. M. (2006). Hydrologic modeling of pathogen fate and transport. *Environmental Science and Technology, 40*(15), 4746-4753.

Drillia, P., Stamatelatou, K., & Lyberatos, G. (2005). Fate and mobility of pharmaceuticals in solid matrices. *Chemosphere, 60*(8), 1034-1044.

Edberg, S. C., Rice, E. W., Karlin, R. J., & Allen, M. J. (2000). *Escherichia coli*: the best biological drinking water indicator for public health protection. *Journal of Applied Microbiology, 88*, 106S-116S.

Edge, T. A., Hill, S., Seto, P., & Marsalek, J. (2010). Library-dependent and library-independent microbial source tracking to identify spatial variation in faecal contamination sources along a Lake Ontario beach (Ontario, Canada). *Water Science and Technology, 62*(3), 719-727.

Edge, T. A., Hill, S., Stinson, G., Seto, P., & Marsalek, J. (2007). Experience with the antibiotic resistance analysis and DNA fingerprinting in tracking faecal pollution at two lake beaches. *Water Science and Technology, 56*(11), 51-58.

Ellis, J. B. (1989). *Urban discharges and receiving water quality impacts*. Brighton, United Kingdom: Pergamon Press.

Ellis, J. B., & Yu, W. (1995). Bacteriology of urban runoff - the combined sewer as a bacterial reactor and generator. *Water Science and Technology, 31*(7), 303-310.

Environment Canada. (2001a). État des effluents urbains au Canada (pp. 79): Bureau des Indicateurs et de l'Évaluation, Direction Générale de la Science des Écosystèmes, Service de la Conservation de l'Environnement.

Environment Canada. (2001b). Threats to sources of drinking water and aquatic ecosystem health in Canada (pp. 72). Burlington, Ontario: National Water Research Institute (NWRI) Scientific Assessment Report Series No. 1.

Environment Canada. (2012). National Climate Data and Information Archive. Retrieved 09/05/2012 http://http://climate.weather.gc.ca/climateData/canada_f.html

Even, S., Mouchel, J.-M., Servais, P., Flipo, N., Poulin, M., Blanc, S., Chabanel, M., & Paffoni, C. (2007). Modelling the impacts of combined sewer overflows on the River Seine water quality. *Science of the Total Environment, 375*(1-3), 140-151.

Fent, K., Weston, A. A., & Caminada, D. (2006). Ecotoxicology of human pharmaceuticals. *Aquatic Toxicology, 76*(2), 122-159.

Fewtrell, L., & Bartram, J. (2001). Water quality. Guidelines, standards and health: assessment of risk and risk management for water-related infectious disease (pp. 6). London, United Kingdom: World Health Organization (WHO) and International Water Association (IWA).

Field, R. (2002). Storm and combined sewer overflow: an overview of EPA's research program (pp. 35): United States Environmental Protection Agency (USEPA).

Field, R., Sullivan, D., & Tafuri, A. N. (2003). *Management of combined sewer overflows*. Boca Ranton, Florida, USA: Lewis Publishers, CRC Press.

Fletcher, T. D., & Deletic, A. (2007). Statistical evaluation and optimisation of stormwater quality monitoring programmes. *Water Science and Technology, 56*(12), 1-9. doi: 10.2166/wst.2007.744

Fletcher, T. D., & Deletic, A. (2008). *Data requirements for integrated urban water management*. France: UNESCO Publishing.

Focazio, M. J., Kolpin, D. W., Barnes, K. K., Furlong, E. T., Meyer, M. T., Zaugg, S. D., Barber, L. B., & Thurman, M. E. (2008). A national reconnaissance for pharmaceuticals and other organic wastewater contaminants in the United States - II) Untreated drinking water sources. *Science of the Total Environment, 402*(2-3), 201-216.

Fong, T. T., Phanikumar, M. S., Xagoraraki, I., & Rose, J. B. (2010). Quantitative detection of human adenoviruses in wastewater and combined sewer overflows influencing a Michigan River. *Applied and Environmental Microbiology, 76*(3), 715-723.

Fox, K. R., & Lytle, D. A. (1996). Milwaukee's crypto outbreak: investigation and recommendations. *Journal of the American Water Works Association, 88*(9), 87-94.

Garcia-Armisen, T., & Servais, P. (2007). Respective contributions of point and non-point sources of *E. coli* and enterococci in a large urbanized watershed (the Seine river, France). *Journal of Environmental Management, 82*(4), 512-518.

Garnaud, S. (1999). *Transfert et évolution géochimique de la pollution métallique en bassin versant urbain.* (Thèse de doctorat), Sciences of the Universe - Ecole des Ponts ParisTech.

Gasperi, J., Garnaud, S., Rocher, V., & Moilleron, R. (2008). Priority pollutants in wastewater and combined sewer overflow. *Science of the Total Environment, 407*(1), 263-272.

Gasperi, J., Garnaud, S., Rocher, V., & Moilleron, V. (2011). Priority substances in combined sewer overflows: case study of the Paris sewer network. *Water Science and Technology, 63*(5), 853-858

Gasperi, J., Gromaire, M. C., Kafi, M., Moilleron, R., & Chebbo, G. (2010). Contributions of wastewater, runoff and sewer deposit erosion to wet weather pollutant loads in combined sewer systems. *Water Research, 44*(20), 5875-5886.

Gasperi, J., Laborie, B., & Rocher, V. (2012a). Treatment of combined sewer overflows by ballasted flocculation: Removal study of a large broad spectrum of pollutants. *Chemical Engineering Journal, 211-212*, 293-301. doi: 10.1016/j.cej.2012.09.025

Gasperi, J., Moilleron, R., & Chebbo, G. (2006). Spatial variability of polycyclic aromatic hydrocarbon load of urban wet weather pollution in combined sewers. *Water Science and Technology, 54*(6-7), 185-193. doi: 10.2166/wst.2006.576

Gasperi, J., Zgheib, S., Cladière, M., Rocher, V., & Moilleron, V. (2012b). Priority pollutants in urban stormwater: Part 2 - Case of combined sewers. *Water Research, 46*(20), 6693-6703.

Gasser, G., Rona, M., Voloshenko, A., Shelkov, R., Lev, O., Elhanany, S., Lange, F. T., Scheurer, M., & Pankratov, I. (2011). Evaluation of micropollutant tracers. II. Carbamazepine tracer for wastewater contamination from a nearby water recharge system and from non-specific sources. *Desalination, 273*(2-3), 398-404.

Gasser, G., Rona, M., Voloshenko, A., Shelkov, R., Tal, N., Pankratov, I., Elhanany, S., & Lev, O. (2010). Quantitative evaluation of tracers for quantification of wastewater contamination of potable water sources. *Environmental Science and Technology, 44*(10), 3919-3925.

Geiger, W. F. (1987, August 31-September 4, 1987). *Flushing effects in combined sewer systems.* Paper presented at the Fourth International Conference on Urban Storm Drainage, Lausanne, Switzerland.

Geldreich, E. E. (1996). *Microbial quality of water supply in distribution systems*. Boca Raton, Florida, USA: CRC Lewis Publishers.

Gibson III, C. J., Stadterman, K. L., States, S., & Sykora, J. (1998). Combined sewer overflows: a source of *Cryptosporidium* and *Giardia*? *Water Science and Technology, 38*(12), 67-72.

Glassmeyer, S. T., Furlong, E. T., Kolpin, D. W., Cahill, J. D., Zaugg, S. D., Werner, S. L., Meyer, M. T., & Kryak, D. D. (2005). Transport of chemical and microbial compounds from known wastewater discharges: potential for use as indicators of human fecal contamination. *Environmental Science and Technology, 39*(14), 5157-5169.

Gonzalez, A. (2001). *Transport et distribution des hydrocarbures aliphatiques et aromatiques dans le bassin versant urbain expérimental du Marais à Paris.* (Thèse de doctorat), Université de Paris 12, Créteil, France.

Gottschall, N., Topp, E., Metcalfe, C., Edwards, M., Payne, M., Kleywegt, S., Russell, P., & Lapen, D. R. (2012). Pharmaceutical and personal care products in groundwater, subsurface drainage, soil, and wheat grain, following a high single application of municipal biosolids to a field. *Chemosphere, 87*(2), 194-203. doi: 10.1016/j.chemosphere.2011.12.018

Goulding, G. M., & Hu, Z. (2009). Urban wet-weather flows. *Water Environment Research, 81*(10), 1003-1055.

Gouvernement du Canada. (2015). *Règlement sur les effluents des systèmes d'assainissement des eaux usées*. (DORS/2012-139). Canada: Retrieved from http://laws-lois.justice.gc.ca/fra/reglements/DORS-2012-139/.

Gouvernement du Québec. (2015). *Règlement sur les ouvrages municipaux d'assainissement des eaux usées*. Québec, Canada: Retrieved from http://www.mddelcc.gouv.qc.ca/eau/eaux-usees/ouvrages-municipaux/reglement2013.htm.

Government of Ontario. (1994a). Guideline F-5. Levels of treatment for municipal and private sewage treatment works discharging to surface waters (pp. 5): Ministry of the Environment.

Government of Ontario. (1994b). Procedure F-5-5. Determination of treatment requirement for municipal and private combined and partially separated sewer systems (pp. 8): Ministry of the Environment.

Government of Ontario. (2008). Design guidelines for sewage works (pp. 476): Ministry of the Environment.

Government of Ontario. (2009a). Technical Bulletin: approach on scoring vulnerable surface water protection zones (pp. 11). Toronto, Canada: Ministry of Environment.

Government of Ontario. (2009b). Technical Rules: Assessment Report - Clean Water Act 2006 (pp. 74). Toronto, Canada: Ministry of the Environment.

Gromaire, M. C., Garnaud, S., Saad, M., & Chebbo, G. (2001). Contribution of different sources to the pollution of wet weather flows in combined sewers. *Water Research, 35*(2), 521-533.

Gruber, G., Winkler, S., & Pressl, A. (2004). Quantification of pollution loads from CSOs into surface water bodies by means of online techniques. *Water Science and Technology, 50*(11), 73-80.

Gruber, G., Winkler, S., & Pressl, A. (2005). Continuous monitoring in sewer networks an approach for quantification of pollution loads from CSOs into surface water bodies. *Water Science and Technology, 52*(12), 215-223.

Guérineau, H., Dorner, S., Carrière, A., McQuaid, N., Sauvé, S., Aboulfadl, K., Hajj-Mohamad, M., & Prévost, M. (2014). Source tracking of leaky sewers: a novel approach combining fecal indicators in water and sediments. *Water Research, 58*, 50-61. doi: http://dx.doi.org/10.1016/j.watres.2014.03.057

Gupta, K., & Saul, A. J. (1996a). Specific relationships for the first flush load in combined sewer flows. *Water Research, 30*(5), 1244-1252.

Gupta, K., & Saul, A. J. (1996b). Suspended solids in combined sewer flows. *Water Science and Technology, 33*(9), 93-99.

Hall, K. J., McCallum, D. W., Lee, K., & Macdonald, R. (1998). Characterization and aquatic impacts of combined sewer overflows in Greater Vancouver, British Columbia. *Water Science and Technology, 38*(10), 9-14.

Han, Y. H., Lau, S.-L., Kayhanian, M., & Stenstrom, M. K. (2006a). Characteristics of highway stormwater runoff. *Water Environment Research, 78*(12), 2377-2388.

Han, Y. H., Lau, S. L., Kayhanian, M., & Stenstrom, M. K. (2006b). Correlation analysis among highway stormwater pollutants and characteristics. *Water Science and Technology, 53*(2), 235-243.

Harremoës, P. (1982). Immediate and delayed oxygen depletion in rivers. *Water Research, 16*, 1093-1098.

Harremoës, P. (1988). Stochastic models for estimation of extreme pollution from urban runoff. *Water Research, 22*(8), 1017-1026. doi: 10.1016/0043-1354(88)90149-2

Hata, A., Katayama, H., Kojima, K., Sano, S., Kasuga, I., Kitajima, M., & Furumai, H. (2014). Effects of rainfall events on the occurrence and detection efficiency of viruses in river water impacted by combined sewer overflows. *Science of the Total Environment, 468–469*(0), 757-763. doi: http://dx.doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.08.093

Hathaway, J. M., & Hunt, W. F. (2011). Evaluation of first flush for indicator bacteria and total suspended solids in urban stormwater runoff. *Water, Air, and Soil Pollution, 217*(1-4), 135-147.

Heaton, K. W., Radvan, J., Cripps, H., Mountford, R. A., Braddon, F. E. M., & Hughes, A. O. (1992). Defecation frequency and timing, and stool form in the general population: a prospective study. *Gut, 33*, 818-824.

Heberer, T. (2002). Tracking persistent pharmaceutical residues from municipal sewage to drinking water. *Journal of Hydrology, 266*(3-4), 175-189.

Helsel, D. R., Kim, J. I., & Grizzard, T. J. (1979). Land use influences on metals in storm drainage. *Journal of the Water Pollution Control Federation, 51*(4), 709-717.

Holeton, C., Chambers, P. A., & Grace, L. (2011). Wastewater release and its impacts on Canadian waters. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences, 68*(19), 1836-1859.

House, M. A., Ellis, J. B., Herricks, E. E., Hvitved-Jacobsen, T., Seager, J., Lijklema, L., H., A., & Clifforde, I. T. (1993). Urban drainage - impacts on receiving water quality. *Water Science and Technology, 27*(12), 117-158.

Hoxie, N. J., Davis, J. P., Vergeront, J. M., Nashold, R. D., & Blair, K. A. (1997). Cryptosporidiosis-associated mortality following a massive waterborne outbreak in Milwaukee, Wisconsin. American Journal of Public Health *American Journal of Public Health, 87*(12), 2032-2035.

Hvitved-Jacobsen, T. (1982). The impact of combined sewer overflows on the dissolved oxygen concentration of a river. *Water Research, 16*(7), 1099-1105.

Jagai, J. S., Li, Q., Wang, S., Messier, K. P., Wade, T. J., & Hilborn, E. D. (2015). Extreme precipitation and emergency room visits for gastrointestinal illness in areas with and without combined sewer systems: an analysis of Massachusetts data, 2003-2007. *Environmental Health Perspectives*. doi: 10.1289/ehp.1408971

Jaidi, K., Barbeau, B., Carrière, A., Desjardins, R., & Prévost, M. (2009). Including operational data in QMRA model: development and impact of model inputs. *Journal of Water and Health, 7*(1), 77-95. doi: 10.2166/wh.2009.133

Jalliffier-Verne, I. (2015). *Débordements d'égouts unitaires et protection des sources d'eau potable : intégration des changements globaux.* (Thèse de doctorat), Polytechnique Montréal, Montréal, QC, Canada.

