POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

Performance hydraulique et traitement du filtre réactif dans les systèmes de traitement des eaux usées décentralisés

AMIN TABATABAEEFAR

Département des génies civil, géologique et des mines

Thèse présentée en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*

Génie civil

Août 2024

© Amin Tabatabaeefar, 2024.

POLYTECHNIQUE MONTRÉAL

affiliée à l'Université de Montréal

Cette thèse intitulée :

Performance hydraulique et traitement du filtre réactif dans les systèmes de traitement des eaux usées décentralisés

thèse présentée par **Amin TABATABAEEFAR**

en vue de l'obtention du diplôme de *Philosophiæ Doctor*

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

Sarah DORNER, présidente

Dominique CLAVEAU-MALLET, membre et directrice de recherche

Chad J. PENN, membre et codirecteur de recherche

Émilie BÉDARD, membre

Carmen Mihaela NECULITA, membre externe

DÉDICACE

Premièrement, à ma chère famille,

Après, à ma chère épouse pour son soutien constant dans les bons et les mauvais jours,

Dominique qui n'était pas juste une superviseure, une amie pendant quatre ans d'études,

Chad Penn for his guides and comments during the project,

and last, all of my friends à la Université de Montréal for beautiful moments we had together,

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma gratitude à Dominique Claveau-Mallet et Chad Penn pour leur soutien tout au long de mon parcours de doctorat. Leurs conseils ont été inestimables pour le succès de ce projet.

Je remercie sincèrement les techniciens de Polytechnique Montréal, y compris Gabriel St-Jean, Mélanie Bolduc et Alexandra Bonenfant-Tardif, pour leur assistance dans la préparation de l'installation, les analyses et les mesures, ainsi que pour leur soutien technique pendant ce projet.

Cette recherche a été financée par la Chaire de recherche du Canada en traitement décentralisé et à petite échelle de l'eau (numéro de dossier 950-232871). Je tiens à remercier Fayolle Canada pour la bourse reçue et à remercier la Fondation et Alumni de Polytechnique Montréal ainsi que Polytechnique Montréal pour leur travail. Nous apprécions Bionest, l'entreprise partenaire, qui a fourni les scories de FAE pour le projet.

RÉSUMÉ

Il y a une préoccupation importante concernant le rejet des eaux usées domestiques dans les eaux de surface et les eaux souterraines, notamment dans les zones non raccordées aux installations d'assainissement centralisées. Le phosphore et l'azote, qui sont des nutriments clés, sont de grands contributeurs à l'eutrophisation.

Dans le Chapitre 2, les systèmes de traitement sur site sont évalués, soulignant l'importance du traitement tertiaire dans leurs processus. Les filtres réactifs montrent un potentiel prometteur en tant qu'unités de traitement tertiaire pour les systèmes sur site, offrant une élimination efficace des polluants.

Dans chapitre 3, trois filtres réactifs à base de scories d'aciérie ont été alimentés avec des effluents domestiques secondaires contenant des bicarbonates (column 1-blank), des bicarbonates avec du carbone organique soluble (column 3-organic matter) et des bicarbonates avec des matières particulaires (column 2-TSS) sur une période de 30 jours. Les échantillons d'eau ont été analysés pour les concentrations en nutriments et en métaux, l'alcalinité et le pH, tandis que les scories d'aciérie sont été examinés par microscopie électronique à balayage. La précipitation de la calcite a épuisé les scories d'aciérie sans provoquer d'accumulation de pression. L'indice de saturation et la forme des précipités de calcite ont été influencés par la présence de carbone organique. Les principales réactions étaient la formation de calcite, la libération d'hydroxyde et la formation d'hydroxyapatite. Une élimination efficace du phosphate a été observée, avec des concentrations de sortie inférieures à 1 mg P-PO_4/L. Environ 30 % de l'ammonium (NH_4^+) a été éliminé dans les filtres alimentés par du carbone organique biodégradable, la nitrification étant dépendante des niveaux de pH. Les filtres réactifs à base de scories d'aciérie se sont avérés adaptés au traitement tertiaire des eaux usées domestiques à forte alcalinité, soulignant l'importance du contrôle de l'alcalinité.

Dans une étude parallèle à chapitre 4, deux filtres réactifs avec des scories d'aciérie de four à arc électrique (colonne 1-S et colonne 2-R) ont été utilisés pour le traitement tertiaire chez les utilisateurs domestiques de l'eau souterraine. La colonne 1-S a été alimentée avec des eaux usées secondaires synthétiques contenant de l'azote (N), du phosphore (P), de l'alcalinité, des solides en suspension totaux (TSS) et de la matière organique biodégradable. En revanche, la colonne 2-R a été alimentée avec des eaux usées secondaires réelles avec une haute alcalinité mais sans

phosphore. Les données de pH ont mis en évidence l'impact de l'alcalinité, atteignant 9,9 dans la Colonne 1-S et 8,6 dans la Colonne 2-R. Les scories d'aciérie ont montré une grande sélectivité pour le phosphate par rapport aux carbonates, même à des niveaux de phosphate faibles. Des conditions anoxiques-faiblement oxiques ont été confirmées, avec une élimination de l'azote d'environ 24 % dans la Colonne 1-S. La concentration d'ammonium a diminué sur six mois, avec une diminution initiale des nitrates due à la dénitrification, suivie d'une augmentation. Les indices de saturation ont indiqué une précipitation partielle de l'hydroxyapatite et la formation de calcite tout au long de la Colonne 1-S, tandis que la Colonne 2-R a connu un changement dû au remplacement des bicarbonates. L'analyse EDS a confirmé une élimination majeure du phosphate et de la calcite dans les sections inférieures de la colonne. Les mesures de la pression sont restées stables, probablement en raison d'un dépôt efficace des particules.

Dans le Chapitre 5, l'étude de revue s'est concentrée sur l'efficacité des filtres réactifs dans l'élimination du phosphore, en identifiant les facteurs opérationnels et les mécanismes de formation de l'encrassement. Des stratégies pour le contrôle de l'encrassement, la conception des réacteurs, les tactiques opérationnelles et la surveillance ont été présentées, ainsi que les orientations futures de la recherche. Cette étude a clairement montré le manque de connaissances sur la conception des entrées dans les filtres réactifs. Ensuite, dans le Chapitre 6, trois conceptions d'entrée dans un filtre de scories EAF à flux ascendant ont été comparées sur quatre mois : injection intérieure, alimentation par le bas en un point et tuyau de distribution par le bas. Les filtres avec des injections par le bas ont développé des pressions de tête de 10 et 3 mm, contrairement à l'injection intérieure. L'injection intérieure a maintenu un pH plus élevé et stable et a libéré plus de contenu alcalin, améliorant ainsi l'élimination du phosphore avec un média de scories riche en calcium.

ABSTRACT

There is a significant concern about domestic wastewater being released into surface water and groundwater, particularly in areas not connected to centralized wastewater facilities. Phosphorus and nitrogen, which are key nutrients, are major contributors to eutrophication.

In Chapter 2, onsite treatment systems are evaluated, highlighting the importance of tertiary treatment in their processes. Reactive filters are promising as tertiary treatment units for onsite systems, providing effective pollutant removal.

In Chapter 3, three reactive filters based on steel slag were fed with secondary domestic effluents containing bicarbonates (column 1-blank), bicarbonates with soluble organic carbon (column 3-organic matter), and bicarbonates with particulate matter (column 2-TSS) over a period of 30 days. Water samples were analyzed for nutrient and metal concentrations, alkalinity, and pH, while the steel slags were examined by scanning electron microscopy. Calcite precipitation depleted the steel slags without causing pressure build-up. The saturation index and the form of calcite precipitates were influenced by the presence of organic carbon. The main reactions included calcite formation, hydroxide release, and hydroxyapatite formation. Effective phosphate removal was observed, with outlet concentrations below 1 mg P-PO4/L. Approximately 30% of ammonium (NH4+) was removed in filters fed with biodegradable organic carbon, with nitrification being dependent on pH levels. Steel slag-based reactive filters proved suitable for the tertiary treatment of domestic wastewater with high alkalinity, highlighting the importance of alkalinity control.

In a parallel study to Chapter 4, two reactive filters with electric arc furnace slags (column 1-S and column 2-R) were used for tertiary treatment in domestic groundwater users. Column 1-S was fed synthetic secondary wastewater containing nitrogen (N), phosphorus (P), alkalinity, total suspended solids (TSS), and biodegradable organic matter. In contrast, Column 2-R was fed real secondary wastewater with high alkalinity but no phosphorus. pH data highlighted the impact of alkalinity, reaching 9.9 in Column 1-S and 8.6 in Column 2-R. Slag demonstrated high selectivity for phosphate over carbonates, even at low phosphate levels. Anoxic-low oxic conditions were confirmed, with nitrogen removal around 24% in Column 1-S. Ammonium concentration decreased over six months, with initial nitrate decrease due to denitrification, followed by an increase. Saturation indices indicated partial hydroxyapatite precipitation and calcite formation throughout Column 1-S, while Column 2-R experienced a shift due to bicarbonate replacement.

EDS analysis confirmed major phosphate and calcite removal in lower column sections. Pressure head measurements remained stable, likely due to effective particle settlement.

In Chapter 5, the review study focused on reactive filter efficacy in phosphorus removal, identifying operational factors and formation mechanisms of clogging. Strategies for clogging control, reactor design, operational tactics, and monitoring were presented, along with future research directions. This study clearly showed the gap of knowledge on inlet design in reactive filters. Then as follow in Chapter 6, three inlet designs in an upward flow EAF slag filter were compared over four months: inside injection, bottom point feeding, and bottom distribution pipe. Filters with bottom injections developed pressure heads of 10 and 3 mm, unlike the inside injection. The inside injection maintained higher, stable pH and released more alkaline content, enhancing phosphorus removal with calcium-rich slag media.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE III

REMERCIEMENTS IV

RÉSUMÉ V

ABSTRACT VII

TABLE DES MATIÈRES IX

LISTE DES TABLEAUX XV

LISTE DES FIGURES XVII

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XXI

LISTE DES ANNEXES XXIII

CHAPITRE 1 INTRODUCTION 1

1.1 Définition du problème 1

1.2 Objectifs 4

1.3 Structure de la thèse 5

CHAPITRE 2 REVUE DE LA LITTÉRATURE 9

2.1 Réglementation des eaux usées pour les habitations isolées 9

2.2 Traitement des eaux usées sur site 10

2.2.1 Le prétraitement/le traitment primaire 11

2.2.2 Le traitement secondaire 11

2.2.3 Bionest^{MD} et Kamak^{MC} 12

2.2.4 Ecoprocess^{TM} Coco Filter, RotoFix^{MC} et Segflo^{MC} 14

2.2.5 Biosor^{MD} 300-HR Enviro-Septic^{MD} 15

2.2.6 Eljen GSF-A_{42} 17

2.2.7 Peenox^{MD} 17

2.2.8 Performance des technologies 18

2.2.9 Le traitement tertiaire 20

2.2.10 Bauxite 23

2.2.11 Dolomite 24

2.2.12 Zeolite 24

2.2.13 Calcaire 25

2.2.14 Cendres de charbon volantes 25

2.2.15 Résidus de bauxite 26

2.2.16 Scories 26

2.2.17 Filtra P 27

2.2.18 Filtralite P^{TM} 28

2.2.19 Polonite 28

CHAPITRE 3 ARTICLE 1: NITROGEN AND PHOSPHORUS REMOVAL BY REACTIVE FILTER AS A TERTIARY TREATMENT UNIT FOR ISOLATED HOUSES WITH HIGH ALKALINITY GROUNDWATER SOURCE 29

3.1 Introduction 31

3.2 Materials 34

3.2.1 Slag media 34

3.2.2 Preparation of secondary effluent 35

3.2.3 Column tests 37

3.2.4 Analytical determinations 38

3.2.5 Column dismantling and slag characterization 39

3.2.6 PHREEQC modeling 39

3.3 Results and discussion 40

3.3.1 Impact of alkalinity on slag exhaustion 40

3.3.2 Fate of nutrients 44

3.3.3 Phosphate removal at high pH 44

3.3.4 Nitrogen removal by partial nitrification in the presence of organic matter.....45

3.3.5 Precipitation mechanism 47

3.4 Conclusion 51

3.5 Acknowledgement 52

CHAPITRE 4 ÉTUDE COMPLÈTE SUR LES SCORIES DE FOUR À ARC ÉLECTRIQUE POUR LE TRAITEMENT TERTIAIRE DES EFFLUENTS DOMESTIQUES SECONDAIRES. 54

4.1 Introduction 54

4.2 Matériaux 55

4.2.1 Scories 55

4.2.2 Préparation de l'influent et des solutions 56

4.2.3 Tests en colonne 57

4.2.4 Déterminations analytiques 57

4.2.5 Démontage des colonnes et caractérisation des scories 58

4.2.6 Phreeqc 58

4.3 Résultats et discussion 58

4.3.1 Observation générale lors du démontage 58

4.3.2 pH and alcalinité 59

4.3.3 Média de scories sous conditions aérobies-anoxiques 60

4.3.4 Élimination biologique de l'azote et élimination chimique du phosphore 63

4.3.5 SEM 68

4.3.6 Test de traceur 70

4.4 Conclusion 72

4.5 Remerciements 73

CHAPITRE 5 ARTICLE 2: CLOGGING OF REACTIVE FILTERS FOR PHOSPHORUS REMOVAL – A REVIEW 74

5.1 Introduction 75

5.2 Clogging phenomena in reactive filters 76

5.2.1 Flow rate, HRT and HLR 76

5.2.2 Wastewater composition 78

5.2.3 Clogging mechanisms 80

5.2.4 Physical clogging 80

5.2.5 Chemical clogging 83

5.2.6 Biological clogging 85

5.2.7 The consequences of clogging 90

5.3 Clogging control strategies 92

5.3.1 Particle size of reactive filters media 92

5.3.2 Reactive filter inlet design 94

5.3.3 Bicarbonate input 96

5.3.4 Operational strategies 97

5.3.5 Clogging monitoring 98

5.3.6 Hydraulic conductivity 98

5.3.7 Tracer test 101

5.3.8 Pressure head 102

5.4 Recommendations for the future studies 102

5.5 Acknowledgement 103

CHAPITRE 6 ÉTUDE DE PERFORMANCE DU CONCEPT D'ENTRÉE DANS LES FILTRES RÉACTIFS COMME UNITÉ DE TRAITEMENT TERTIAIRE POUR LES SYSTÈMES D'ASSAINISSEMENT DÉCENTRALISÉS 104

6.1 Introduction 104

6.2 Matériaux 106

6.2.1 Les Scories 106

6.2.2 La préparation des eaux usées 106

6.2.3 Tests de colonne 106

6.2.4 Les analyses 109

6.3 Résultats et discussions 111

6.3.1 Accumulation de pression 111

6.3.2 pH and Alcalinité 118

6.4 Conclusions 120

6.5 Remerciements 121

CHAPITRE 7 DISCUSION GÉNÉRALE 122

7.1 Sélection des scories par rapport aux autres matériaux réactifs 122

7.2 La performance des scories d'ACF pour l'élimination des nutriments 124

7.2.1 Comment surmonter l'épuisement de l'alcalinité ? 124

7.2.2 Quel est le système optimisé pour l'élimination de l'azote? 124

7.3 La performance hydraulique du filtre à scories d'EAF 126

7.3.1 Pourquoi l'obstruction n'a-t-elle pas été observée dans l'étude actuelle ? 126

7.3.2 Quelle est la meilleure méthode d'injection ? 127

CHAPITRE 8 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS 129

8.1 Conclusions 129

8.2 Recommendations 130

RÉFÉRENCES 132

ANNEXE A INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR LE CHAPITRE 3 164

ANNEXE B INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR LE CHAPITRE 4..... 171

ANNEXE C INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR LE CHAPITRE 5..... 174

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2-1 Norme de rejet des effluents des habitations isolées au Québec selon le système de traitement tertiaire [22]. 10

Tableau 2-2 Composition moyenne des eaux usées dans différentes technologies commerciales. 19

Tableau 2-3 Composition moyenne de l'effluent final dans différentes technologies commerciales. 20

Tableau 2-4 Facteurs clés pour la sélection de la méthode de traitement tertiaire [8], [54]. 22

Tableau 3-1 The chemical composition of EAF slag used in the column experiments. 35

Tableau 3-2 Average composition of secondary effluent from various centralized and decentralized wastewater treatment units [24]–[27], [114], [116]–[137]. It should be noted that due to few data on onsite treatment effluents, municipal data was used. 35

Tableau 3-3 The feedstock components for each scenario: Column 1 (blank/control), Column 2 (including suspended solids) and Column 3 (including dissolved organic carbon). 37

Tableau 3-4 Selected mineral phases and solubility constants used in PHREEQC modeling. 39

Tableau 3-5 Comparison of total P (TP) removal among several slag reactive filters, and the conditions of testing, specifically, hydraulic retention time (HRT), duration, and alkalinity in influent wastewater. 43

Tableau 3-6 The theoretical CaO consumption for the formation of calcite, hydroxyapatite and OH- ions in three columns. 44

Tableau 4-1 La composition chimique des scories de four à arc électrique (EAF) utilisées dans cette étude. 56

Tableau 4-2 La composition moyenne des effluents secondaires synthétiques et réels utilisés dans cette étude. 57

Tableau 4-3 Réactions biochimiques potentielles dans les filtres réactifs et leurs niveaux de POR correspondants [181]. 63

Tableau 5-1 Phosphorus sorbing materials [85]..... 76

Tableau 5-2 The four types of feeding in VSSFCWs by Zhou et al. [261]. 89

Tableau 5-3 The size range of used PSMs in different studies. 93

Tableau 5-4 Hydraulic conductivity reported for various materials including natural based, industrial by-product or man-made materials. 99

Tableau 5-5 Proposed guidelines for reporting data on clogging in scientific studies on reactive filters..... 103

Tableau 6-1 La gamme de taille des matériaux de filtration de phosphore utilisés dans plusieurs filtres d'élimination du phosphore par rapport à cette étude. 112

Tableau 6-2 La différence de charge de pression mesurée dans les colonnes 1) injection interne 2) injection par le point bas 3) tuyau de distribution au fond après 4 mois de fonctionnement. 114

Tableau 6-3 L'élimination totale de l'alcalinité dans la colonne 1, la colonne 2 et la colonne 3 après 15 semaines. 117

Tableau 7-1 Comparaison des matériau absorbant le phosphore étudiés dans le Chapitre 2..... 123

Tableau A1 The metal leaching result in two periods of time: a) 6 samples in the first 1 hour with the flowrate of 150 mL/min b) 5 samples during the experiments with the average flowrate of 2.25 mL/min…….....……167

Tableau C1 Summary of literature review on clogging in various media…….……174

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 Phosphorus loads estimated from product use [20]. 3

Figure 1.2 Diagramme des objectifs de la thèse présentée. 8

Figure 2.1 Un système général de fosse septique/champ d'épuration pour une maison [38]–[40]. 11

Figure 2.2 Schéma du processus Bionest^{MD} [44]. 13

Figure 2.3 Schéma du processus Kamak^{MC} [45]. 13

Figure 2.4 Schéma du processus Ecoprocess^{TM} Coco Filter [48]. 14

Figure 2.5 Schéma du processus RotoFix^{MC} [46]. 14

Figure 2.6 Schéma du processus Segflo^{MC} [47]. 15

Figure 2.7 Schéma du processus Biosor^{MD} 300-HR [50]. 16

Figure 2.8 Schéma du processus Enviro-Septic^{MD} [49]. 16

Figure 2.9 Schéma du processus ELJEN GSF-A_{42} [51]. 17

Figure 2.10 Schéma du processus Peenox^{MD} [52]. 17

Figure 3.1 Parameters for PSM selection for P removal in reactive filters [102]. 32

Figure 3.2 The proportion of the Canadian population served by municipal wastewater systems by province and territory in 2017 [9]. 33

Figure 3.3 Schematic of experiment for testing P removal by EAF slag contained in a column, fed by simulated wastewater contained in a reservoir. Each number indicates a sampling point and piezometer. 38

Figure 3.4 The variation of pH in a) Column 1 (without an organic carbon source), b) Column 2 (with cellulose as organic carbon source) and c) Column 3 (with acetic acid/sodium acetate buffer as soluble organic carbon source). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3. 41

Figure 3.5 The variation of alkalinity in a) Column 1 (without an organic carbon source), b) Column 2 (with cellulose as organic carbon source) and c) Column 3 (with acetic acid/sodium acetate buffer as soluble organic carbon source). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3. 42

Figure 3.6 Changes in $PO4^{3-}$ concentrations in a) Column 1 (without an organic carbon source), b) Column 2 (with cellulose as organic carbon source) and c) Column 3 (with acetic acid/sodium acetate buffer as soluble organic carbon source) at four sampling points (feedstock ●, 1 ▲, 2 ♦ and 4 ■). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3. 46

Figure 3.7 Changes in NO_3^-, NH_4^+ and NO_2^- concentrations in Column 1 to 3 at four sampling points (feedstock, 1, 2 and 4). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3. 47

Figure 3.8 Saturation indices for calcite (pKsp = 7.5) and HAP (pKsp = 46) among each column at points 1, 2 and 4 within each column. Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3. 49

Figure 3.9 The SEM images of EAF slag: a & b) fresh slag, c & d) Column 1 (bottom), e) Column 1 (point 2), f) Column 2 (bottom), g) Column 3 (point 1), h) Column 3 (point 2). The SEM condition for a to d, x = 1000 and e to h, x =2500 all in 15 kV. EDS data is indicated in the top left of each figure. 50

Figure 3.9 The SEM images of EAF slag: a & b) fresh slag, c & d) Column 1 (bottom), e) Column 1 (point 2), f) Column 2 (bottom), g) Column 3 (point 1), h) Column 3 (point 2). The SEM condition for a to d, x = 1000 and e to h, x =2500 all in 15 kV. EDS data is indicated in the top left of each figure (suite).....51