Jalliffier-Verne, I., Leconte, R., Huaringa-Alvarez, U., Madoux-Humery, A. S., Galarneau, M., Servais, P., Prevost, M., & Dorner, S. (2015). Impacts of global change on the concentrations and dilution of combined sewer overflows in a drinking water source. *Sci Total Environ, 508*, 462-476. doi: 10.1016/j.scitotenv.2014.11.059

Jelic, A., Gros, M., Ginebreda, A., Cespedes-Sanchez, R., Ventura, F., Petrovic, M., & Barcelo, D. (2011). Occurrence, partition and removal of pharmaceuticals in sewage water and sludge during wastewater treatment. *Water Research, 45*(3), 1165-1176.

Johansen, N. B., Hvitved-Jacobsen, T., & Harremoës, P. (1984). Simulation of the impact of combined sewer overflow on rivers. *Nordic Hydrology, 15*(4-5), 325-332.

Kafi, M., Gasperi, J., Moilleron, R., Gromaire, M. C., & Chebbo, G. (2008). Spatial variability of the characteristics of combined wet weather pollutant loads in Paris. *Water Research, 42*(3), 539-549.

Kasprzyk-Hordern, B., Dinsdale, R. M., & Guwy, A. J. (2009). Illicit drugs and pharmaceuticals in the environment - Forensic applications of environmental data, Part 2: pharmaceuticals as chemical markers of faecal water contamination. *Environmental Pollution, 157*(6), 1778-1786.

Katayama, H., Okuma, K., Furumai, H., & Ohgaki, S. (2004). Series of surveys for enteric viruses and indicator organisms in Tokyo Bay after an event of combined sewer overflow. *Water Science and Technology, 50*(1), 259-262.

Kayhanian, M., & Stenstrom, M. K. (2008). First-flush characterization stormwater treatment. *The Journal of Surface Water Quality Professional*, 1-30.

Kim, G., Choi, E. S., & Lee, D. (2005). Diffuse and point pollution impacts on the pathogen indicator organism level in the Geum River, Korea. *Science of the Total Environment, 350*(1-3), 94-105.

Kinney, C. A., Furlong, E. T., Werner, S. L., & Cahill, J. D. (2006a). Presence and distribution of wastewater-derived pharmaceuticals in soil irrigated with reclaimed water. *Environmental Toxicology and Chemistry, 25*(2), 317-326. doi: 10.1897/05-187R.1

Kinney, C. A., Furlong, E. T., Zaugg, S. D., Burkhard, M. R., Werner, S. L., Cahill, J. D., & Jorgensen, G. R. (2006b). Survey of organic wastewater contaminants in biosolids destined for land application. *Environ Sci Technol, 40*(23), 7207-7215. doi: 10.1021/es0603406

Kistemann, T., Classen, T., Koch, C., Dangendorf, F., Fischeder, R., Gebel, J., Vacata, V., & Exner, M. (2002). Microbial load of drinking water reservoir tributaries during extreme rainfall and runoff. *Applied and Environmental Microbiology, 68*(5), 2188-2197.

Kistemann, T., Rind, E., Rechenburg, A., Koch, C., Claßen, T., Herbst, S., Wienand, I., & Exner, M. (2008). A comparison of efficiencies of microbiological pollution removal in six sewage treatment plants with different treatment systems. *International Journal of Hygiene and Environmental Health, 211*(5–6), 534-545. doi: 10.1016/j.ijheh.2008.04.003

Kunkel, U., & Radke, M. (2012). Fate of pharmaceuticals in rivers: deriving a benchmark dataset at favorable attenuation conditions. *Water Research, 46*(17), 5551-5565. doi: 10.1016/j.watres.2012.07.033

Kuroda, K., Fukushi, T., Murakami, M., Oguma, K., Takada, H., & Takizawa, S. (2009, November 15-19, 2009). *Pharmaceuticals as markers of sewage pollution in groundwater in Tokyo.* Paper presented at the American Water Works Association-Water Quality Technology Conference Seattle, Washington, USA.

Lacour, C., Joannis, C., & Chebbo, G. (2009a). Assessment of annual pollutant loads in combined sewers from continuous turbidity measurements: Sensitivity to calibration data. *Water Research, 43*(8), 2179-2190. doi: 10.1016/j.watres.2009.02.017

Lacour, C., Joannis, C., Gromaire, M. C., & Chebbo, G. (2009b). Potential of turbidity monitoring for real time control of pollutant discharge in sewers during rainfall events. *Water Science and Technology, 59*(8), 1471-1478. doi: 10.2166/wst.2009.169

Lacour, C., Schuetze, J. M., & Chebbo, G. (2011). Efficiency of a turbidity-based, real-time control strategy applied to a retention tank: a simulation study. *Water Science and Technology, 64*(7), 1533-1539.

Lacour, C., & Schütze, M. (2011). Real-time control of sewer systems using turbidity measurements. *Water Science and Technology, 63*(11), 2628-2632.

Lahti, M., & Oikari, A. (2011). Pharmaceuticals in settleable particulate material in urban and non-urban waters. *Chemosphere, 85*(5), 826-831.

Lalancette, C., Papineau, I., Payment, P., Dorner, S., Servais, P., Barbeau, B., Di Giovanni, G., & Prévost, M. (2014). Changes in *E. coli to Cryptosporidium* ratio from various fecal pollution sources and drinking water intakes. *Water Research, 55,* 150–161. doi: 10.1016/j.watres.2014.01.050

Lebaron, P., Henry, A., Lepeuple, A.-S., Pena, G., & Servais, P. (2005). An operational method for the real-time monitoring of *E. coli* numbers in bathing waters. *Marine Pollution Bulletin, 50*(6), 652-659.

LeChevallier, M. W., Norton, W. D., & Lee, R. G. (1991). Occurrence of *Giardia* and *Cryptosporidium* spp. in surface water supplies. *Applied and Environmental Microbiology, 57*(9), 2610-2616.

Lee, H., Lau, S. L., Kayhanian, M., & Stenstrom, M. K. (2004). Seasonal first flush phenomenon of urban stormwater discharges. *Water Research, 38*(19), 4153-4163.

Lee, J. H., & Bang, K. W. (2000). Characterization of urban stormwater runoff. *Water Research, 34*(6), 1773-1780.

Lee, J. H., Bang, K. W., Ketchum Jr., L. H., Choe, J. S., & Yu, M. J. (2002). First flush analysis of urban storm runoff. *Science of the Total Environment, 293*(1-3), 163-175. doi: 10.1016/s0048-9697(02)00006-2

Lee, J. H., Yu, M. J., Bang, K. W., & Choe, J. S. (2003). Evaluation of the methods for first flush analysis in urban watersheds. *Water Science and Technology, 48*(10), 167-176.

Lepot, M., Aubin, J. B., & Bertrand-Krajewski, J.-L. (2013). Accuracy of different sensors for the estimation of pollutant concentrations (total suspended solids, total and dissolved chemical oxygen demand) in wastewater and stormwater. *Water Science and Technology, 68*(2), 462-471. doi: 10.2166/wst.2013.276

Liang, Y. M., Zhang, Z. L., Yang, X., & Liu, W. (2013). Effect of suspended solids on the sequential disinfection of secondary effluent by UV irradiation and chlorination. *Journal of Environmental Engineering, 139*(12), 1482-1487. doi: 10.1061/(asce)ee.19437870.0000767

Lijklema, L., Tyson, J. M., & Lesouef, A. (1993). Interactions between sewers, treatment plants and receiving waters in urban areas - a summary of the interurba 92 workshop conclusions. *Water Science and Technology, 27*(12), 1-29.

Lin, A. Y.-C., Lin, C.-A., Tung, H.-H., & Chary, N. S. (2010). Potential for biodegradation and sorption of acetaminophen, caffeine, propranolol and acebutolol in lab-scale aqueous environments. *Journal of Hazardous Materials, 183*(1-3), 242-250.

Löffler, D., Römbke, J., Meller, M., & Ternes, T. A. (2005). Environmental fate of pharmaceuticals in water/sediment systems. *Environmental Science and Technology, 39*(14), 5209-5218.

Lucas, F., Gonçalves, A., Servais, P., Rocher, V., Masnada, S., Therial, C., Lesage, L., & Mouchel, J. M. (2012). Variabilité de la qualité microbiologique des eaux usées brutes dans une grande agglomération. *Techniques Sciences Méthodes numéro 4*, 44-55.

Lucas, F. S., Therial, C., Goncalves, A., Servais, P., Rocher, V., & Mouchel, J. M. (2014). Variation of raw wastewater microbiological quality in dry and wet weather conditions. *Environmental Science and Pollution Research, 21*(8), 5318-5328. doi: 10.1007/s11356-013-2361-y

Ma, J.-S., Khan, S., Li, Y.-X., Kim, L.-H., Ha, S., Lau, S.-L., Kayhanian, M., & Stenstrom, M. K. (2002, September 8-13, 2002). *First flush phenomena for highways: how it can be meaningfully defined.* Paper presented at the 9th International Conference on Urban Drainage, Global Solutions for Urbain Drainage, Portland, Oregon, USA.

Mac Kenzie, W. R., Hoxie, N. J., Proctor, M. E., Gradus, M. S., Blair, K. A., Peterson, D. E., Kazmierczak, J. J., Addiss, D. G., Fox, K. R., Rose, J. B., & Davis, J. P. (1994). A massive outbreak in Milwaukee of *Cryptosporidium* infection transmitted through the public water supply. *The New England Journal of Medicine, 331*(3), 161-167.

Madoux-Humery, A.-S., Dorner, S., Sauvé, S., Aboufadl, K., Galarneau, M., Servais, P., & Prévost, M. (2015). Temporal analysis of microbiological and wastewater micropollutants loads from combined sewer overflows: Implication for management. *Environmental Science: Processes & Impacts, 17*, 965-974. doi: 10.1039/c5em00093a

Madoux-Humery, A.-S., Dorner, S., Sauvé, S., Aboulfadl, K., Galarneau, M., Servais, P., & Prévost, M. (2013). Temporal variability of combined sewer overflow contaminants: evaluation of wastewater micropollutants as tracers of fecal contamination. *Water Research, 47*(13), 4370-4382. doi: 10.1016/j.watres.2013.04.030

Mailhot, A., Duchesne, S., Caya, D., & Talbot, G. (2007). Assessment of future change in intensity-duration-frequency (IDF) curves for Southern Quebec using the Canadian Regional Climate Model (CRCM). *Journal of Hydrology, 347*(1-2), 197-210. doi: 10.1016/j.jhydrot.2007.09.019

Makepeace, D. K., Smith, D. W., & Stanley, S. J. (1995). Urban stormwater quality: summary of contaminant data. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 25*(2), 93-139.

MAMROT. (2002). Suivi des ouvrages municipaux d'assainissement des eaux (SOMAE). Retrieved 10/04/12, from Gouvernement du Québec https://somae.mamot.gouv.qc.ca/SOMAE.nsf

MAMROT. (2010). *Ouvrages de surverses et stations d'épuration. Évaluations annuelles de performance des ouvrages municipaux d'assainissement des eaux pour l'année 2009*. Gouvernement du Québec - Ministère des Affaires Municipales, des Régions et de l'Occupation du Territoire du Québec Retrieved from http://www.mamrot.gouv.qc.ca/pub/infrastructures/suivi_ouvrages_assainissement_eaux/eval_perform_rapport_2009.pdf.

MAMROT. (2012). Programme de suivi des ouvrages municipaux d'assainissement des eaux usées (SOMAE). from Gouvernement du Québec - Ministère des Affaires Municipales des Régions et de l'Occupation du Territoire du Québec http://www.mamrot.gouv.qc.ca/infrastructures/suivi-des-ouvrages-dassainissement/

MAMROT. (2013). *Ouvrages de surverses et stations d'épuration. Évaluations annuelles de performance des ouvrages municipaux d'assainissement des eaux pour l'année 2013*. Gouvernement du Québec - Ministère des Affaires Municipales, des Régions et de l'Occupation du Territoire du Québec

MAMROT. (2014). Programme de suivi des ouvrages municipaux d'assainissement des eaux usées (SOMAE). Retrieved 06/07/2014, from Gouvernement du Québec - Ministère des Affaires Municipales des Régions et de l'Occupation du Territoire du Québec http://www.mamrot.gouv.qc.ca/infrastructures/suivi-des-ouvrages-dassainissement/

Marsalek, J. (1997). Foreword: stormwater and abatement of combined sewer overflow pollution. *Water Quality Research Journal of Canada, 32*(1), 1-5.

Marsalek, J., Barnwell, T. O., Geiger, W., Grottker, M., Huber, W. C., Saul, A. J., Schilling, W., & Torno, H. C. (1993). Urban drainage systems: design and operation. *Water Science and Technology, 27*(12), 31-70.

Marsalek, J., & Chocat, B. (2002). International report: stormwater management. *Water Science and Technology, 46*(6-7), 1-17.

Marsalek, J., Dutka, B. J., McCorquodale, A. J., & Tsanis, I. K. (1996). Microbiological pollution in the Canadian upper great Lakes connecting channels. *Water Science and Technology, 33*(4-5), 349-356.

Marsalek, J., & Rochfort, Q. (2004). Urban wet-weather flows: sources of fecal contamination impacting on recreational waters and threatening drinking-water sources. *Journal of Toxicology and Environmental Health, Part A, 67*(20-22), 1765-1777.

Martin Ruel, S., Choubert , J. M., Budzinski, H., Miège, C., Esperanza, M., & Coquery, M. (2012). Occurence and fate of relevant substances in wastewater treatment plants regarding Water Framework Directive and future legislations. *Water Science and Technology, 65*(7), 1179-1189.

Maskaoui, K., & Zhou, J. (2010). Colloids as a sink for certain pharmaceuticals in the aquatic environment. *Environmental Science and Pollution Research, 17*(4), 898-907. doi: 10.1007/s11356-009-0279-1

McBride, G. B. (2005). *Using statistical methods for water quality management: issues, problems, and solutions* (M. Scott & V. Barnett Eds. John Wiley & Sons ed.).