Figure 4.1 Les variations de pH et d'alcalinité dans les Colonnes 1-S et 2-R. Les chiffres 1, 2 et 3 se réfèrent respectivement aux points d'échantillonnage 1, 2 et 3. 60

Figure 4.2 Les valeurs d'oxygène dissous (OD) et du potentiel d'oxydoréduction (POR) en fonction du temps sur une période de quatre mois pendant l'exploitation de a) la Colonne 1-S et b) la Colonne 2-R 61

Figure 4.3 Les variations d'azote et de phosphore aux points suivants : alimentation, 1, 2 et 3 dans la Colonne 1-S (a, b, c) et la Colonne 2-R (d, e, f). Il est important de noter que les calculs ont été effectués sur la base des données moyennes. 65

Figure 4.4 Indices de saturation pour l'hydroxyapatite (HAP) (panneau d, pKsp = 46) et la calcite (panneaux a, b et c, pKsp = 7,5) dans les Colonnes 1-S et 2-R aux points 1 ▲, 2 ♦, et 3. Pour les calculs de HAP, si la concentration en phosphore était inférieure à la limite de détection de 0,2 mg/L, la concentration en phosphore a été fixée à 0,2 mg/L pour le calcul de l'indice de saturation. 67

Figure 4.5 Les variations totales de la demande chimique en oxygène aux points d'alimentation et aux points 1 à 3 dans les Colonnes 1-S et 2-R. 68

Figure 4.6 Images SEM des scories après le démontage des colonnes : Colonne 1-S a&b) fond c) point 1 d) point 2 et Colonne 2-R e) point 1 f) point 2. 69

Figure 4.6 Images SEM des scories après le démontage des colonnes : Colonne 1-S a&b) fond c) point 1 d) point 2 et Colonne 2-R e) point 1 f) point 2 (suite)……70

Figure 4.7 La distribution du temps de résidence a) Colonne 1-S b) Colonne 2-R, déterminée par l'injection de colorant rhodamine. 71

Figure 5.1 Schematic of suspended solids movement in slag medium. Suspended solids (orange, red and green particles); gray shapes: slag particle; blue arrow: flow direction; green arrow: surface (physical) adsorption; black arrow: particle accumulation; yellow arrow: particles entrapment. 81

Figure 5.2 Mechanisms of bio-clogging: a) flow direction b) first: biofilm formation c) second: colonization d) third: biofilm detachment e) fourth: inorganic-organic particles entrapped in biofilm. 87

Figure 5.3 Summary review on inlet design of studies in Table C1. 96

Figure 6.1 Les conceptions d'entrée pour la comparaison : a) injection interne - Colonne 1 b) injection par le point bas - Colonne 2 c) tuyau de distribution au fond - Colonne 3. 108

Figure 6.2 L'installation complète avec a) le baril d'injection, b et c) les colonnes 1 à 3, d) la table des piézomètres. 110

Figure 6.3 La surface en maille au fond de la colonne 2. Le point central est libre, car un débit élevé intermittent a ouvert les vides. 115

Figure 6.4 La section inférieure des colonnes : a) injection interne b) injection par le point bas c) tuyau de distribution au fond. Le capuchon blanc marqué d'un point vert dans l'injection interne empêche les scories de tomber dans l'ouverture du tuyau sur le dessus. 116

Figure 6.5 Les billes de verre se sont attachées aux particules de scories. 118

Figure 6.6 La variation du pH et de l'alcalinité dans a) injection interne b) injection par le point bas c) tuyau de distribution au fond au point 1 ▲ (10 cm), point 2 ♦ (25 cm) et point 3 X (40 cm) depuis le bas. 120

Figure A1 The photo of column……....164

Figure A2 Slags after dismantling a) Column 1 b) Column 2 c) Column 3; section 1: 8 cm, section 2: 20 cm, section 3: 37 cm all from the bottom.....165

Figure A3 Changes in Ca2+ and Mg2+ concentrations in Columns 1 to 3 at four sampling points (feedstock ●, 1 ▲, 2 ♦ and 4 ■). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3 3……166

Figure B1 Colonne 1-S a) point 3 b) haut ; Colonne 2-R c) point 3 d) haut…….…….171

Figure B2 Les scories, après le démontage des colonnes, ont séché à température ambiante après 24 h a) Colonne 1-S b) Colonne 2-R. De droite à gauche : Bas, 1, 2, 3 et 4, respectivement..172

Figure B3 L'injection interne a) avec capuchon b) sans capuchon……172

Figure B4 La concentration de Ca et de Mg aux points d'alimentation et 1 à 3 dans la colonne 1-S et la colonne 2-R……173

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

λ	Efficacité hydraulique	P	Phosphore
AL	Agrégats légers	POR	Potentiel d'oxydoréduction
Cu	Coefficient d'uniformité	RBCF	Réacteur biologique à culture fixée
DBO	Demande biochimique en oxygène	SCO	scorie de convertisseur à oxygène
DCO	Demande chimique en oxygène	SHF	scorie de haut fourneau
DRX	Diffraction des rayons X	SIS	Solides inorganiques en suspension
DTS	Distribution du temps de séjour	SPE	Substances polymériques extracellulaires
EBAP	Élimination biologique améliorée du phosphore	SPI	Sous-produit industriel
ECF	EcoprocessTM Coco Filter	SST	Solides en suspension totaux
FEA	Four électrique à arc	SSV	Solides en suspension volatils
FR	Filtre réactif	ST	Solides totaux
FS	Fosse Septique	STEUS	Système de traitement des eaux usées sur site
K	Conductivité hydraulique	SV	Solides volatils
LBAFA	Lit de boues anaérobies à flux ascendant	TCH	Taux de charge hydraulique
MAP	Matériau absorbant le phosphore	TCLV	Temps de contact en lit vide
MEB	Microscope électronique à balayage	TCO	Taux de charge organique
MO	Matière organique	TSH	Temps de séjour hydraulique
N	Azote	TSHv	Temps de séjour hydraulique en vide
nTSH	Temps de séjour hydraulique nominal	ZHC	Zones humides construites
OD	Oxygène dissous	ZHCFHSS	Zones humides construites à flux horizontal sub-surface

Dans les articles

λ	Hydraulic efficiency	N	Nitrogen
BF	Blast furnace	nHRT	Nominal hydraulic residence time
BOD	Biochemical oxygen demand	OLR	Organic loading rate
BOF	Basic oxygen furnace	OM	Organic matter
COD	Chemical oxygen demand	ORP	Oxidation-Reduction Potential
Cu	Uniformity coefficient	OWTS	Onsite wastewater treatment system
CW	Constructed wetland	P	Phosphorus
DO	Dissolved oxygen	PSM	Phosphorus sorbing material
EAF	Electric arc furnace	RBCF	Fixed culture biological reactor
EBCT	Empty bed contact time	RF	Reactive filter
EBPR	Enhanced biological phosphorus removal	RTD	Residence time distribution
ECF	EcoprocessTM Coco Filter	SEM	Scanning electron microscope
EPS	Extracellular polymeric substances	ST	Septic Tank
HLR	Hydraulic loading rate	TS	Total solids
HRT	Hydraulic residence time	TSS	Total suspended solids
HRTv	Void hydraulic residence time	UASB	Up-flow anaerobic sludge blanket
HSSFCW	Horizontal subsurface flow constructed wetlands	VS	Volatile solids
IBP	Industrial by-product	VSS	Volatile suspended solids
ISS	Inorganic suspended solids	XRD	X-ray diffraction
K	Hydraulic conductivity	N	Nitrogen

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE A information supplémentaire pour le chapitre 3 164

ANNEXE B information supplémentaire pour le chapitre 4 171

ANNEXE C information supplémentaire pour le chapitre 5 174

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

1.1 Définition du problème

D’où viennent-elles des eaux usées et où sont-elles ensuite rejetées ? Et enfin, comment peuvent-elles être contrôlées ? Ce sont les principales questions à définir pour comprendre le problème et atteindre les objectifs.

En général, il s'agit de toute sorte d'eaux polluées par divers types de courants domestiques ou industriels. Cela peut inclure les eaux utilisées dans les industries ou produites comme sous-produit dans différents processus. Il est évidemment important de les considérer car les eaux usées sont déversées dans les rivières, les lacs, se diffusant dans les eaux souterraines, etc. Ainsi, elles doivent être contrôlées avant d'être rejetées dans l'environnement [1], [2].

Différents types d'eaux usées sont produits quotidiennement, tels que les eaux usées huileuses, les eaux usées des industries textiles et papetières, les eaux usées de l'industrie des boissons, les effluents des maisons, des bâtiments et des hôpitaux, etc. [3], [4]. Ces rejets peuvent être divisés en deux catégories principales : les eaux usées municipales et industrielles. Les eaux usées qui viennent des maisons, bâtiments, hôpitaux, toilettes, hôtels, restaurants et écoles (en général des effluents municipaux ou des eaux usées domestiques) sont incluses dans le groupe domestique. Le reste comme des mines, de l'agriculture, des champs pétroliers/gaziers/pétrochimiques et d'autres industries, constitue les types industriels. Selon le but du projet, l’auteur se concentre sur les eaux usées municipales, en particulier les eaux usées domestiques provenant de résidences isolées.

En général, il y a quatre niveaux de traitement des eaux usées municipales (ou eaux d'égout) : le prétraitement, le traitement primaire (y compris le primaire avancé), le traitement secondaire (y compris le secondaire avancé) et le traitement tertiaire [5]. Les constituants tels que la graisse, le sable et les matières flottantes qui peuvent causer des problèmes de maintenance sont éliminés par le prétraitement. Le traitement primaire, qui est le niveau minimum de réglementation dans de nombreux pays industrialisés, applique le concept de sédimentation. Dans ce processus, une part considérable des solides en suspension (SS), environ 50-70%, et de la matière organique (OM) sont séparés. Cependant, dans la plupart des cas, une purification supplémentaire est nécessaire en ce qui concerne la demande biologique en oxygène (BOD) et les nutriments (azote et phosphore), c'est là que le traitement secondaire intervient. En réalité, le traitement primaire est complété par le

traitement secondaire [6], [7]. Il y a différentes méthodes de traitement secondaire bien les éxprimer dans des études précédentes [5], [8]. Le traitement tertiaire est utilisé lorsqu'un certain niveau d'élimination des contaminants est requis et ne peut être atteint par les traitements secondaires conventionnels. Selon les données fournies par le gouvernement du Canada [9], les niveaux de traitement primaire et secondaire sont appliqués dans la plupart des régions (40 à 89 % de la population) pour les eaux usées municipales et domestiques [9]. Les informations du gouvernement fédéral citées dans le rapport [10], mentionnent que le nombre de résidents canadiens dépendant des systèmes septiques (FS) est d'environ 25 %, soit approximativement 8 à 11 millions de personnes.

Les grandes communautés avec des zones à forte densité de population utilisent des systèmes centralisés de collecte et de traitement des eaux usées, ce qui est plausible en termes de coût et de flexibilité. Cependant, comme mentionné précédemment, le but de ce projet se concentre sur les eaux usées domestiques, y compris les petites communautés et les habitations isolées. Dans ces cas, Le coût élevé des investissements en capital est un gros problème. En outre, les systèmes centralisés requièrent une vaste superficie qui n'est pas disponible dans certaines régions, notamment les zones isolées [11], [12]. Ainsi, les systèmes de traitement décentralisé ou de traitement des eaux usées sur site ont récemment attiré beaucoup d'attention. Abbasi et al. [12] ont rapporté un pourcentage élevé d'application des systèmes de traitement des eaux usées sur site dans différents pays, 12 % en Australie, plus de 60 millions de personnes aux États-Unis, 15 % en Allemagne et 32 % en Jordanie, ce qui indique son importance.

L'un des procédés les plus simples, économiques et pratiques pour ce but, tant dans le monde qu'au Canada, est l'utilisation d'une fosse septique suivie d'un champ d'épuration [13]. Bien que le système de fosse septique/champ d'épuration soit économique, simple et facile à utiliser, il ne garantit pas une élimination suffisante des contaminants [14]. L'une des principales préoccupations est la libération de phosphore (P) dans les eaux souterraines après le passage par le système de fosse septique/champ d'épuration en raison d'une mauvaise opération [8], [12], [15]–[17]. Il convient également de noter que, dans certaines régions, il n'y a pas d'espace disponible pour un champ d'épuration, et une alternative de traitement est donc nécessaire. Les nutriments, le phosphore (P) et l'azote (N), sont connus comme des régulateurs de la croissance des algues et des facteurs principaux du phénomène d'eutrophisation. L'azote dans les formes de nitrate et d'ammonium dans l'eau peut transmettre des maladies telles que le syndrome du bébé bleu, des

cancers et des problèmes de peau et de poumons [18]. La présence de P dans l'eau favorise la formation de cyanobactéries [17], [19].

Tjandraatmadja et al. ont fait une bonne révision sur la composition des eaux usées domestiques provenant des produits ménagers en Australie. Le rapport a déclaré que le phosphore total (TP) était détecté dans 97 % des produits ménagers. Les produits de nettoyage, de salle de bain, de soins personnels, de cuisine et de lessive contiennent tous du phosphore [20]. La Figure 1.1 représente le TP en fonction des produits.

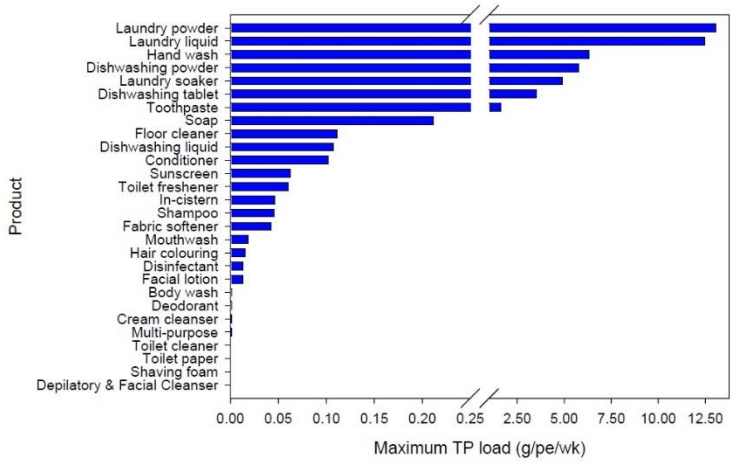


Figure 1.1 Phosphorus loads estimated from product use [20].

Robertson et al. ont rapporté que la concentration en phosphore dans l'eau souterraine après les systèmes de traitement et les champs d'épuration des habitations peut être dans la plage de 1,2 à 22 mg/L, ce qui est largement suffisant pour la croissance des algues [21]. Selon le Règlement sur l'évacuation et le traitement des eaux usées des résidences isolées, Loi sur la qualité de l'environnement (Q2, r. 22) du gouvernement du Québec, mis à jour le 12 décembre 2023, la concentration maximale de phosphore à l'effluent d'un système de traitement de tertiaire est de 1 mg/L pour les résidences isolées [22], [23]. D'autre part, plusieurs études sur les effluents domestiques secondaires ont déclaré une concentration en azote total (TN) de 20 à 40 mg/L, en particulier dans les régions non connectées à des systèmes centralisés [24]–[28]. Jusqu'à la présentation de cette étude, il n'y a pas de limite rapportée dans le règlement mentionné par le gouvernement du Québec. Cependant, il y aura certainement des limitations strictes pour l'azote total (TN) dans un avenir proche en raison de sa libération dans les eaux souterraines par les maisons isolées. Il est bon de savoir que les concentrations maximales de nitrate et de nitrite dans

les eaux de puits pour les maisons isolées ne doivent pas dépasser 10 mg/L, et au-delà de 20 mg/L signifie le changement de la source d'eau [29]. Il est donc crucial de contrôler la concentration en phosphore (P) et en azote (N) avant de les rejeter dans les eaux de surface et les eaux souterraines.

1.2 Objectifs

Les filtres réactifs (RF) constituent une méthode prometteuse pour l'élimination du phosphore (P) des eaux usées et pour le contrôle de sa concentration dans l'effluent final. Les scories d'acier sont l'un des matériaux utilisés dans les RF et présentent divers types et caractéristiques en dépendent de la source et du processus de production [30], [31]. Claveau-Mallet et al. ont réalisé des expériences bien établies sur les médias de scories de four à arc électrique (EAF pour *Electric Arc Furnace*) pour l'élimination du phosphore, démontrant le potentiel de cette technologie [32]. Les principales études se sont concentrées sur l'élimination du phosphore dans les eaux usées synthétiques. Cependant, il existe une lacune de connaissances sur l'utilisation des filtres à scories dans les zones isolées qui utilisent des eaux souterraines. Comme l'alcalinité élevée est la principale caractéristique des eaux souterraines, des questions se posent sur les performances des filtres à scories, le risque de colmatage et la durée de vie du filtre, entre autres. Il est donc nécessaire d'étudier l'utilisation des filtres à scories injectés par des eaux usées avec alcalinité élevée et les caractéristiques des effluents secondaires domestiques en raison de l'élimination du phosphore, de l'azote, de l'épuisement des scories et des effets physiques sur le RF. Ainsi, différents types d'eau usées seront utilisées pour des études minéralogiques, la capacité d'élimination du phosphore et les effets de l'alcalinité etc.

Objectif 1 :

- Évaluer l'élimination du phosphore (P) et de l'azote (N) par un filtre réactif utilisé pour le traitement des effluents secondaires domestiques présentant une source d'eau souterraine à haute alcalinité.

Sous objectifs :

1.1 Caractérisation du laitier de EAF
1.2 Performance d'élimination des nutriments des eaux usées à forte alcalinité
1.3 Étude approfondie du filtre à laitier de FAE concernant l'élimination du phosphore et de l'azote

Comme mentionné précédemment, la performance hydraulique du filtre réactif est cruciale pendant son fonctionnement. Le court-circuitage, les zones mortes, les chemins latéraux et le colmatage sont des exemples de modifications hydrauliques dans les filtres réactifs qui influencent l'élimination du phosphore des eaux usées. Selon les revues de littérature, il y a différentes expériences sur la stratification, la taille des particules, le temps de résidence hydraulique, etc. Différentes configurations existent, y compris les flux horizontal et vertical dans les filtres réactifs. L'alimentation verticale est principalement utilisée à l'échelle laboratoire pour les filtres réactifs, avec principalement une injection par le point bas. Cependant, il n'existe aucune donnée publiée concernant la conception de l'entrée du réacteur par rapport à la performance hydraulique. Par conséquent, dans cet objectif, trois modes différents de conception d'entrée ont été comparés pour comprendre en détail les différences hydrauliques et les éventuelles différences de traitement.

Objectif 2 :

- Comparaison de la performance hydraulique du filtre réactif lors du traitement des effluents secondaires domestiques, opéré avec trois conceptions différentes d'entrée

Sous objectifs :

2.1 Étude du colmatage dans les filtres réactifs : Raisons, stratégies de surveillance et de contrôle

2.2 Fonctionnement de différentes conceptions d'entrées et mesure développement de la pression

1.3 Structure de la thèse

Selon les objectifs définis, ce projet se concentre sur deux thèmes principaux. La revue de littérature dans le chapitre 2 explore les réglementations les plus récentes sur le rejet des nutriments dans les plans d'eau, ainsi que les technologies décentralisées actuelles pour les maisons isolées et les petites communautés. Les besoins en unités de traitement tertiaire dans ces systèmes, les méthodes pratiques ainsi que leurs avantages et inconvénients sont présentés. La méthode choisie, le filtre réactif, est évaluée à base de deux aspects : (i) la performance d'élimination et (ii) le phénomène de colmatage, qui est brièvement expliqué car une étude approfondie est présentée dans le chapitre 5. Ainsi, les résultats des études et expériences couvrant les objectifs mentionnés ci-dessus seront présentés comme suit.

Le premier objectif : Évaluer l'élimination du phosphore (P) et de l'azote (N) par un filtre réactif utilisé pour le traitement des effluents secondaires domestiques présentant une source d'eau souterraine à haute alcalinité :

Article 1: Nitrogen and phosphorus removal by reactive filter as a tertiary treatment unit for isolated houses with high alkalinity groundwater source.

Cet article publié dans la revue « Journal of Water Process Engineering » sera présenté dans le Chapitre 3. Trois modes d'eaux usées synthétiques ont été utilisés dans cette étude : 1) Colonne 1 - forte alcalinité, 2) Colonne 2 - forte alcalinité/matières en suspension et 3) Colonne 3 - forte alcalinité/matières organiques biodégradables. Tous possédaient les caractéristiques des effluents secondaires domestiques, représentant les clients cibles vivant dans des maisons isolées ou, essentiellement, des unités non connectées au système centralisé dans les zones éloignées. Ces configurations ont été sélectionnées pour différencier l'élimination des nutriments entre les colonnes et l'effet de la forte alcalinité dans chaque cas.

Étude complète sur les scories de four à arc électrique pour le traitement tertiaire des effluents domestiques secondaires

Cet étude en préparation sera présenté dans le Chapitre 4. Deux colonnes alimentées par un effluent secondaire simulé à forte alcalinité et un effluent secondaire réel (avec ajustement de l'alcalinité) ont fonctionné pendant 6 mois pour évaluer la capacité d'élimination des nutriments, la durée de vie du filtre réactif et la performance hydraulique. Les analyses nécessaires telles que la demande chimique en oxygène, l'oxygène dissous et le potentiel d'oxydoréduction ont été effectuées pour vérifier la nitrification et l'activité biologique dans le filtre réactif. La performance hydraulique du filtre réactif a été évaluée à l'aide d'une table piézométrique et du test de traçage.