McCarthy, D. T. (2008). *Modelling microorganisms in urban stormwater* (Ph. D thesis), Monash University, Australia. Retrieved from http://www.watersensitivecities.org.au/?page_id=2594

McCarthy, D. T. (2009). A traditional first flush assessment of *E. coli* in urban stormwater runoff. *Water Science and Technology, 60*(11), 2749-2757.

McCarthy, D. T., Hathaway, J. M., Hunt, W. F., & Deletic, A. (2012). Intra-event variability of *Escherichia coli* and total suspended solids in urban stormwater runoff. *Water Research, 46*(20), 6661-6670. doi: 10.1016/j.watres.2012.01.006

McLellan, S. L., Hollis, E. J., Depas, M. M., Van Dyke, M., Harris, J., & Scopel, C. O. (2007). Distribution and fate of *Escherichia coli* in lake Michigan following contamination with urban stormwater and combined sewer overflows. *Journal of Great Lakes Research, 33*(3), 566-580.

MDDELCC. (2015). Guide de catégorisation des débordements et de validation des formulaires de surverse dans le système SOMAE. In Gouvernement du Québec (Ed.), (pp. 56): Direction générale des politiques de l'eau - Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les Changements Climatiques.

MDDEP. (2002). *L'eau. La vie. L'avenir. Politique nationale de l'eau*. Canada: Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs - Gouvernement du Québec Retrieved from http://www.mddep.gouv.qc.ca/eau/politique/politique-integral.pdf.

MDDEP. (2005). *Règlement sur la qualité de l'eau potable*. Canada: Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs du Québec - Gouvernement du Québec Retrieved from http://www2.publicationsduquebec.gouv.qc.ca/dynamicSearch/telecharge.php?type=2&file=//Q_2/Q2R18_1_1.htm.

MDDEP. (2007a). Bilan synthèse sur la mise en oeuvre de la politique nationale de l'eau 2003-2007 (pp. 37): Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs - Gouvernement du Québec.

MDDEP. (2007b). Calcul et interprétation des objectifs environnementaux de rejet pour les contaminants du milieu aquatique (2ème ed., pp. 83): Ministère du Développement Durable, de l'Environment et des Parcs - Gouvernement du Québec.

MDDEP. (2008). *Document synthèse sur le calcul et l'interprétation des objectifs environnementaux de rejet*. Québec: Ministère du Développement Durable de l'Environnement et des Parcs - Gouvernement du Québec Retrieved from http://www.mddep.gouv.qc.ca/eau/oer/synthese_calcul_oer.pdf.

Métadier, M., & Bertrand-Krajewski, J.-L. (2011a). Assessing dry weather flow contribution in TSS and COD storm events loads in combined sewer systems. *Water Science and Technology, 63*(2), 2983-2991.

Métadier, M., & Bertrand-Krajewski, J.-L. (2011b). From mess to mass: a methodology for calculating storm event pollutant loads with their uncertainties, from continuous raw data time series. *Water Science and Technology, 63*(3), 369-376. doi: doi: 10.2166/wst.2011.230

Metcalf and Eddy Inc. (2003). *Wastewater engineering: treatment and reuse* (Fourth ed.). New York, USA: McGraw Hill, Inc.

Metcalfe, C. D., Koenig, B. G., Bennie, D. T., Servos, M., Ternes, T. A., & Hirsch, R. (2003). Occurrence of neutral and acidic drugs in the effluents of canadian sewage treatment plants. *Environmental Toxicology and Chemistry, 22*(12), 2872-2880.

Miao, X.-S., & Metcalfe, C. D. (2003). Determination of carbamazepine and its metabolites in aqueous samples using liquid chromatography-electrospray tandem mass spectrometry. *Analytical Chemistry, 75*(15), 3731-3738.

Miao, X.-S., Yang, J.-J., & Metcalfe, C. D. (2005). Carbamazepine and its metabolites in wastewater and in biosolids in a municipal wastewater treatment plant. *Environmental Science and Technology, 39*(19), 7469-7475.

Miège, C., Choubert, J. M., Ribeiro, L., Eusèbe, M., & Coquery, M. (2009). Fate of pharmaceuticals and personal care products in wastewater treatment plants - Conception of a database and first results. *Environmental Pollution, 157*(5), 1721-1726.

Miossec, L., Le Guyader, F., Haugarreau, L., & Pommepuy, M. (2000). Importance de la pluviométrie sur la contamination virale du milieu littoral lors de phénomènes épidémiques dans la population. *Revue d'épidémiologie et de santé publique, 48*(SUP2), 2s62-62s71.

Monteiro, S. C., & Boxall, A. B. A. (2010). Occurrence and fate of human pharmaceuticals in the environment *Reviews of Environmental Contamination and Toxicology* (Vol. 202, pp. 53-154).

Mulliss, R., Revitt, D. M., & Shutes, R. B. E. (1997). The impacts of discharges from two combined sewer overflows on the water quality of an urban watercourse. *Water Science and Technology, 36*(8-9), 195-199.

Muschalla, D., Schneider, S., Gamerith, V., Gruber, G., & Schroter, K. (2008). Sewer modelling based on highly distributed calibration data sets and multi-objective auto-calibration schemes. *Water Science and Technology, 57*(10), 1547-1554.

Nelligan, T. (2008). Households' use of water and wastewater services. *EnviroStats, 2*(4), 17-19. Retrieved from: http://www.statcan.gc.ca/pub/16-002-x/2008004/article/10752-eng.htm

Nelson, E. D., Do, H., Lewis, R. S., & Carr, S. A. (2010). Diurnal Variability of Pharmaceutical, Personal Care Product, Estrogen and Alkylphenol Concentrations in Effluent from a Tertiary Wastewater Treatment Facility. *Environmental science & technology, 45*(4), 1228-1234. doi: 10.1021/es102452f

Nichols, G., Lane, C., Asgari, N., Verlander, N. Q., & Charlett, A. (2009). Rainfall and outbreaks of drinking water related disease and in England and Wales. *Journal of Water and Health, 7*(1), 1-8.

Noble, R. T., Weisberg, S. B., Leecaster, M. K., McGee, C. D., Dorsey, J. H., Vainik, P., & Orozco-Borbon, V. (2003). Storm effects on regional beach water quality along the southern California shoreline. *Journal of Water and Health, 1*, 23-31.

O'Neil, A. E., Richen, D., & Lundrie, P. (1985). Sewage contamination, the drumheller experience, a waterborne epidemic of acute infectious gastroenteritis. *Canadian Water Resources Journal, 10*(3), 38-45.

OCDE. (2003). Examens environnementaux de l'OCDE - Pays Bas (pp. 167): Organisation de coopération et de développement économiques (OCDE).

OCDE. (2004a). Examens environnementaux de l'OCDE - Espagne (pp. 232): Organisation de coopération et de développement économiques (OCDE).

OCDE. (2004b). Examens environnementaux de l'OCDE - Suède (pp. 236): Organisation de coopération et de développement économiques (OCDE).

OCDE. (2007a). Examens environnementaux de l'OCDE - Belgique (pp. 302): Organisation de coopération et de développement économiques (OCDE).

OCDE. (2007b). Examens environnementaux de l'OCDE - Danemark (pp. 280): Organisation de coopération et de développement économiques (OCDE).

Olivieri, A., Boehm, A., Sommers, C. A., Soller, J. A., Eisenberg, J. N., & Danielson, R. (2007). Development of a protocol for risk assessment of microorganisms in separate stormwater systems (Vol. 03-SW-2, pp. 202): Water Environment Research Foundation (WERF) & IWA Publishing.

Oppel, J., Broll, G., Loffler, D., Meller, M., Rombke, J., & Ternes, T. A. (2004). Leaching behaviour of pharmaceuticals in soil-testing-systems: a part of an environmental risk assessment for groundwater protection. *Science of the Total Environment, 328*(1-3), 265-273. doi: 10.1016/j.scitotenv.2004.02.004

Ort, C., Lawrence, M. G., Reungoat, J., & Mueller, J. F. (2010). Sampling for PPCPs in wastewater systems: comparison of different sampling modes and optimization strategies. *Environmental Science and Technology, 44*(16), 6289-6296.

Ouattara, N. K., Garcia-Armisen, T., Anzil, A., Brion, N., & Servais, P. (2014). Impact of wastewater release on the faecal contamination of a small urban river: The Zenne River in Brussels (Belgium). *Water, Air, & Soil Pollution, 225*(8). doi: 10.1007/s11270-014-2043-5

Pachepsky, Y. A., & Shelton, D. R. (2011). *Escherichia coli* and fecal coliforms in freshwater and estuarine sediments. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 41*(12), 1067-1110.

Parent-Raoult, C., & Boisson, J.-C. (2007). Impacts des rejets urbains de temps de pluie (RUTP) sur les milieux aquatiques: état des connaissances. *Revue des Sciences de l'Eau, 20*(2), 229-239.

Passerat, J., Ouattara, N. K., Mouchel, J.-M., Rocher, V., & Servais, P. (2011). Impact of an intense combined sewer overflow event on the microbiological water quality of the Seine River. *Water Research, 45*(2), 893-903.

Patz, J. A., Vavrus, S. J., Uejio, C. K., & McLellan, S. L. (2008). Climate change and waterborne disease risk in the great lakes region of the U.S. *American Journal of Preventive Medicine, 35*(5), 451-458.

Payment, P. (2003). Enlèvement des microorganismes pathogènes et des bactéries indicatrices par les stations de traitement des eaux usées municipales situées sur la rivière des Mille îles (pp. 122): Ministère de l'Environnement du Québec. Programme d'aide à la recherche et au développement en environnement (PARDE).

Payment, P., Berte, A., Prévost, M., Ménard, B., & Barbeau, B. (2000). Occurrence of pathogenic microorganisms in the Saint Lawrence River (Canada) and comparison of health risks for populations using it as their source of drinking water. *Canadian Journal of Microbiology, 46*(6), 565-576.

Pedrouzo, M., Reverté, S., Borrull, F., Pocurull, E., & Marcé, R. M. (2007). Pharmaceutical determination in surface and wastewaters using high-performance liquid chromatography-(electrospray)-mass spectrometry. *Journal of Separation Science, 30*(3), 297-303.

Peeler, K. A., Opsahl, S. P., & Chanton, J. P. (2006). Tracking anthropogenic inputs using caffeine, indicator bacteria, and nutrients in rural freshwater and urban marine systems. *Environmental Science and Technology, 40*(24), 7616-7622.

Petrie, B., Barden, R., & Kasprzyk-Hordern, B. (2014). A review on emerging contaminants in wastewaters and the environment: current knowledge, understudied areas and recommandations for future monitoring. *Water Research, 72*, 3-27.

Phillips, P., & Chalmers, A. (2009). Wastewater effluent, combined sewer overflows, and other sources of organic compounds to Lake Champlain. *Journal of the American Water Resources Association, 45*(1), 45-57.

Phillips, P. J., Chalmers, A. T., Gray, J. L., Kolpin, D. W., Foreman, W. T., & Wall, G. R. (2012). Combined sewer overflows: an environmental source of hormones and wastewater micropollutants. *Environmental Science and Technology, 46*(10), 5336–5343.

Prats, J., Garcia-Armisen, T., Larrea, J., & Servais, P. (2008). Comparison of culture-based methods to enumerate *Escherichia coli* in tropical and temperate freshwaters. *Letters in Applied Microbiology, 46*(2), 243-248. doi: 10.1111/j.1472-765X.2007.02292.x

Quilliam, R. S., Clements, K., Duce, C., Cottrill, S. B., Malham, S. K., & Jones, D. L. (2011). Spatial variation of waterborne Escherichia coli - implications for routine water quality monitoring. *Journal of Water and Health, 9*(4), 734-737.

Rechenburg, A., Koch, C., Classen, T., & Kistemann, T. (2006). Impact of sewage treatment plants and combined sewer overflow basins on the microbiological quality of surface water. *Water Science and Technology, 54*(3), 95-99.

Reinosdotter, K., & Viklander, M. (2006). Handling of urban snow with regard to snow quality. *Journal of Environmental Engineering, 132*(2), 271-278.

République Française. (1995). *Arrêté du 22/12/94 relatif à la surveillance des ouvrages de collecte et de traitement des eaux usées mentionnées aux articles L. 372-1-1 et L. 372-3 du Code des communes (JO n° 35 du 10 février 1995).* Retrieved from http://www.ineris.fr/aida/?q=consult_doc/version_imprimable/2.250.190.28.8.2389/true/pdf.

Rocher, V., Garnaud, S., Moilleron, R., & Chebbo, G. (2004). Hydrocarbon pollution fixed to combined sewer sediment: a case study in Paris. *Chemosphere, 54*(7), 795-804.

Roig, B. (2010). *Pharmaceuticals in the environment: current knowledge and need assessment to reduce presence and impact (European Water Research)*: IWA Publishing.

Rose, J. B., Daeschner, S., Easterling, D. R., Curriero, F. C., Lele, S., & Patz, J. A. (2000). Climate and waterborne disease outbreaks. *Journal of the American Water Works Association, 92*(9), 77-87.

Ruban, G., Gromaire, M. C., Bertrand-Krajewski, J.-L., & Chebbo, G. (2008). Mesurage de la turbidité sur échantillons: application aux eaux résiduaires urbaines. *Techniques Sciences Méthodes, 4*, 61-74.

Ryzinska-Paier, G., Lendenfeld, T., Correa, K., Stadler, P., Blaschke, A. P., Mach, R. L., Stadler H., Kirschner, A. K. T., & Farnleitner, A. H. (2014). A sensitive and robust method for automated on-line monitoring of enzymatic activities in water and water resources. *Water Science and Technology, 69*(6), 1349-1358.

Saget, A. (1994). *Base de données sur la qualité des rejets urbains de temps de pluie : distribution de la pollution rejetée, dimensions des ouvrages d'interception* (Thèse de doctorat), Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, Paris, France. Retrieved from http://pastel.archives-ouvertes.fr/docs/00/57/40/26/PDF/1994TH_SAGET_A_NS19080.pdf

Saget, A., Chebbo, G., & Bertrand-Krajewski, J.-L. (1996). The first flush in sewer systems. *Water Science and Technology, 33*(9), 101-108.

Sankararamakrishnan, N., & Guo, Q. (2005). Chemical tracers as indicator of human fecal coliforms at storm water outfalls. *Environment International, 31*(8), 1133-1140. doi: 10.1016/j.envint.2005.04.002

Sansalone, J. J., & Buchberger, S. G. (1997). Partitioning and first flush of metals in urban roadway storm water. *Journal of Environmental Engineering, 123*(2), 134-143.