Le deuxième objectif : La comparaison des performances hydrauliques du filtre réactif à travers le suivi développement de la pression pendant le traitement des eaux usées domestiques secondaires, exploité avec trois entrées différentes, est présentée à travers deux articles :

Article 2: Clogging of reactive filters for phosphorus removal – A review

Cet article soumis dans la revue « Journal of Water Process Engineering » sera présenté dans le Chapitre 5. En raison du manque de connaissances sur le phénomène de colmatage et les performances hydrauliques des filtres réactifs, une étude de revue a été réalisée pour élucider

différents aspects du colmatage dans les filtres réactifs, ainsi que les recommandations et les plans futurs pour l'utilisation des filtres réactifs en tant qu'unité de traitement tertiaire.

Étude de performance du concept d'entrée dans les filtres réactifs comm unité de traitment tertiaire pour les systèmes d'assainissement décentralisées

Cet étude, accepté pour une présentation en août 2024 lors de la conférence de l'« International Water Association », sera présenté dans le chapitre 6.Trois filtres à laitier de four à arc électrique (FAE) ont été alimentés par un effluent secondaire synthétique. Trois méthodes d'injection ont été conçues pour comparer l'effet de la conception des entrées sur les performances hydrauliques des filtres réactifs :

a) Injection ponctuelle au bas de la colonne
b) Injection par tuyau de distribution au bas de la colonne
c) Injection latérale

Il est à noter que les filtres fonctionnaient de bas en haut. La concentration de phosphates, en plus des mesures de pression, a été suivie pendant la période d'opération pour déterminer la meilleure configuration.

Le schéma des objectifs de la thèse est présenté dans la Figure 1.2.

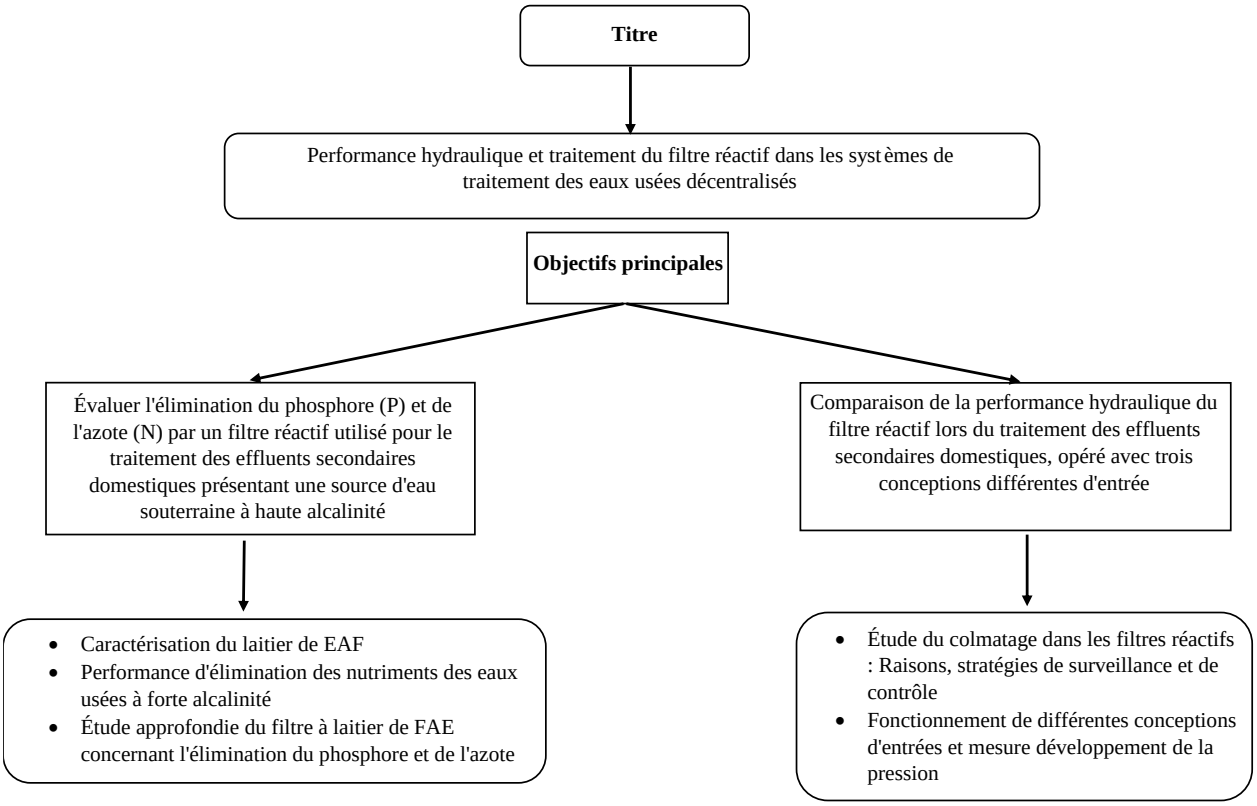


Figure 1.2 Diagramme des objectifs de la thèse présentée.

CHAPITRE 2 REVUE DE LA LITTÉRATURE

Les eaux usées contiennent différents polluants tels que des nutriments, des métaux, des pathogènes, des microplastiques et des matières organiques, etc. La concentration de chaque espèce dans les eaux usées dépend de sa source. Il y a des systèmes de traitement centralisés dans les villes pour purifier les eaux usées avant de les rejeter dans les eaux de surface ou les eaux souterraines. Cependant, il y a une préoccupation majeure concernant les eaux usées domestiques dans les zones isolées ou les petites communautés qui ne sont pas reliées aux stations centralisées [14]. Ces lieux dépendent de leurs systèmes appelés unités de traitement "décentralisées" ou "sur site".

Les nutriments sont l'un des principaux problèmes du rejet des eaux usées domestiques dans les masses d'eau. Le rejet de nutriments dans les masses d'eau agit comme un engrais pour la croissance des algues [18]. La croissance excessive des algues dans l'eau, appelée phénomène d'eutrophisation, consomme l'oxygène dissous dans l'eau. De cette manière, elle peut modifier la santé et le fonctionnement de l'écosystème, aggraver le changement climatique et mettre en danger la vie aquatique, ce qui influence directement la vie humaine [33], [34]. Ces proliférations posent également une menace pour la santé humaine et les écosystèmes aquatiques en libérant des toxines qui peuvent nuire aux personnes, aux animaux et à la vie aquatique. De plus, elles peuvent avoir un impact négatif sur l'économie, les réserves d'eau potable, les industries de la pêche et les activités récréatives telles que la natation [35]. L'azote sous forme de nitrate et d'ammonium dans l'eau conduit à des maladies telles que le syndrome du bébé bleu, les cancers et les problèmes de peau/poumons [18]. La présence de P et N dans l'eau augmentent la formation de cyanobactéries [17], [19].

Ces conséquences montrent clairement l'importance du traitement des eaux usées domestiques. Pour comprendre la situation actuelle, plus de 60 millions de personnes utilisent des systèmes sur site aux États-Unis, et entre 10 et 40 % de la population canadienne, selon la province, n'est pas reliée aux stations de traitement des eaux usées centralisées [9], [12].

2.1 Réglementation des eaux usées pour les habitations isolées

Les critères de rejet des eaux usées par les habitations dans les zones reculées du Québec sont rapportés dans le Tableau 2-1. Les spécifications des polluants dans l'effluent sont définies après l'unité tertiaire avant le rejet dans les masses d'eau. La concentration de phosphore (P) ne doit pas

dépasser 1 mg/L dans tous les cas de traitement tertiaire. Comme on peut le lire dans le Tableau 2-1 mis à jour en décembre 2023, il n'existe pas encore de norme de rejet sur la concentration d'azote (N), sous forme d'ammonium (NH_4) ou de nitrates/nitrites (NO_3/NO_2). Cependant, de nouvelles réglementations sur la concentration d'azote sont attendues. Par exemple, en raison des problèmes de NO_x dans l'eau, l'eau de puits contenant plus de 10 mg/L de nitrates et nitrites n'est pas recommandée pour les utilisateurs et, si elle dépasse 20 mg/L, les utilisateurs doivent trouver d'autres sources d'eau potable [29].

Tableau 2-1 Norme de rejet des effluents des habitations isolées au Québec selon le système de traitement tertiaire [22].

Paramètre	Unité (mg/L)		
	avec déphosphatation	avec désinfection	avec déphosphatation et désinfection
Demande biologique en oxygène (DOB_5)	15	15	15
Solides en suspension (SS)	15	15	15
Phosphore totale (TP)	1	-	1
Coliformes fécaux	50 000 CFU/100 ml	200 CFU/100 ml	200 CFU/100 ml

2.2 Traitement des eaux usées sur site

En général, quatre niveaux de traitement sont utilisés pour traiter les eaux usées domestiques : le prétraitement, le traitement primaire, le traitement secondaire et le traitement tertiaire. Il convient de noter que dans les systèmes décentralisés, les unités de prétraitement et de traitement primaire sont considérées comme une seule unité. Dans les paragraphes suivants, chaque étape sera expliquée. Étant donné que le cadre de ce projet concerne les effluents domestiques dans les zones isolées, la discussion se concentre sur les traitements des eaux usées sur site ou décentralisés.

2.2.1 Le prétraitement/le traitment primaire

Les traitements physiques qui éliminent principalement les solides se réfèrent aux unités de prétraitement ou de traitement primaire. Ces unités captent les matériaux flottants ou facilement décantables, y compris le tamisage, l'élimination des graviers et la sédimentation etc. [36].

2.2.2 Le traitement secondaire

Le traitement secondaire des eaux usées réfère à la réduction des matières organiques dans les eaux usées par le processus de traitement biologique. L'effluent primaire (le flux après l'unité de traitement primaire) entre dans l'unité de traitement secondaire et 85 % de la matière organique est éliminée [36], [37].

Le système traditionnel utilisé dans les systèmes de traitement des eaux usées sur site est le système de fosse septique/champ d'épuration [14]. Le processus est illustré dans la Figure 2.1. Il comporte deux parties principales : 1) Une fosse septique souterraine qui retient les solides 2) Un champ d'épuration qui purifie l'effluent de la fosse septique [17]. La taille de la fosse septique et du champ d'épuration dépend fortement du débit des eaux usées domestiques, de la composition des eaux usées, des caractéristiques du sol de la région, etc. Cependant, en moyenne, une surface de 10 pieds par 10 pieds est nécessaire pour le réservoir de solides/liquides et une surface supplémentaire de 30 pieds par 50 pieds pour le champ d'épuration dans une maison typique.

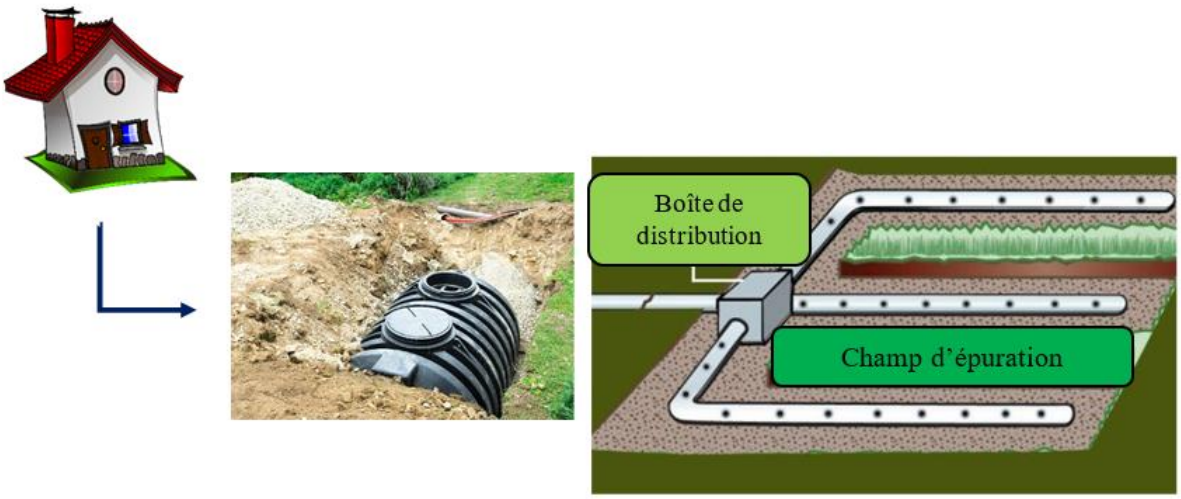


Figure 2.1 Un système général de fosse septique/champ d'épuration pour une maison [38]–[40].

Comme mentionné dans la section Introduction, il y a une incertitude quant à la performance de la fosse septique conventionnelle couplée avec un champ d'épuration, qui libère une quantité excessive de nutriments [41]. En outre, l'autre problème principal est l'espace nécessaire pour construire un champ d'épuration pour traiter les eaux usées domestiques. Par conséquent, les avancées récentes ont étudié et exploité des biofiltres pour surmonter les problèmes de performance et d'espace.

La filtration signifie la rétention des solides, des colloïdes et d'autres polluants dans l'eau ou les eaux usées. En réalité, la barrière physique par filtration est le mécanisme d'élimination des contaminants [42]. Dans la biofiltration, les activités biologiques des micro-organismes sont responsables de la dégradation des polluants. De cette manière, les micro-organismes utilisent le milieu filtrant comme surface de support pour la colonisation et le développement du biofilm. Le biofilm, composé de micro-organismes (bactéries, champignons, levures et protozoaires), décompose les nutriments, l'azote, le phosphore et les matières organiques tout en retenant d'autres contaminants dans les eaux usées [42], [43].

Dans l'étape suivante, les technologies de biofiltres utilisées dans les ménages ou les petites communautés pour le traitement des eaux usées au Québec seront expliquées.

2.2.3 Bionest^{MD} et Kamak^{MC}

Ces processus sont fournis par Bionest Technologies inc. [44], [45]. La chaîne de traitement Bionest^{MD} se compose d'une fosse septique et d'un réacteur biologique Bionest^{MD}. Le schéma du processus Bionest^{MD} est illustré dans la Figure 2.2.

La technologie Bionest^{MD} utilise un réacteur biologique comprenant deux compartiments séparés par une cloison sur les deux tiers de la longueur ou constitués de deux réservoirs en série remplis d'un matériau synthétique fait de rubans en polymère non toxique pour faciliter l'implantation de la culture microbienne. Le premier réservoir est aéré par bullage et le second n'est pas ventilé. Une pompe placée à la sortie du réacteur biologique permet la recirculation de l'effluent vers l'entrée de la fosse septique.

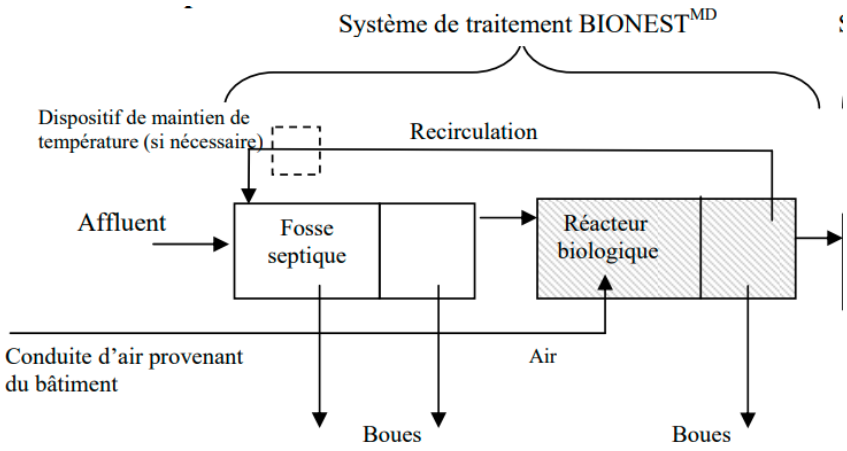


Figure 2.2 Schéma du processus Bionest^{MD} [44].

Le processus de traitement Kamak^{MC} applique un traitement biologique utilisant une culture fixée immergée, et le rejet de biomasse se produit ensuite, avec les eaux usées. Le schéma du processus Kamak^{MC} est illustré dans Figure 2.3. La première étape est une zone de clarification/stockage qui permet la décantation des solides en suspension. Ce processus est suivi de la première étape de traitement dans un réacteur biologique à culture fixée (RBCF) avec les garnissages de Bionest^{MD}. Les eaux usées sont ensuite dirigées vers une deuxième zone de clarification/stockage des boues. Elles subissent ensuite un deuxième traitement dans un autre RBCF et vont finalement dans une troisième zone de clarification/stockage des boues.

Pour chaque RBCF, un diffuseur à fines bulles garantit la demande en oxygène pour le traitement biologique, tandis qu'un diffuseur à grosses bulles assure, de manière intermittente, le mélange nécessaire pour contrôler l'épaisseur de la biomasse sur les garnissages de Bionest^{MD}.

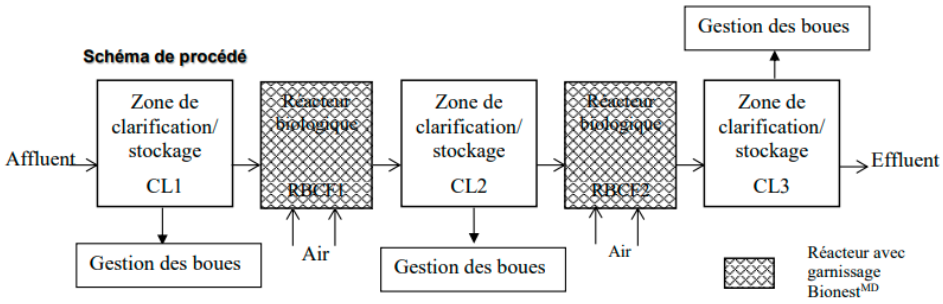


Figure 2.3 Schéma du processus Kamak^{MC} [45].

2.2.4 Ecoprocess™ Coco Filter, RotoFix^MC et Segflo^MC

Ces processus sont proposés par Premier Tech Aqua [46]–[48]. Le schéma du filtre Ecoprocess™ Coco est illustré dans la Figure 2.4. La chaîne de traitement se compose d'une fosse septique, d'un ou plusieurs pré-filtres, d'une station de pompage, d'un système de séparation de flux et de plusieurs biofiltres Ecoprocess™ Coco Filter (ECF) en parallèle. Chaque biofiltre est composé d'un média organique naturel à base de noix de coco dans un réservoir en fibre de verre et résine polyester composite, polyéthylène ou béton.

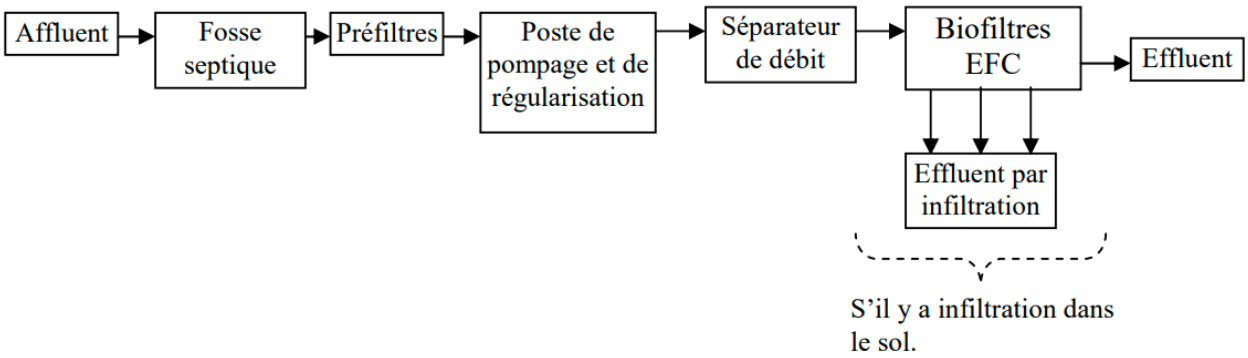


Figure 2.4 Schéma du processus Ecoprocess™ Coco Filter [48].

Le schéma du processus RotoFix^MC est illustré dans la Figure 2.5. Le traitement consiste en un traitement primaire par une fosse septique ou un décanteur, un bassin aéré, le bioréacteur RotoFix^MC et un décanteur secondaire. Le processus RotoFix^MC fonctionne selon le principe d'une culture fixée semi-submergée. La culture fixée entre en contact avec le substrat et avec l'air atmosphérique grâce au mouvement rotatif des rotors. Ces rotors sont constitués de plusieurs structures tubulaires avec de multiples ailettes internes.

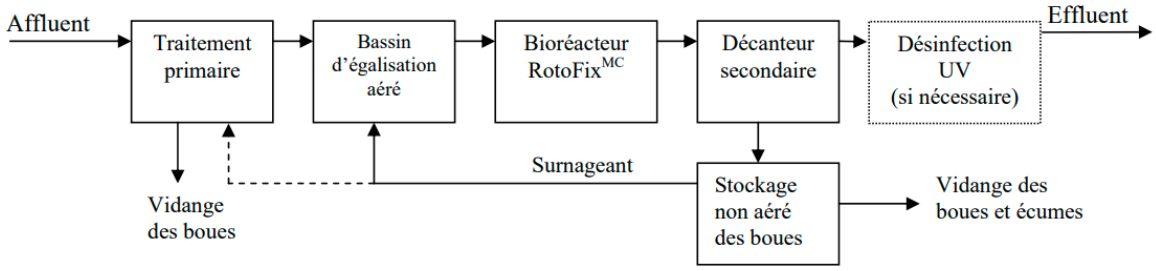


Figure 2.5 Schéma du processus RotoFix^MC [46].

Le schéma du processus Segflo^{MC} est illustré dans la Figure 2.6. Le processus Segflo™ fonctionne sur le concept du traitement biologique à culture fixée. La chaîne de traitement se compose d'une fosse septique (précédée d'un piège à graisse pour la cuisine dans le cas d'un restaurant ou d'un autre établissement commercial où des aliments sont préparés), d'une station de pompage, d'une ou deux unités Segflo™ en série et, si nécessaire, d'une décantation secondaire. Chaque unité Segflo™ est remplie d'un matériau de revêtement disposé en vrac. Un système de distribution à basse pression est utilisé pour assurer une distribution uniforme de l'eau sur toute la surface du revêtement. L'air de circulation du Segflo™ provient d'un bâtiment de service ou est chauffé avant d'entrer dans les unités.