Sansalone, J. J., & Cristina, C. M. (2004). First flush concepts for suspended and dissolved solids in small impervious watersheds. *Journal of Environmental Engineering, 130*(11), 1301-1314.

Sauvé, S., Aboulfadl, K., Dorner, S., Payment, P., & Prévost, M. (2012). Fecal coliforms, caffeine and carbamazepine in stormwater collection systems in a large urban aera. *Chemosphere, 86*(2), 118-123. doi: 10.1016/j.chemosphere.2011.09.033

Scheytt, T., Mersmann, P., Lindstädt, R., & Heberer, T. (2005). Determination of sorption coefficients of pharmaceutically active substances carbamazepine, diclofenac, and ibuprofen, in sandy sediments. *Chemosphere, 60*(2), 245-253.

Scopel, C. O., Harris, J., & McLellan, S. L. (2006). Influence of nearshore water dynamics and pollution sources on beach monitoring outcomes at two adjacent lake Michigan beaches. *Journal of Great Lakes Research, 32*(3), 543-552. doi: 10.3394/0380-1330(2006)32[543:Ionwda]2.0.Co;2

Signor, R. S., Roser, D. J., Ashbolt, N. J., & Ball, J. E. (2005). Quantifying the impact of runoff events on microbiological contaminant concentrations entering surface drinking source waters. *Journal of Water and Health, 3*(4), 453-468.

Smeets, P. W. M. H., Rietveld, L. C., van Dijk, J. C., & Medema, G. J. (2010). Practical applications of quantitative microbial risk assessment (QMRA) for water safety plans. *Water Science and Technology, 61*(6), 1561-1568.

Soonthornnonda, P., & Christensen, E. R. (2008). Source apportionment of pollutants and flows of combined sewer wastewater. *Water Research, 42*(8-9), 1989-1998.

Soulier, C., Gabet, V., Lardy, S., Lemanach, K., Pardon, P., Esperanza, M., Miège, C., Choubert , J. M., Martin, S., Coquery, M., & Budzinski, H. (2011). Zoom sur les substances pharmaceutiques : présence, partition, devenir en station d'épuration. *Techniques Sciences Méthodes numéro 1/2 -106e année*, 63-77.

Stahre, P., & Urbonas, B. (1990). *Stormwater detention: for drainage, water quality, and CSO management*: Prentice Hall.

Stamatelatou, K., Frouda, C., Fountoulakis, M. S., Drillia, P., Kornaros, M., & Lyberatos, G. (2003). Pharmaceuticals and health care products in wastewater effluents: the example of carbamazepine. *Water Science and Technology: Water Supply, 3*(4), 131-137.

States, S., Stadterman, K., Ammon, L., Vogel, P., Baldizar, J., Wright, D., Conley, L., & Sykora, J. (1997). Protozoa in river water: sources, occurrence, and treatment. *Journal of the American Water Works Association, 89*(9), 74-83.

Stenstrom, M. K., & Kayhanian, M. (2005). First flush phenomenon characterization (pp. 81). Sacramento, California, USA: California Department of Transportation. Division of Environmental Analysis.

Stirling, R., Aramini, J., Ellis, A., Lim, G., Meyers, R., Fleury, M., & Werker, D. (2001). Waterborne cryptosporidiosis outbreak, North Battleford, Saskatchewan, Spring 2001. *Canada Communicable Disease Report (CCDR), 27*(22), 185-192.

Suárez, J., & Puertas, J. (2005). Determination of COD, BOD, and suspended solids loads during combined sewer overflow (CSO) events in some combined catchments in Spain. *Ecological Engineering, 24*(3), 199-217.

Sui, Q., Huang, J., Deng, S., Yu, G., & Fan, Q. (2010). Occurrence and removal of pharmaceuticals, caffeine and DEET in wastewater treatment plants of Beijing, China. *Water Research, 44*(2), 417-426.

Tadeo, J. L., Sánchez-Brunete, C., Albero, B., García-Valcárcel, A. I., & Pérez, R. A. (2012). Analysis of emerging organic contaminants in environmental solid samples. *Central European Journal of Chemistry, 10*(3), 480-520. doi: 10.2478/s11532-011-0157-9

Tallon, P., Magajna, B., Lofranco, C., & Leung, K. T. (2005). Microbial indicators of faecal contamination in water: a current perspective. *Water, Air, and Soil Pollution, 166*(1-4), 139-166.

Teerlink, J., Hering, A. S., Higgins, C. P., & Drewes, J. E. (2012). Variability of trace organic chemical concentrations in raw wastewater at three distinct sewershed scales. *Water Research, 46*(10), 3261-3271. doi: 10.1016/j.watres.2012.03.018

Teledyne ISCO. (2011). *ISCO open channel flow measurement handbook* (D. K. Walkowiak Ed. 6ème ed.).

Ternes, T. A., Bonerz, M., & Schmidt, T. (2001). Determination of neutral pharmaceuticals in wastewater and rivers by liquid chromatography-electrospray tandem mass spectrometry. *Journal of Chromatography A, 938*(1-2), 175-185.

Ternes, T. A., Meisenheimer, M., McDowell, D., Sacher, F., Brauch, H.-J., Haist-Gulde, B., Preuss, G., Wilme, U., & Zulei-Seibert, N. (2002). Removal of pharmaceuticals during drinking water treatment. *Environmental Science and Technology, 36*(17), 3855-3863.

Terzic, S., Senta, I., Ahel, M., Gros, M., Petrovic, M., Barcelo, D., Müller, J., Knepper, T., Marti, I., Ventura, F., Jovancic, P., & Jabucar, D. (2008). Occurrence and fate of emerging wastewater contaminants in Western Balkan Region. *Science of the Total Environment, 399*(1-3), 66-77.

Thornton, R. C., & Saul, A. J. (1986). Some quality characteristics of combined sewer flows. *Public Health Engineering, 14*(3), 35-38.

Thornton, R. C., & Saul, A. J. (1987, August 31-Sept. 4, 1987). *Temporal variation of pollutants in two combined sewer systems.* Paper presented at the 4ème Conférence Internationale, Urban Storm Drainage, Lausanne, Suisse.

USEPA. (1996). Risk management research plan for weather flows (pp. 95). Washington, DC, USA: United States Environmental Protection Agency - Office of Research and Development.

USEPA. (1999). Combined sewer overflows guidance for monitoring and modeling (pp. 281). Washington, DC, USA: United States Environmental Protection Agency - Office of Water

USEPA. (2004). Report to Congress on impacts and control of combined sewer overflows and sanitary sewer overflows (pp. 795). Washington, DC, USA: United States Environmental Protection Agency - Office of Water.

USEPA. (2008a). National water program strategy: response to climate change (pp. 114). Washington D.C.: United States Environmental Protection Agency (USEPA) - Office of Water.

USEPA. (2008b). A screening sssessment of the potential impacts of climate change on combined sewer overflow mitigation in the Great Lakes and New England Regions *Global Change Research Program*. Washington D.C.: United States Environmental Protection Agency - National Center for Environmental Assessment & Office of Research and Development.

USEPA. (2010). Long term 2 enhanced surface water treatment rule toolbox guidance manual (pp. 380). Washington, DC, USA: United States Environmental Protection Agency - Office of Water.

USEPA. (2012). National water program 2012 strategy: response to climate change (pp. 132). Washington D.C.: United States Environmental Protection Agency (USEPA) - Office of Water.

Veenstra, S., Alaerts, G. J., & Bijlsma, M. (1997). Technology selection. In R. Helmer & I. Hespanhol (Eds.), *Water Pollution Control - A Guide to the Use of Water Quality Management Principles* (pp. 526): on behalf of United Nations Environment Program, the Water Supply & Sanitation Collaborative Council and the World Health Organization by E. & F. Spon.

Verbanck, M. (1995). Capturing and releasing settleable solids - the significance of dense undercurrents in combined sewer flows. *Water Science and Technology, 31*(7), 85-93.

Vieno, N. M., Tuhkanen, T., & Kronberg, L. (2005). Seasonal variation in the occurrence of pharmaceuticals in effluents from a sewage treatment plant and in the recipient water. *Environmental Science and Technology, 39*(21), 8220-8226.

Viglino, L., Aboulfadl, K., Daneshvar, A., Prévost, M., & Sauvé, S. (2008). On-line solid phase extraction and liquid chromatography/tandem mass spectrometry to quantify pharmaceuticals, pesticides and some metabolites in wastewaters, drinking, and surface waters. *Journal of Environmental Monitoring, 10*(4), 482-489.

Waller, D. H. (1969). Combined sewers in Canada. *Engineering Journal, 52*, 22-30.

Waller, D. H., & Novak, Z. (1980). Municipal pollutant loading to the great lakes from Ontario communities (pp. 40). Toronto, Canada: Ontario Ministry of Environment.

Wang, J., Wang, L., Wang, B., Zhang, J., & Zou, Q. (2006). Impact of suspended particles and enhancement techniques on ultraviolet disinfection of a secondary effluent. *Journal of Ocean University of China, 5*(4), 381-386. doi: 10.1007/s11802-006-0033-y

Wanielista, M. P., & Yousef, Y. A. (1993). *Stormwater management*: John Wiley and Sons, Inc.

Weyrauch, P., Matzinger, A., Pawlowsky-Reusing, E., Plume, S., von Seggern, D., Heinzmann, B., Schroeder, K., & Rouault, P. (2010). Contribution of combined sewer overflows to trace contaminant loads in urban streams. *Water Research, 44*(15), 4451-4462.

WHO. (2011). *Guidelines for drinking-water quality* (Fourth ed.). Geneva: World Health Organization.

Williams, C. F., Williams, C. E., & Adamsen, E. J. (2006). Sorption-desorption of carbamazepine from irrigated soils. *Journal of Environmental Quality, 35*(5), 1779-1783.

Williams, M., Ong, P. L., Williams, D. B., & Kookana, R. S. (2009). Estimating the sorption of pharmaceuticals based on their pharmacological distribution. *Environmental Toxicology and Chemistry, 28*(12), 2572-2579.

Williams, M., Saison, C. L., Williams, D. B., & Kookana, R. S. (2006). Can aquatic distribution of human pharmaceuticals be related to pharmacological data? *Chemosphere, 65*(11), 2253-2259. doi: 10.1016/j.chemosphere.2006.05.036

Wisconsin Department of Natural Resources. (2003). Source water assessment for Milwaukee waterworks (pp. 22). Milwaukee, Wisconsin, USA: Bureau of Drinking Water and Groundwater.

Wishart, D. S. (2012). *Open Data Drug and Drug Target Database*. Retrieved from: http://www.drugbank.ca/drugs

Wu, J., Yue, J., Hu, R., Yang, Z., & Zhang, L. (2008, August 2008). *Use of caffeine and human pharmaceutical compounds to identify sewage contamination.* Paper presented at the Proceedings of World Academy of Science, Engineering and Technology, Venice, Italy.

Wu, J. Y., Rees, P., Storrer, S., Alderisio, K., & Dorner, S. (2009). Fate and transport modeling of potential pathogens: the contribution from sediments. *Journal of the American Water Resources Association, 45*(1), 35-44. doi: 10.1111/j.1752-1688.2008.00287.x

Yamamoto, H., Nakamura, Y., Moriguchi, S., Nakamura, Y., Honda, Y., Tamura, I., Hirata, Y., Hayashi, A., & Sekizawa, J. (2009). Persistence and partitioning of eight selected pharmaceuticals in the aquatic environment: laboratory photolysis, biodegradation, and sorption experiments. *Water Research, 43*(2), 351-362.

Young, T. A., Heidler, J., Matos-Perez, C. R., Sapkota, A., Toler, T., Gibson, K. E., Schwab, K. J., & Halden, R. U. (2008). Ab initio and in situ comparison of caffeine, triclosan, and triclocarban as indicators of sewage-derived microbes in surface waters. *Environmental Science and Technology, 42*(9), 3335-3340.

Yu, C.-P., & Chu, K.-H. (2009). Occurrence of pharmaceuticals and personal care products along the West Prong Little Pigeon River in east Tennessee, USA. *Chemosphere, 75*(10), 1281-1286.

Zhang, T., Wu, B., Sun, N., Ye, Y., & Chen, H. (2013). Sorption and degradation of wastewater-associated pharmaceuticals and personal care products in agricultural soils and sediment. *Water Science and Technology, 68*(5), 991-998. doi: 10.2166/wst.2013.326

Zhou, J. L., Zhang, Z. L., Banks, E., Grover, D., & Jiang, J. Q. (2009). Pharmaceutical residues in wastewater treatment works effluents and their impact on receiving river water. *Journal of Hazardous Materials, 166*(2-3), 655-661.

ANNEXE 1 – SUPPLEMENTARY MATERIAL OF PUBLICATION #1

TEMPORAL VARIABILITY OF COMBINED SEWER OVERFLOW CONTAMINANTS: EVALUATION OF WASTEWATER MICROPOLLUTANTS AS TRACERS OF FECAL CONTAMINATION

Anne-Sophie Madoux-Humery, Sarah Dorner, Sébastien Sauvé, Khadija Aboulfadl, Martine Galarneau, Pierre Servais, Michèle Prévost

Water Research, 47 (2013), 4370-4382

Number of pages: 18

Number of tables: 2

Number of figures: 5

I. Material and Methods

1. Sampling preservation

2. Stormwater proportion calculations

II. Characterization of CSO hydrographs

Figure S1: Variations of flow rate (black line) and precipitations (grey series) over time in various seasons: A. OA event in fall, A2; B. OA event in snowmelt period, A5; C. OA event in summer, A7; D. OB event in summer, B1. Information on events are presented in Table 1

III. Supplementary Tables

Table S1: Concentrations of microbiological parameters observed in CSOs (min-max values (median, mean or EMC)) and reported in the literature

Table S2: Concentrations (in µg/L) of caffeine (CAF), carbamazepine (CBZ) and acetaminophen (ACE) measured in influents of wastewater treatment plants and reported in the literature (min-max, median or mean value)

IV. Supplementary Figures

Figure S2: Map of the study area

Figure S3: Schematic representation of the overflow A (OA): A. profile view; B. plan view

Figure S4: Schematic representation of the overflow B (OB) (profile view)

Figure S5: Monthly frequency of CSO events expressed as the ratio of all monthly events versus all events (2007-2011) (CSO frequency data were provided by the Ministry of Municipal Affairs, Regions and Land Occupancy)

I. Material and Methods

1. Samples preservation

Once recovered, samples were stored in the dark at 4°C until analyses were performed. Preliminary tests to assess the preservation of samples within the autosampler were performed at a temperature of 21˚C and demonstrated that no significant regrowth of *E. coli* or biodegradation of the measured physico-chemical compounds and WWMPs occurred within the sewer chamber over a period of 24 hours. Microbiological analyses and pre-treatment of samples for WWMPs were performed within 18 hours following sample collection. For WWMP conservation, a sample volume of 40 mL was filtered through 0.45 µm pore size mixed cellulose membranes (Milllipore, MA, USA) in pre-cleaned glass bottles (12 hour-washing in 25% HCl solution followed by 4 hours in oven at 500°C), and pH was adjusted to 2.8 by adding a solution of formic acid (purity 98%) (Fluka Analytical, SIGMA-ALDRICH, Oakville, ON, CA) to avoid degradation of the compounds. For Total Kjeldahl Nitrogen (TKN), Total Suspended Solids (TSS), Volatile Solids (VS), Total Phosphorus (TP) and Total Organic Carbon (TOC), a sample volume of 500 mL was kept in pre-cleaned (15 minute-washing with a solution of 25% of HCl (ON, CA)) polypropylene (PP) bottles. WWMP and physico-chemical compounds analyses were performed within 3 weeks after sampling except for TSS and VS which were analyzed within 48 hours (Aboulfadl et al., 2010; American Public Health Association (APHA) et al., 2012).

2. Calculation of the proportion of stormwater

The proportion of stormwater in CSO waters could be determined for each CSO samples with the following equations:

$x_{storm} \times C_{storm} + x_{dry} \times C_{dry} = C_{CSO}$ (eq. 1)

$x_{storm} + x_{dry} = 1$ (eq. 2)

$x_{storm} = \frac{C_{CSO} - C_{dry}}{C_{storm} - C_{dry}}$ (eq. 3)

where C_{CSO} corresponds to the concentration measured in CSO samples; x_{storm} and x_{dry} to the fraction of stormwater and raw sewage in dry weather conditions, respectively and C_{strom} and C_{dry} to the concentration of stormwater and raw sewage in dry weather conditions, respectively.

The dilution factor was calculated for one event for each analyzed compound (*E. coli*, TSS, CAF, CBZ, ACE and THEO) as well as for conductivity (Table A1- 1). The calculation of the stormwater proportion was performed by using (1) equation #3 and (2) the methodology developed by Passerat et al. (2011). Results presented in the table below were calculated for event A9 based on the assumption that C_{storm} was zero.

Table A1- 1 : Dilution factor

Sampling time	Dilution factor (calculated with eq.3)							Dilution factor estimated with the methodology presented in Passerat et al. (2011)
	E. coli	CAF	CBZ	ACE	THEO	TSS	Conductivity	
2	0.00	-0.42	0.06	0.52	0.05	-.034	0.46	0.60
6	0.29	0.55	0.53	0.87	0.68	-1.28	0.66	0.82
11	0.88	0.85	0.78	0.95	0.87	-.063	0.84	1.00
16	0.81	0.80	0.84	0.96	0.90	-0.42	0.89	1.00
21	0.84	0.89	0.79	0.93	0.91	-0.01	0.88	1.00
26	0.90	0.90	0.87	0.92	0.86	0.18	0.87	1.00
31	0.93	0.88	0.93	0.88	0.87	0.33	0.89	1.00
32	0.90	0.88	0.92	0.88	0.82	0.32	0.87	1.00
36	0.88	0.88	0.90	0.91	0.85	0.33	0.85	1.00
66	0.85	0.87	0.79	0.90	0.83	0.11	0.93	1.00
96	0.76	0.93	0.80	0.90	0.87	-0.04	0.62	0.77
126	0.88	0.92	0.78	0.83	0.82	0.37	0.46	0.60

Conductivity gave the best results but, unfortunately, this parameter could not be used in snowmelt conditions because of the intermittent use of de-icing agents with higher conductivity.

Reported *E. coli* concentrations in stormwater typically range over 3 orders of magnitude and TSS concentrations from 1 to 10,000 mg/L (Makepeace et al., 1995). Thus, it is not possible to pose a stormwater concentration (C_{storm}) and these parameters could not be used for calculation.

The four WWMPs were also tested. CAF and THEO could be present in litter (drink bottles and cups, cigarette butts, etc), and thus in surface runoff. CBZ and ACE appeared to be the best WWMP tracers and thus, CBZ was chosen because: (1) it should not be present in runoff waters, (2) it is well-known to be a persistent and stable substance, and (3) it has already been recommended as a tracer of wastewaters (Gasser et al., 2011; Kunkel & Radke, 2012).

II. Characterization of CSO hydrographs

CSO flow rates, which result from the fraction of discharge which exceeds the sewer transport and control structure capacity, are expected to be a function of precipitation intensity and duration, population served, surface area and land use. CSO events sampled at OA were performed for one year during fall, spring snowmelt and summer. For sampled events, total precipitation ranged from 3.8 to 37.2 mm (including the spring snowmelt event with precipitation falling as rain) and events lasted between 89 and 958 minutes. OB events were monitored only during the summer and lasted 6 and 220 minutes and were respectively the result of 11.3 and 36.8 mm of precipitation. The average amount of precipitation for all events (including events not sampled) in 2009 and 2010 was 2.97 mm with a maximum of 64.4 mm and were representative of typical precipitation patterns in the region of Montreal. Sampled events were not characteristic of infrequent, high intensity precipitation (historical return periods ranged from 0.16 to 5.48 years) (Brière, 2006). In this region, increases in the frequency of intense events and overall precipitation depth are anticipated as a result of climate change (Mailhot et al., 2007) and climate change is expected to increase the occurrence of CSO events (Patz et al., 2008).

The fluctuations of flowrate and precipitation are presented for 3 representative events for OA in the fall, spring snowmelt, and summer and for 1 event for OB in summer (Figure A1-1). The shape

of hydrographs, the monitored flow rates and total volumes varied widely from one event to another, as expected, and were generally related to the different snowmelt and precipitation patterns, including for the snowmelt events. CSO volume at OA was significantly correlated to cumulative precipitation depth (r^2=0.874, p=0.002) and for both outfalls, CSO volume relative to sewershed drainage area was significantly correlated to cumulative precipitation depth (r^2=0.395, p=0.004).

The duration of the A5 event is high (13 hours) (Table A1-1) despite a low total cumulative precipitation of only 14.3 mm. The long duration is explained by the season of the event that occurred during spring snowmelt. Snow management practices involve removing snow from city streets and transporting it to snow disposal facilities. As there is systematic snow removal in both studied sewersheds, snowmelt resulted from off-road snow accumulation over the course of the winter. Consequently progressive snowmelt increases baseline flowrate during the entire spring period and constitutes an understudied cause of CSOs, particularly as there are fewer restrictions on discharges during this period (as described in the manuscript in section III.2.2. Seasonal fluctuations).

Precipitation events in summer were generally of short duration, but were intense (events A7 and A9) and resulted in hydrographs with several peaks in direct relation to rapid changes in rainfall intensity. The average and peak flow rates as well as the total volume discharged in summer are among the highest measured. Events A7 and B1 (Figure A1-1C and 1D) were monitored the same day for outfalls OA and OB respectively during intense thunderstorms with cumulative precipitations exceeding 30 mm. The hydrographs for these overflows have similar shapes but the average flowrate measured for OB was 117 times lower than for OA. Furthermore, the total volume discharged by O-A (A7) was almost 20 000 m^3 whereas the overflow for OB (B1) was only 52.5 m^3 for a duration that was 3 times lower. The differences between the two overflows can be explained by the differences in the drainage area of the sewersheds (OA’s is 27 times larger than OB’s), the control structure that regulates the ratio of the intercepted flowrate versus the total incoming flow, and the spatial variability of precipitation patterns.

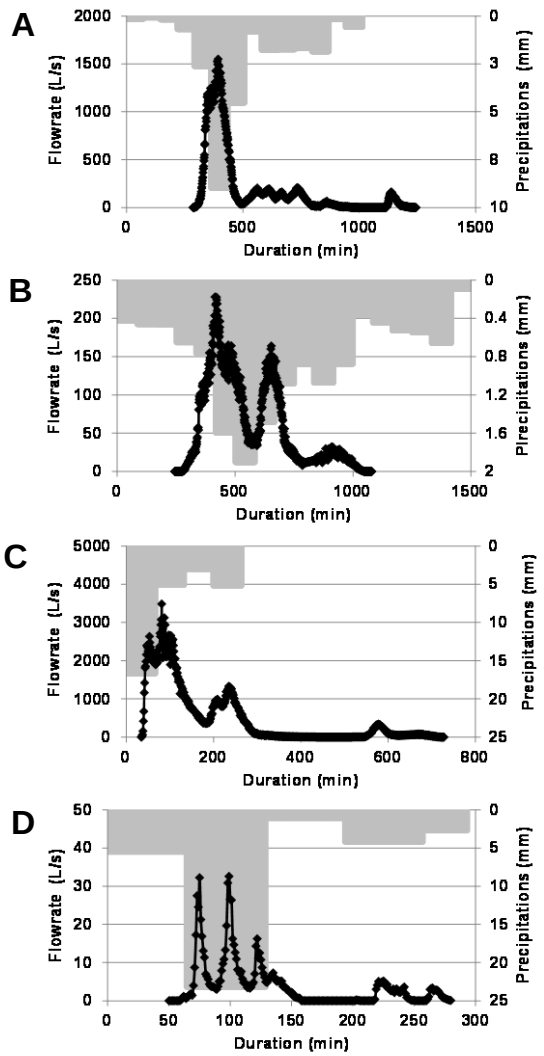

Figure A1-1: Variations of flow rate (black line) and precipitations (grey series) over time in various seasons: A. OA event in fall, A2; B. OA event in snowmelt period, A5; C. OA event in summer, A7; D. OB event in summer, B1.

Information on events are presented in Table 4.1

III. Supplementary Tables

Table A1-2 : Microbiological parameters concentrations observed in CSOs (min-max values (median, mean or EMC))

Country	Kind of pipe	Type of sampling	Number of samples	Frequency	FC (CFU or MPN/100 mL)	*E. coli* (CFU or MPN/100 mL)	Entero (CFU or MPN/100 mL)	*Crypto* (oocysts/100L)	*Giardia* (cysts/100L)	Other (CFU/100 mL unless otherwise specified)	References
USA	CSO	NR	V	NR	$3\text{-}4\times10^{7}$ (2.15×10^{5})[c] (n=603)						USEPA (2004)
	SSO	NR	V	NR	(5.10^{5})[c]						
USA	CSO	G-C	3O 5S	5				$0\text{-}3\times10^{3}$ (2×10^{3})[b] (80%)	$3.7\times10^{3}\text{-}1.1\times10^{5}$ (2.8×10^{4})[b] (100%)		States et al. (1997)
USA	CSO	G	1O 2-3S	5	$3\times10^{3}\text{-}8.5\times10^{4}$ (2.7×10^{4})[b] (100%)			$250\text{-}4\times10^{4}$ (6036)[b] (100%)	$9\times10^{3}\text{-}283\times10^{3}$ (35,402)[b] (100%)		Gibson III et al. (1998)
USA	CSO	C	3O 1S	2	$3.4\times10^{4}\text{-}4.3\times10^{5}$ (10^{5})[b]	$900\text{-}7\times10^{4}$ (2×10^{4})[b]	$1.1\times10^{4}\text{-}3.10^{5}$ ($3.6.10^{4}$)[b]	59-100 (85)[b] (12%)	200-30,000 (3,700)[b] (96%)		Arnone and Walling (2006)
USA	CSO	G	1O 4S	2	$6.6\times10^{3}\text{-}2\times10^{5}$ (9.6×10^{4})[a]						Bailey (2007)
USA	CSO	G	1O 1S	1	$>3\times10^{4}$	positive	$>3\times10^{4}$	nd	1.86×10^{5}	S: $>3\times10^{4}$ Cf: 3 000 Ai: 5 000 Ac:8 000	Donovan et al. (2008)
USA	CSO	G	NR	NR	7.3×10^{5}[a] (n=59)	1.4×10^{5}[a] (n=53)		nd			Soonthornnondna and Christensen (2008)
USA	RT	G	6S	6						AV : 6×10^{4} - 10^{6} virus/L (5.35×10^{5})[b] (100%)	Fong et al. (2010)
USA	CSO	NR	NR	NR	10^{6}*						Waller and Novak (1980)

Table A1-2 : Microbiological parameters concentrations observed in CSOs (min-max values (median, mean or EMC)) (continued)

Country	Kind of pipe	Type of sampling	Number of samples	Frequency	FC (CFU or MPN/100 mL)	*E. coli* (CFU or MPN/100 mL)	Entero (CFU or MPN/100 mL)	*Crypto* (oocysts/100L)	*Giardia* (cysts/100L)	Other (CFU/100 mL unless otherwise specified)	References
CA	CSO	NR	NR	NR	3.9×10^{5}*						Chambers et al. (1997)
CA	CSO	NR	NR	NR	1.5×10^{6a}	9.7×10^{5a}				FS: 1.3×10^{5a} CO: 3185^{a}	Marsalek et al. (1994)
CA	CSO	NR	NR	NR		2.8×10^{4}-1.1×10^{6}					Marsalek et al. (1996)
CA	CSO	NR	NR	NR		1.4×10^{6a}					Marsalek and Rochfort (2004)
KR	CSO	G	55S	NR	8.0×10^{4}-14.8×10^{6} (5.7×10^{5})^{a}	4.0×10^{4}-1.15×10^{6} (3.9×10^{5})^{a}					Kim et al. (2005)
UK	CSO	NR	NR	NR		10^{5}-10^{8}*					Ellis (1989)
FR	CSO	C	1O 12S	1		3.8×10^{5}-6.4×10^{6} (1.5×10^{6})^{a} (77% attached to TSS)	1.2×10^{5}-1.2×10^{6} (4.0×10^{5})^{a}				Passerat et al. (2011)

Country: USA: United States of America; CA: Canada; KR: South Korea; UK: United Kingdom; NL: The Netherlands; DE: Germany; FR: France, ES: Spain

Kind of pipe: CSO: combined sewer overflow; SSO: sanitary sewer overflow; RB: CSO retention basin

Kind of sampling: G: grab, C: composite / Number of samples: V: variable / Number of samples: O: outfall, S: samples, EV: event; P: point