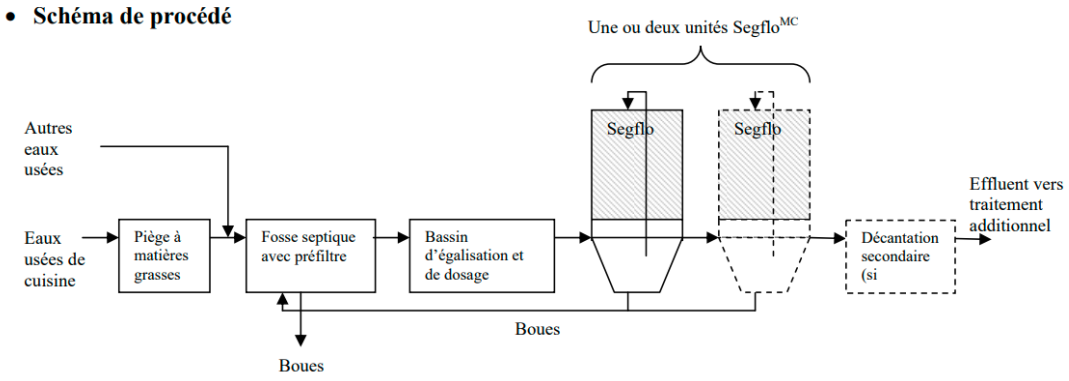


Figure 2.6 Schéma du processus Segflo^{MC} [47].

2.2.5 Biosor^{MD} 300-HR Enviro-Septic^{MD}

Ces processus sont opérés par DBO Expert inc. [49], [50]. Le schéma de la technologie BiosorMD 300-HR est illustré dans la Figure 2.7. La chaîne de traitement comprend une fosse septique, une station de pompage et un ou plusieurs biofiltres BiosorMD 300-HR en parallèle. Le biofiltre est un réservoir contenant un média réactif composé de fibres naturelles de petite taille. Les eaux usées sont distribuées sur toute la surface du média réactif à l'aide d'un système de distribution à basse pression. Une ventilation en contre-courant est utilisée pour assurer un apport en oxygène.

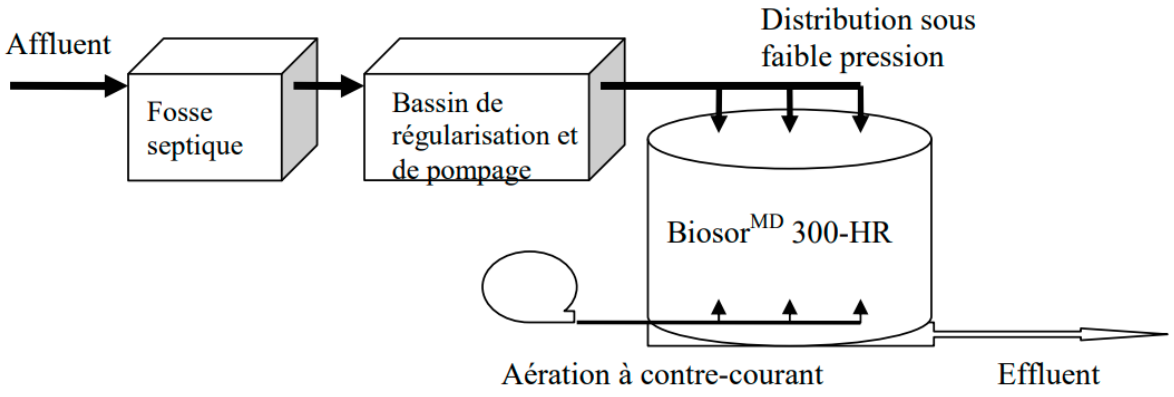


Figure 2.7 Schéma du processus Biosor^{MD} 300-HR [50].

Le schéma du processus Enviro-Septic^{MD} est illustré dans la Figure 2.8. La chaîne de traitement se compose d'une fosse septique, d'un distributeur de flux et du système Enviro-Septic^{MD}. Le système Enviro-Septic^{MD} est constitué de deux composants principaux et inséparables : les rangées de tuyaux Enviro-Septic^{MD} enterrées dans une couche de filtre de sable.

Les tuyaux séparent initialement les particules par un mécanisme de flottaison/décantation. L'eau s'infiltre ensuite à travers deux membranes en matériau synthétique recouvrant le tuyau. Ces membranes fournissent également une surface pour l'attachement de la culture microbienne, ce qui améliore le traitement des eaux usées ainsi que la distribution longitudinale. Ensuite, la couche de filtre de sable continue le traitement des eaux usées et facilite la dispersion des eaux usées avant leur infiltration dans le sol naturel. Par conséquent, le système Enviro-SepticMD assure à la fois les fonctions de traitement et de distribution de l'effluent.

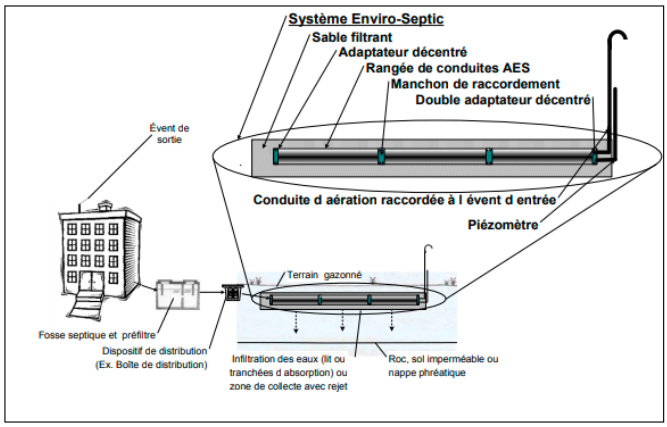


Figure 2.8 Schéma du processus Enviro-Septic^{MD} [49].

2.2.6 Eljen GSF-A_{42}

Le schéma du processus Eljen GSF-A_{42}, réalisé par Enviro-STEP Technologies inc., est illustré dans la Figure 2.9 [51]. La chaîne de traitement se compose d'une fosse septique avec préfiltre, d'une station de pompage, d'un distributeur de flux et du système Eljen GSF-A_{42}. Le processus Eljen GSF-A_{42} est une combinaison de biofiltration (filtration physique/biologique) et d'un filtre à sable pour traiter les eaux usées domestiques. Le processus Eljen GSF-A_{42} consiste en un biofiltre avec un matelas synthétique breveté offrant une grande surface d'attachement pour le biofilm bactérien et une zone de dispersion/traitement complémentaire de filtre à sable. L'aération passive du biofiltre est induite par le flux vertical descendant de l'effluent à travers le biofiltre.

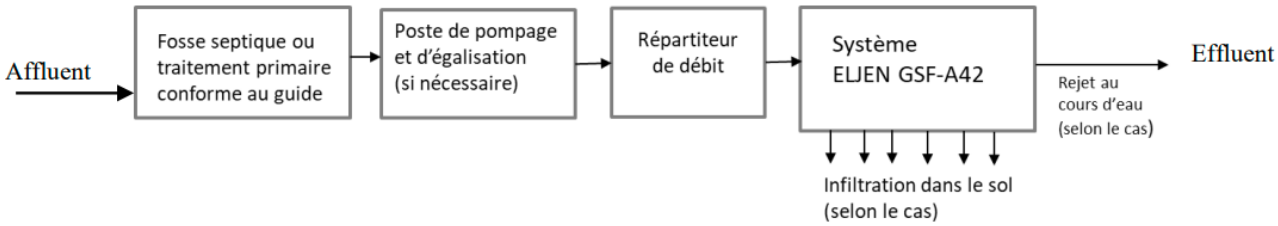


Figure 2.9 Schéma du processus ELJEN GSF-A_{42} [51].

2.2.7 Peenox^{MD}

Le schéma du processus Peenox^{MD} par Mabarex inc. est illustré dans la Figure 2.10, est un réacteur biologique avec une culture fixée sur des garnissages fluidisés immergés Peenox^{MD} [52]. Les garnissages sont en polyéthylène haute densité. La biomasse formée sur les garnissages entre en contact avec le substrat, les nutriments et l'oxygène dissous fourni par le diffuseur, ce qui aide également à l'agitation du liquide dans le réacteur.

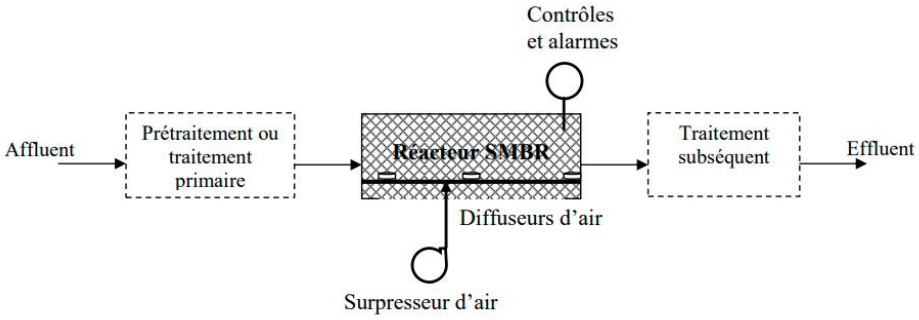


Figure 2.10 Schéma du processus Peenox^{MD} [52].

2.2.8 Performance des technologies

La réglementation pour les habitations isolées au Québec indique que les valeurs maximales autorisées pour la DBO_5, les SST et le PT sont respectivement de 15, 15 et 1 mg/L [22]. Ainsi, il est important d'évaluer la performance des technologies de biofiltration en fonction des spécifications. Selon les rapports disponibles [44]–[52], le Tableau 2-2 indique la composition des eaux usées influentes de chaque étude de cas sur différentes technologies. Il convient de noter que les eaux usées influentes ne sont pas nécessairement des eaux usées brutes et dépendent de l'étude de cas réalisée ; il peut s'agir d'un effluent primaire après une unité de prétraitement, une fosse septique ou une décantation primaire.

La composition de l'effluent final de chaque technologie à travers l'étude de cas réalisée est présentée dans le Tableau 2-3. Comme on peut le voir, les technologies de biofiltration réussissent principalement à réduire les valeurs de DCO, DOB_5 et SST. Les valeurs de DBO_5 et de TSS sont inférieures ou dans la plage de 15 mg/L (à l'exception de Peenox avec des TSS de 518 mg/L).

Les valeurs de phosphore total (PT) sont supérieures à la norme de rejet des effluents, variant de 1,3 à 5,1 mg/L. Il convient de noter que dans les autres technologies qui n'ont pas rapporté les valeurs de PT, elles n'ont pas mesuré le PT dans l'effluent. D'autre part, l'objectif des technologies était davantage axé sur la réduction de la DOB_5 et des SST plutôt que sur l'élimination des nutriments. Il est également important de noter qu'en l'absence de limitation sur l'azote total (NT), la concentration de NT rapportée varie entre 6,9 et 40,1 mg/L.