Parameters: FC: fecal coliform; Entero: *Enterococcus*; Crypto: *Cryptosporidium*; AV: adenoviruses; Cf: *Citrobacter freundii*; Ai: *Aeromonas ichtiosmia*; Ac: *Actinomycetes*; FS: Fecal Streptococci; CO: coliphage

Concentrations: min-max; a: arithmetic mean; b: geometric mean; c: median; d: EMC; e: maximum; *: MPN/100 mL

NR: non reported, nd: non detected

Table A1- 4 : Concentrations (in µg/L) of caffeine (CAF), carbamazepine (CBZ) and acetaminophen (ACE) measured in influents of wastewater treatment plants and reported in the literature (min-max, median or mean value)

Country	Number of WWTP influent sampled	Monitoring : Frequency (F)/ Number of samples (S)	Kind of sampling	CAF	CBZ	ACE	References
USA	1	NR	NR	0.63			Yu and Chu (2009)
USA	1	NR	26hHGS	107.7[a]			Teerlink et al. (2012)
CA	14	NR	C (24h)		0.7[c] 1.9[e]		Metcalfe et al. (2003)
CA	1	F:1	24hFPC		0.356 ±0.006[a] 0.369 ±0.005 [a]		Miao and Metcalfe (2003), Miao et al. (2005)
CA	2	NR	G	32.89[a] 47.03[e]	0.25[a] 0.62[e]		Daneshvar et al. (2012)
CN	4	F:1	G	3.4-6.6			Sui et al. (2010)
ROK	3	S:12	G	9.75-36.86 22.9[a]	0.0025-0.45 0.15[a]	13.05-56.94 27.1[a]	Choi et al. (2008)
ES	3	S:8	24hFPC		0.570-0.710 1[e]		Jelic et al. (2011)
ES	2	F:5	NR	0.420-40.12	0.060-0.480		Pedrouzo et al. (2007)
ES	4	NR	24hFPC	0.22-11.44 2.805[a]	<LOD-2.15 0.31[a]		Santos et al. (2007)
ES	5	2 years	C (24h)	0.019- 18.17 (0.215 – 5.52)[a]	0.014 - 1.59 (0.085 - 0.274)[a]	0.003 - 4.234 (0.027-0.282)[a]	Martínez-Bueno et al. (2012)
WB	19	24 S	24hFPC C (24h)		0.120-1.55 0.419[a]		Terzic et al. (2008)

Table A1- 4 : Concentrations (in µg/L) of caffeine (CAF), carbamazepine (CBZ) and acetaminophen (ACE) measured in influents of wastewater treatment plants and reported in the literature (min-max, median or mean value) (continued)

Country	Number of WWTP influent sampled	Monitoring : Frequency (F)/ Number of samples (S)	Kind of sampling	CAF	CBZ	ACE	References
CH	13	16 S	C (24h)	7-73			Buerge et al. (2003)
UK	3	1 week	NR		1.24-1.83		Zhou et al. (2009)
DE	1	F:5	24hFPC	147 ±76[a]			Ternes et al. (2001)
DE	NR	NR	C (24h)	230[a] 640[e]	1.78[a] 3.8 [e]		Heberer (2002)
FR	21	32 S	24hFPC	4[a] 4[c]		178.7 [a] 200[c]	Soulier et al. (2011), Martin Ruel et al. (2012)

Country: USA: United States of America; CA: Canada; CN: Switzerland; ROK: Republic of Korea; ES: Spain; WB: Region of Western Balkan (Bosnia and Herzegovina, Croatia and Serbia; CH:; UK: United Kingdom; DE: Germany; FR: France
Kind of sampling: G: grab; C: composite; HGS: Hourly Grab Sampling; FPC: Flow Proportional Composite
Concentrations: min-max; a: arithmetic mean; b: geometric mean; c: median; d: EMC; e: maximum

NR: non reported

Concentration variations reported in the literature (Table A1-2) demonstrated a wide range as expected because of the variety of analytical methods and sampling strategies. For example, different types of sampling methods (grab versus composite versus flow proportional composite), different sampling frequencies and duration were applied (Miège et al. (2009) and Table A1-2). It is clear that the sampling type, frequency and duration can all have an impact on contaminant concentrations as was also discussed by Ort et al. (2010). Sampling strategies should reflect the objectives of the study. In our case, to improve our understanding of the dynamics of contaminants concentrations rather than obtaining representative mean concentrations, it was desirable to obtain the full range of concentrations, compatible with random grab sampling. Mean CAF and ACE concentrations of this study were lower than those reported in table A1-2, approximately up to a factor of 4 for SA and 85 for SB. Mean CBZ concentrations were similar to those measured in Canada by Daneshvar et al. (2012) but were significantly lower than those presented by Choi et al. (2008). THEO levels observed in SA and SB were in agreement with the concentrations reported by Martin-Ruel et al. (2012). Our CAF and CBZ ranges of concentrations fall directly within the ranges reported by Martínez-Bueno et al. (2012).

IV. Supplementary Figures

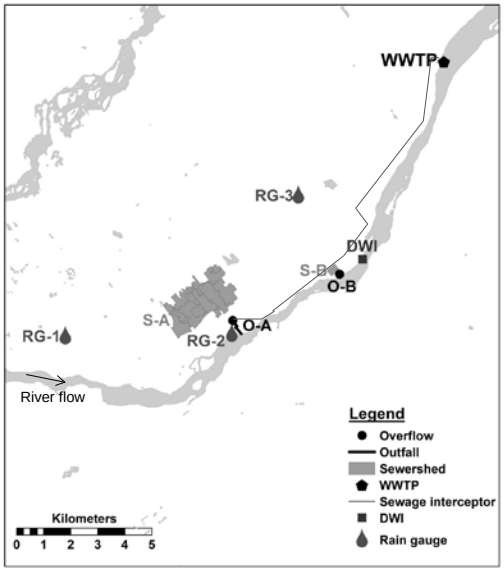

Figure A1-2 : Map of the study area

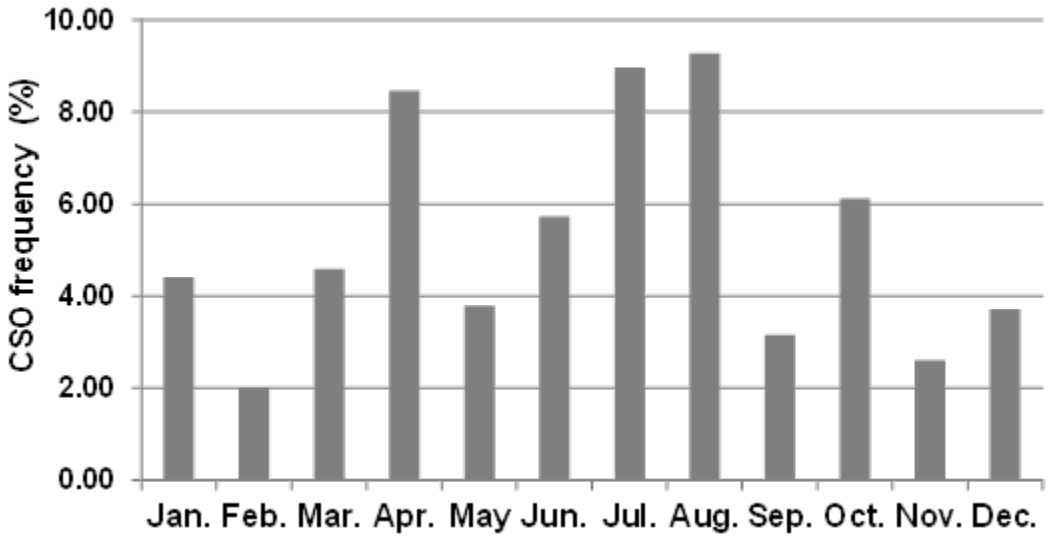

Figure A1-3 : Monthly frequency of CSO events expressed as the ratio of all monthly events versus all events (2007-2011) (CSO frequency data were provided by the Ministry of Municipal Affairs, Regions and Land Occupancy)

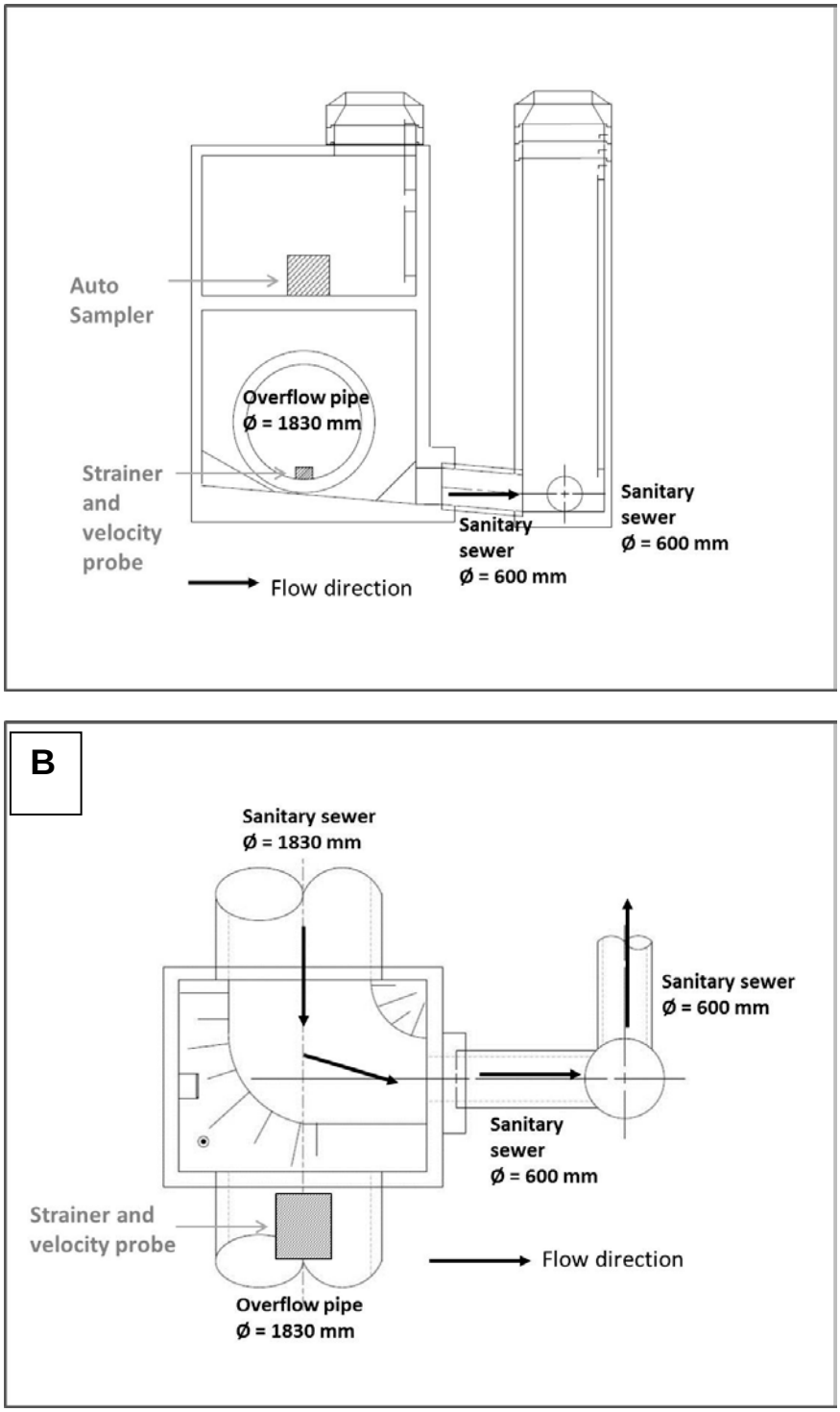

Figure A1-4 : Schematic representation of the overflow A (OA): A. profile view; B. plan view

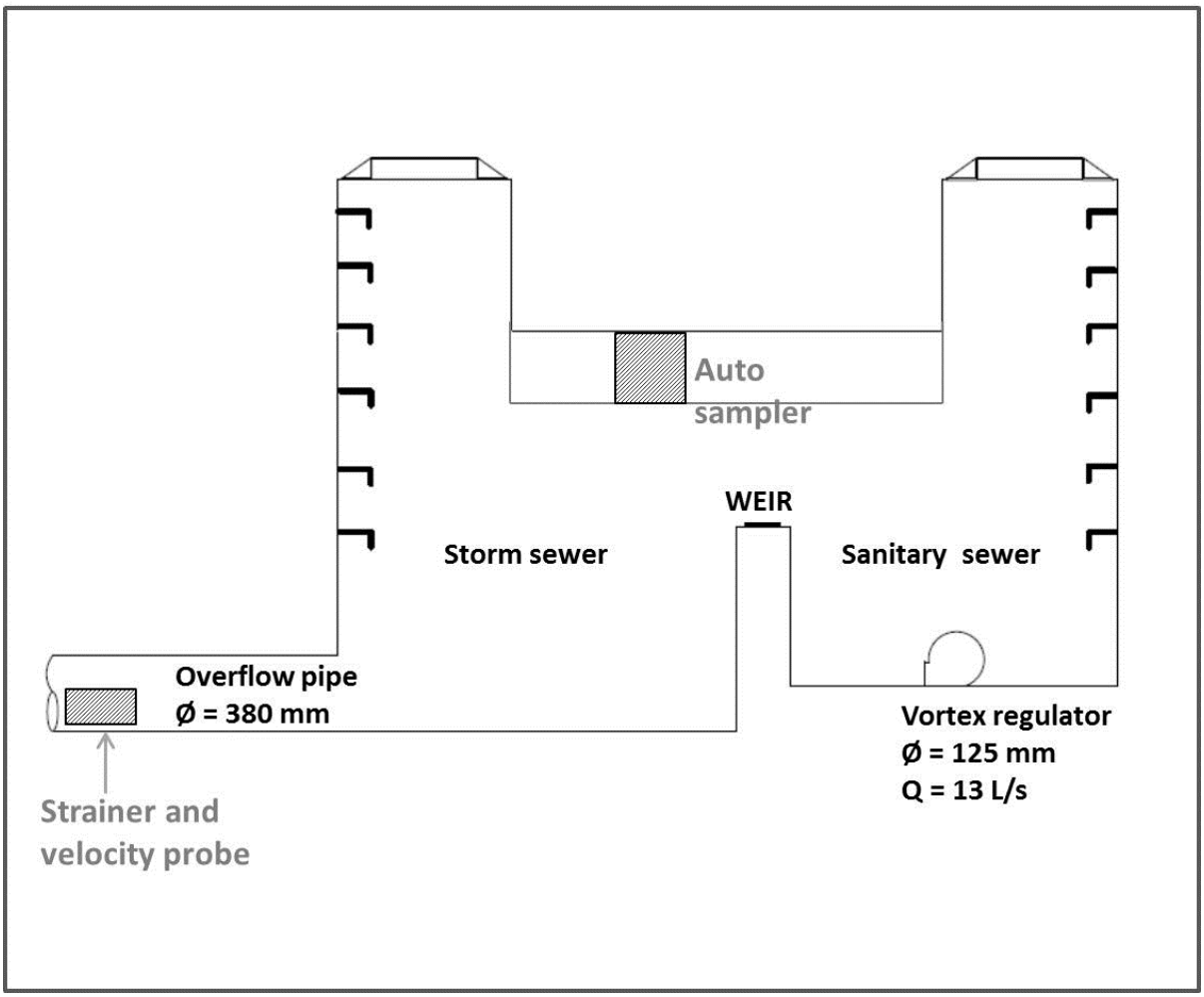

Figure A1-5 : Schematic representation of the overflow B (OB) (profile view)

ANNEXE 2 - SUPPLEMENTARY MATERIAL OF PUBLICATION #2

TEMPORAL ANALYSIS OF *E. COLI*, TSS AND WASTEWATER MICROPOLLUTANT LOADS FROM COMBINED SEWER OVERFLOWS: IMPLICATIONS FOR MANAGEMENT

Madoux-Humery Anne-Sophie, Sarah M. Dorner, Sébastien Sauvé, Khadija Aboulfadl, Martine Galarneau, Pierre Servais, Michèle Prévost

Environmental Science : Processes and Impacts

Supplementary Information (SI):

Number of pages: 6

Number of figures: 4

Number of tables: 1

Figures

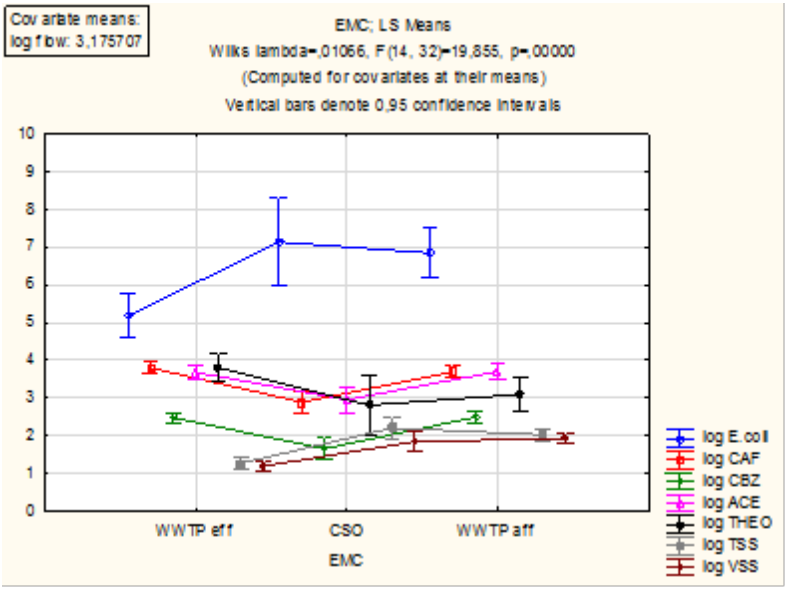

Figure A2-1 : Responses vs EMC at the mean of Log Flow

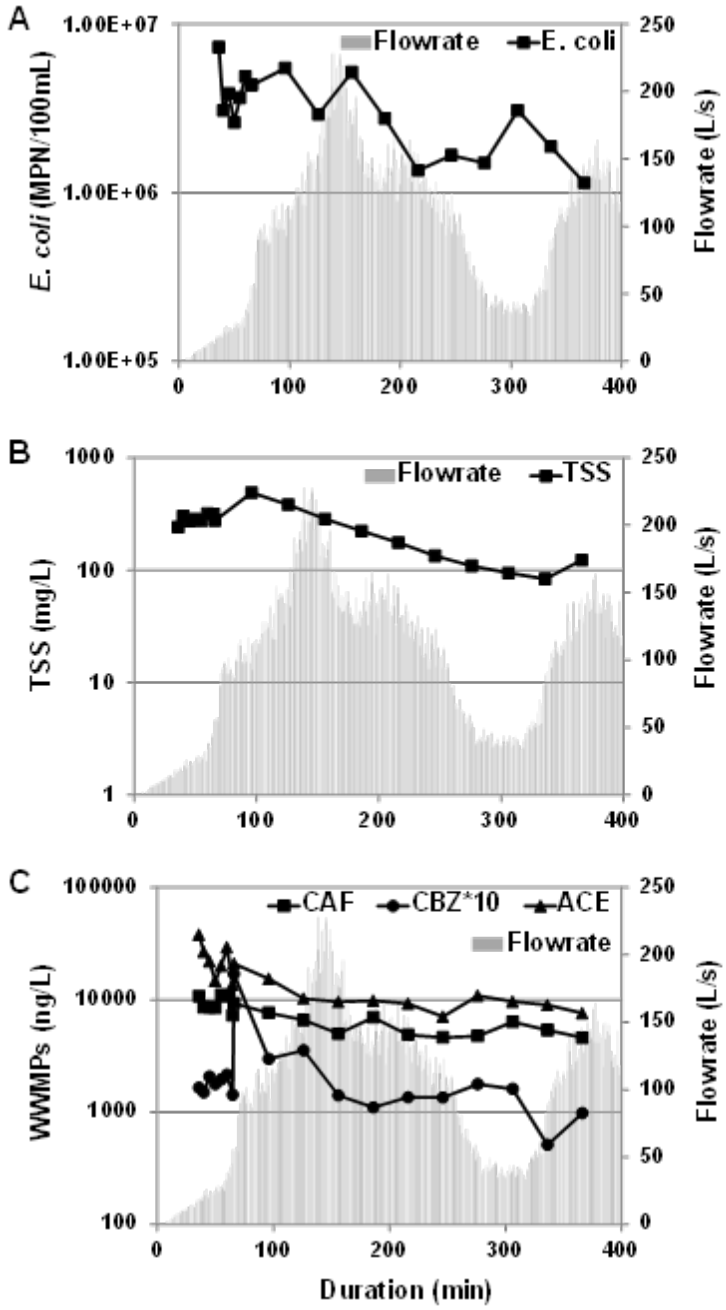

Figure A2-2 : Concentrations of pollutants and fluctuations of the flowrate during an overflow event in snowmelt (#1). (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF, CBZ and ACE.

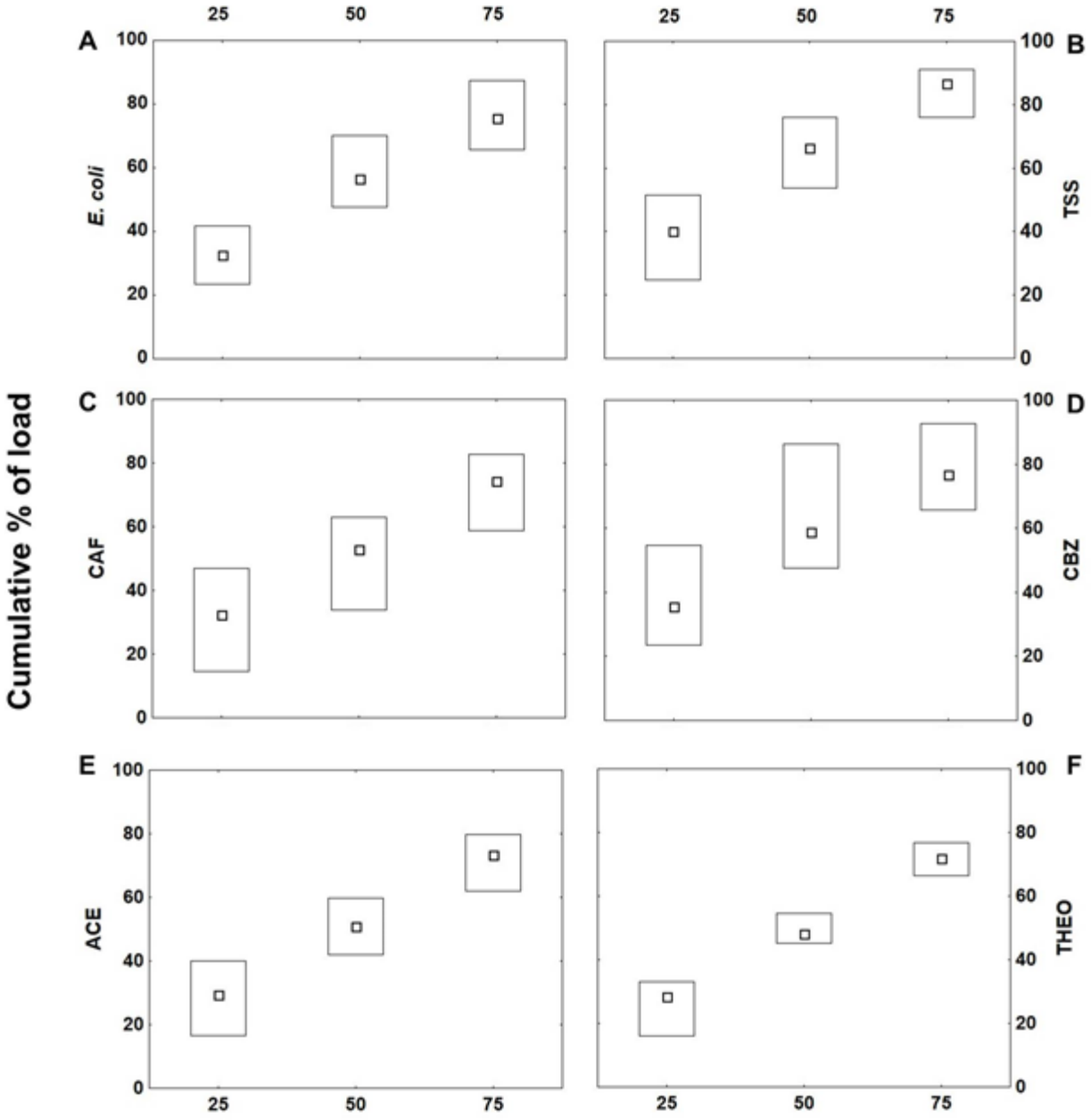

Figure A2-3: Cumulative percentage of load discharged versus cumulative fraction of discharged volume. (A) E. coli, (B) TSS (C) CAF, (D) CBZ, (E) ACE, (F) THEO.

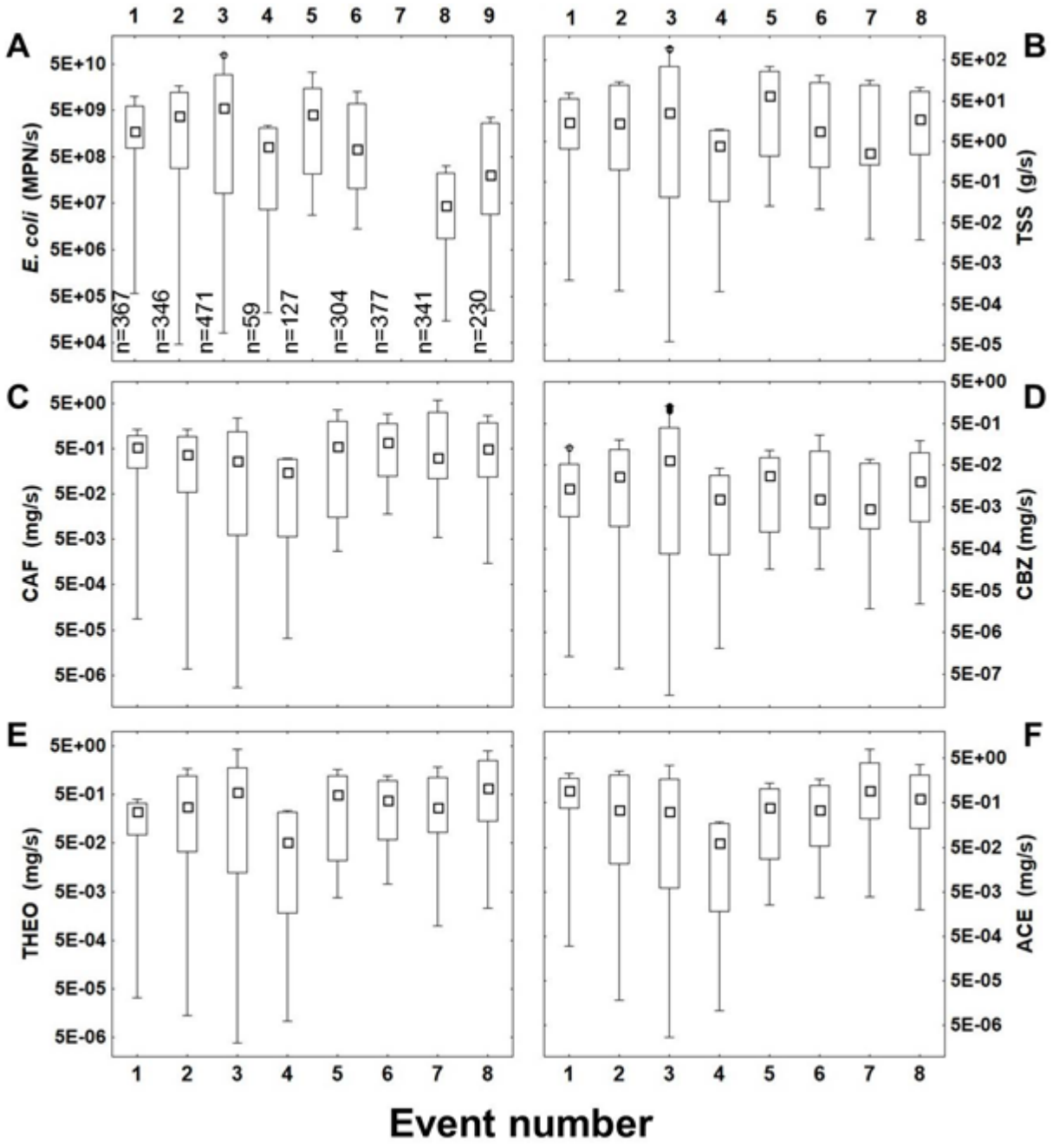

Figure A2-4 : Box-plots of pollutant loads measured in CSOs for different events. (A) *E. coli*, (B) TSS, (C) CAF; (D): CBZ; (E) THEO, (F) ACE. The number of interpolated values (n) is indicated in box A

Tables

Table A2-1 : Impact of EMC on each of the responses

effect	df	Log*E. coli* p	logCAF p	logCBZ p	logACE p	logTHEO p	logTSS p
intercept	1	**0,000453**	**0,000000**	**0,000000**	**0,000000**	**0,000083**	**0,000012**
Log flow	1	0,931557	**0,000261**	**0,000027**	**0,003144**	0,117484	0,583767
EMC	2	**0,000083**	**0,000637**	**0,000496**	**0,012668**	**0,007178**	**0,000000**
Error	22						
Total	25						

Significant responses are in bold font

In all cases the EMC factor has a highly significant impact on each of the responses.

ANNEXE 3 - SUPPLEMENTARY MATERIAL OF PUBLICATION #3

THE EFFECTS OF COMBINED SEWER OVERFLOW EVENTS ON RIVERINE SOURCES OF DRINKING WATER

Anne-Sophie Madoux-Humery, Sarah M. Dorner, Sébastien Sauvé, Khadija Aboulfadl, Martine Galarneau, Pierre Servais, Michèle Prévost

Supplementary Information (SI)

Number of pages: 4

Number of figures: 4

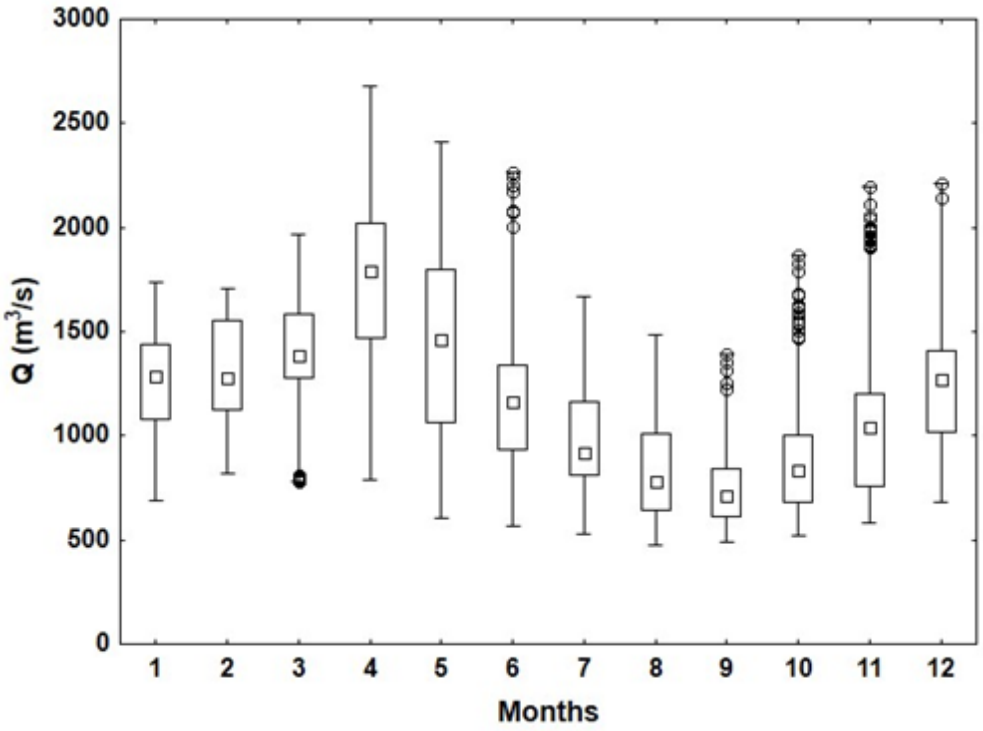

Figure A3-1 : River monthly flowrate data from 2002 to 2011. Box-plots show the 25th and the 75th percentile (box), median values (squares in the box), outliers (circles) and whiskers correspond to the minimum and maximum values.

Because of ice cover at the monitoring station, flowrate values were not available from December 9th 2009 to March 15th 2010 and from December 12th 2010 to April 10th 2011. Regressions were performed for each year in order to interpolate missing flowrate data for sampling days.

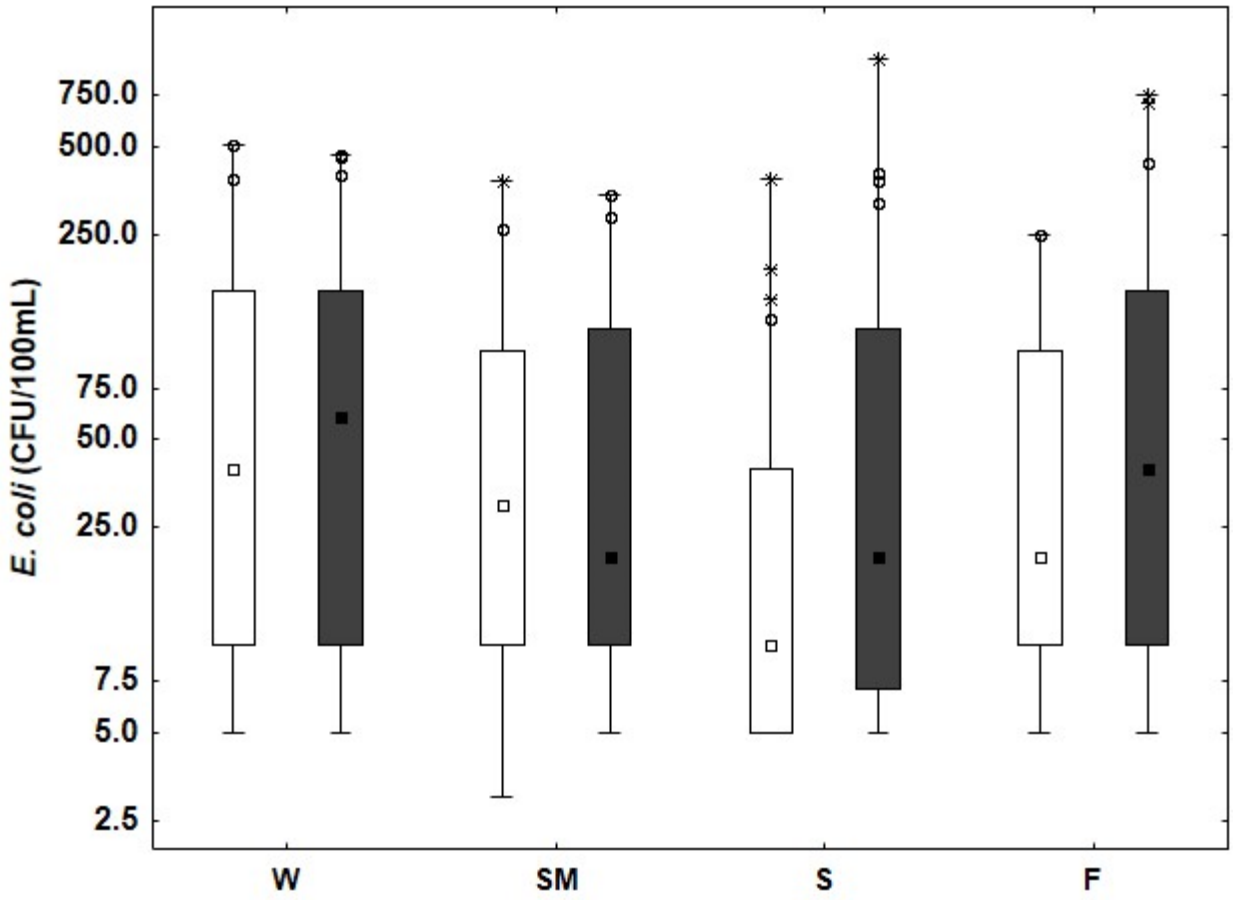

Figure A3-2 : Box plots of *E. coli* concentrations (in log scale) measured at DWI-1 (in white) and DWI-2 (in grey) during different seasons (W: winter, SM: snowmelt, S: summer and F: fall)

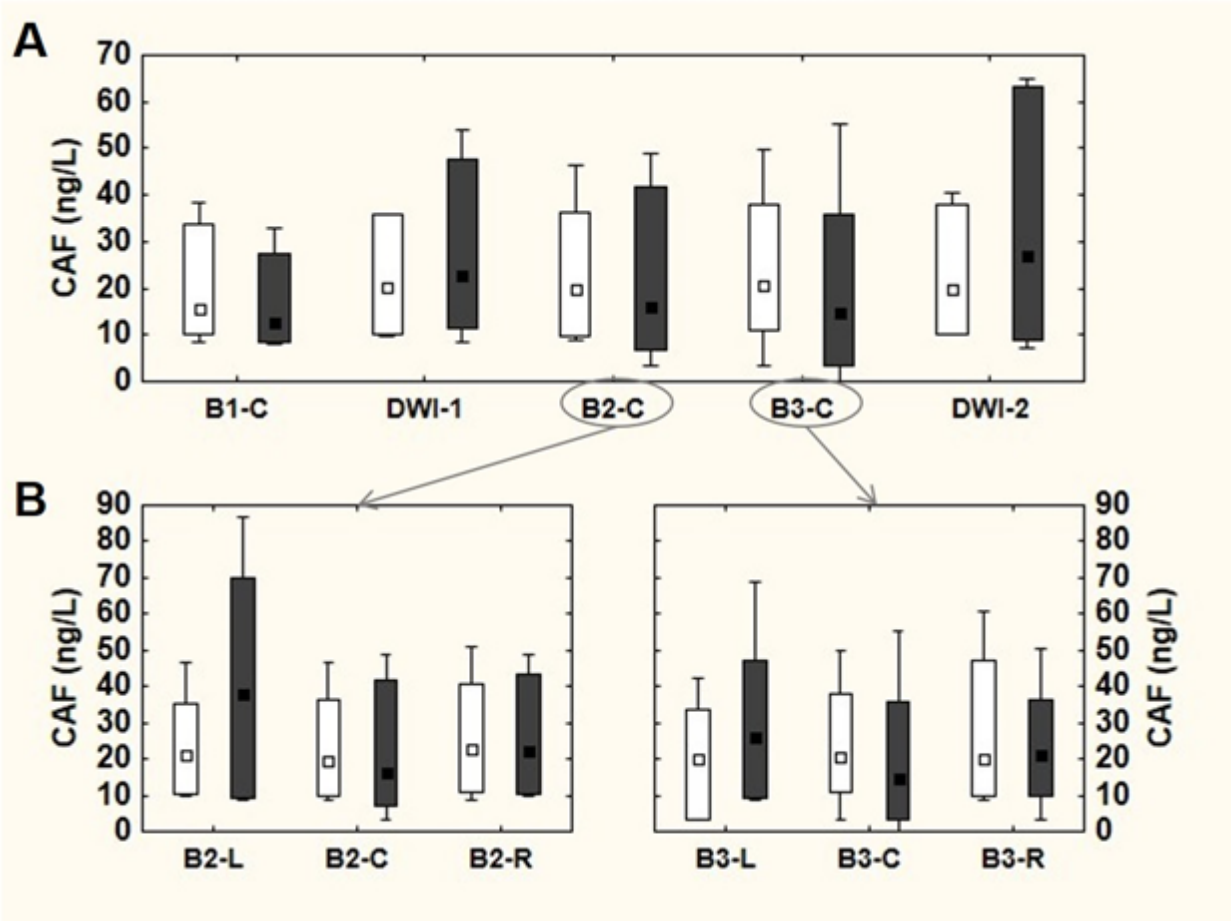

Figure A3-3: Box-plots of CAF concentrations during dry weather (white) and wet weather (dark grey). A. Longitudinal profiles in the river center at B1-C, DWI-1, B2-C, B3-C and DWI-2. B. Transversal profiles at bridges B2 (B2-L, B2-C, B2-R) and B3 (B3-L, B3-C, B3-R)

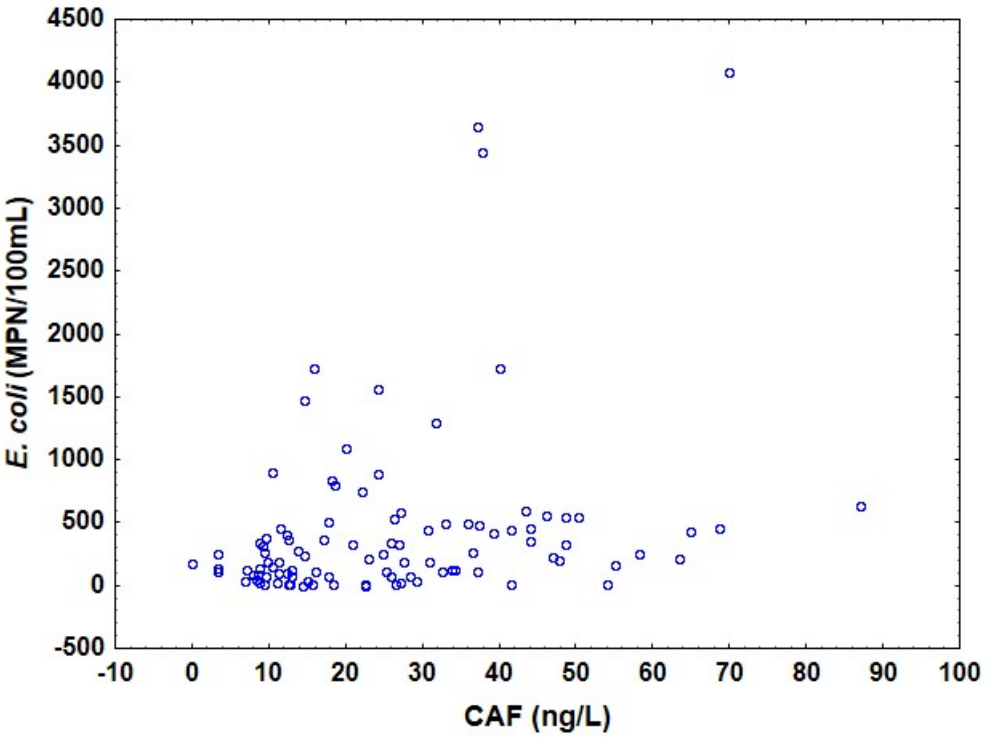

Figure A3- 4 : *E. coli* and CAF concentrations measured during the bi-monthly monitoring in the river, in wet-weather