Tableau 2-2 Composition moyenne des eaux usées dans différentes technologies commerciales.

Paramètre	Technologies								
	Bionest [44][1]	Kamak [45][2]	Ecoprocess [48][3]	RotoFix [46][4]	Segflo [47][5]	Biosor [50][6]	Enviro septic [49][7]	Eljen [51][8]	Peenox [52][9]
COD	-	640	206		372	266	423	-	490
BOD_5	231	163	117	114.2	259	152	168	233	175
TSS	258	351	76	101.2	84	59	112	193	177
NH_4^+	-	-		-	41	41	28	-	39
NTK	-	-	27	-	55	50	47	48	54
NO_x	-	-	-	-	-	-	-	-	-
TP	-	-	-	-	15.7	6.1	5.1	6.7	8
pH	-	-	6.9	-	-	7.3	-	7	7.9

1 L'étude de cas a eu lieu à la banque du bureau de normalisation du Québec située au 17263, chemin de la Grande-Ligne dans le secteur de Lac Saint-Charles, à Québec. Les eaux usées provenaient d'un système d'égouts et étaient représentatives des eaux usées domestiques.

2 Les eaux usées brutes provenaient de la station de pompage des eaux usées de la municipalité de Grandes-Piles.

3 Le biofiltre était injecté par l'effluent primaire (après tamisage et désablage) de l'usine de traitement des eaux usées de la ville de Rivière-du-Loup.

4 L'étude de cas a été réalisée à l'usine de traitement des eaux usées municipales de Saint-Anicet. Deux biofiltres alimentés par l'effluent primaire de la station.

5 L'étude de cas a été prise sur un projet à grande échelle dans un restaurant du secteur de Masson-Angers à Gatineau.

6 Pendant le test, les eaux usées domestiques étaient fournies par une communauté d'égouts. Le biofiltre était alimenté par l'effluent primaire.

7 L'étude de cas a utilisé les eaux usées du système d'égouts du village de Stoke au Québec. Le biofiltre était alimenté par l'effluent primaire.

8 Les eaux usées brutes provenaient de la station de traitement des eaux usées de la base aérienne de la Garde nationale d'Otis à Falmouth, dans l'État américain du Massachusetts.

9 Les eaux usées domestiques sont fournies par la station de traitement de Mont-Saint-Grégoire en tant qu'effluent primaire.

Les concentrations de nutriments dans l'effluent des biofiltres montrent clairement l'importance du traitement tertiaire, en particulier pour l'élimination du PT.

Tableau 2-3 Composition moyenne de l'effluent final dans différentes technologies commerciales.

Paramètre	Technologies (enlèvement)								
	Bionest [44]	Kamak [45]	Ecoprocess [48]	RotoFix [46]	Segflo [47]	Biosor [50]	Enviro septic [49]	Eljen [51]	Peenox [52]
COD	-	54 (92%)	40 (81%)	-	119 (68%)	69 (74%)	17.9 (96%)	-	20 (96%)
BOD_5	4.4 (98%)	9 (95%)	6.8 (94%)	13.2 (88%)	18.8 (93%)	6 (96%)	3.7 (98%)	1.2 (99%)	3.9 (98%)
TSS	3.8 (99%)	5 (99%)	6.9 (91%)	15.5 (85%)	19.5 (77%)	6.6 (89%)	4.9 (96%)	2.4 (99%)	518
NH_4^+	-	-	-	-	30.8	3.6	3.4	-	0.4
NTK	-	-	3.8	-	-	7.6	2.5	40.9	-
NO_x	-	-	15.2	-	-	25	-	-	21.6
TP	-	-	-	-	-	5.1 (16%)	1.3 (75%0	4.8 (28%)	-
pH	-	-	7.3	-	-	7.5	7.5	-	7.5

2.2.9 Le traitement tertiaire

Le traitement tertiaire est une unité après le traitement secondaire qui élimine les polluants non biodégradables. En d'autres termes, cette étape capte les polluants récalcitrants, ici l'azote et le phosphore, que le traitement secondaire n'a pas pu éliminer [36]. Les technologies de biofiltration étudiées montrent une insuffisance dans l'élimination des nutriments à certains niveaux. Par conséquent, le besoin d'une unité de traitement tertiaire est évident pour compléter la chaîne de traitement des eaux usées domestiques.

Il existe divers procédés de traitement tertiaire tels que les procédés à membrane, les zones humides construites (ZHC), le traitement biologique (élimination du P ou de l'N), la coagulation/floculation, les filtres réactifs (FRs), etc.[36], [53]. La sélection d'une méthode en tant qu'unité de traitement tertiaire dépend généralement de deux considérations importantes : (i) l'abordabilité et (ii) l'acceptabilité en raison des préoccupations sociales et environnementales.

Le Tableau 2-4 indique plusieurs facteurs clés pour choisir une technologie en tant que méthode de traitement tertiaire [8], [54]. Tout d'abord, l'efficacité d'élimination est importante lorsqu'il s'agit de choisir la méthode. Comme la concentration de PT doit être inférieure à 1 mg/L, c'est le premier critère de sélection de la méthode.

Deuxièmement, la méthode doit avoir un faible coût en termes d'équipement, d'installation et de fonctionnement. Les procédés de membrane, de traitement biologique et de coagulation/flocculation sont logiques pour les usines de traitement des eaux usées municipales, mais pas applicables pour les systèmes à petite échelle. Ces technologies nécessitent des pompes, un système d'aération, divers instruments de contrôle, etc., ce qui les place dans la catégorie des technologies à coût élevé. Par contre, les ZHCs et les FRs qui utilisent principalement des matériaux naturels ou des sous-produits avec un système d'injection par gravité, résultent en un processus à faible coût.

D'autre part, le concept des systèmes de traitement sur site est d'occuper moins d'espace pour l'installation et d'être facile à utiliser. Comme les clients sont des maisons dans des zones isolées ou de petites communautés éloignées des systèmes centralisés, le système de traitement doit occuper moins de surface et nécessiter un minimum de maintenance pendant l'année. Par conséquent, les ZHCs nécessitent une grande surface et également un renouvellement de la couche après épuisement. Les filtres réactifs utilisent moins de surface et sont faciles à utiliser, ainsi qu'à remplacer après épuisement, mais l'autre problème des FRs, similaire à celui des ZHCs, est le colmatage.

Le dernier point à noter est la production de déchets ou de boues. Le procédé à membrane, le traitement biologique et la coagulation/flocculation produisent des déchets/boues qui doivent être contrôlés et évacués. Par contre, les ZHCs et les FRs doivent être remplacés par de nouvelles substances après avoir atteint leur limite.

Comme on peut le voir dans le Tableau 2-4, la sélection d'une méthode qui répond à toutes les spécifications est difficile. Par conséquent, il est important de prioriser les objectifs et ensuite de choisir la meilleure option. Parmi les méthodes mentionnées précédemment, les filtres réactifs (FRs) sont beaucoup utilisés récemment en raison de leur performance d'élimination, de leur facilité d'utilisation, de leur processus à faible coût et, plus important encore, de l'espace réduit nécessaire à leur fonctionnement. Les FRs sont similaires à des boîtes simples remplies de

matériaux réactifs qui éliminent ou réagissent avec les contenus des eaux usées. Dans ce cas, l'élimination du phosphore est l'objectif principal, car sa concentration élevée de plus de 1 mg/L n'est pas autorisée dans les masses d'eau. De cette manière, les matériaux réactifs sont également appelés matériaux absorbant le phosphore (MAP) car ils captent le phosphore de la solution aqueuse [55]–[58]. Il est vrai que l'élimination de l'azote est une priorité secondaire puisqu'il n'existe pas de réglementation stricte pour les résidents ciblés, mais les MAP potentiels doivent être pris en compte.

Tableau 2-4 Facteurs clés pour la sélection de la méthode de traitement tertiaire [8], [54].

Méthode	**Coût** *	**Production de boues**	**Opération et Maintenance**	**Espace requis** *	**Durée de vie** *	**Performance d'élimination** *
Membrane	Haute énergie requise	✓	• Encrassement • Nettoyage	moyen	moyen	élevé
CW	Faible	-	• Facile à utiliser • rénovation • Transport	élevé	élevé	Faible sur P / Élevé sur N
Traitement biologique (N&P)	Stockage/ transport des boues	✓	• Aération • Pompage • Processus continu	Nécessite généralement des systèmes séparés pour N & P	Moyen/ élevé	élevé
Coagulation/ floculation	Exigences chimiques élevées	-	• Nettoyage • Injection de sels métalliques	Moyen/ élevé	élevé	Élevé sur P
Filtres réactifs	Faible	-	• Facile à utiliser • Installation simple • Colmatage	Faible	Moyen/ élevé	Élevé sur P / faible sur N

* La comparaison est basée sur l'utilisation des filtres réactifs comme référence et sur l'évaluation des technologies par rapport à cette norme.

Il existe de nombreux matériaux utilisés comme MAP dans les FRs pour l'élimination du phosphore. En général, ils peuvent être classés en trois groupes : (i) naturels tels que la bauxite, la dolomite, la zéolite, le calcaire. (ii) sous-produits industriels (IBP) tels que les cendres volantes, les résidus de bauxite, les scories. (iii) Matériaux fabriqués tels que Filtra P, FiltraliteTM, Polonite et Leca. Le lecteur peut consulter une liste complète des MAP et leur classification dans l'étude de Gubernat et al.[59].

La sélection des MAP dépend de plusieurs paramètres. Il est vrai que la haute performance d'élimination est l'objectif, cependant, d'autres facteurs tels que le coût, la disponibilité et l'abondance sont également importants dans le choix. Par conséquent, il existe un équilibre entre la performance des PSM pour l'élimination des polluants et leur coût global. Les matériaux fabriqués sont capables d'une haute élimination des contaminants, tandis que les matériaux naturels ou les sous-produits industriels (SPI) sont économiques et accessibles. De cette manière, le type de MAP dépend vraiment des besoins du client ou des exigences cibles. Indépendamment de la sélection des MAP, les études sur les MAP couramment utilisés pour le traitement des eaux usées domestiques seront présentées dans le texte suivant. Deux objectifs doivent être pris en compte lors de l'utilisation des RFs comme unité de traitement :1) Performance d'élimination, 2) Performance hydraulique. La discussion sur la performance hydraulique, y compris le problème de colmatage, les raisons/mécanismes, les conséquences, les stratégies de contrôle/surveillance, etc., est présentée en détail dans le chapitre 5.

2.2.10 Bauxite

La bauxite est un MAP naturel qui est un mélange de minéraux riches en oxydes d'Al/Fe et généralement faible en métaux alcalins. En raison de la teneur élevée en Al et Fe dans la bauxite, le processus d'adsorption régit l'élimination du phosphore des solutions aqueuses. La plupart des études sur les bauxites ont été réalisées en mode discontinu (batch).

Drizo et al. ont utilisé 20 g de bauxite dans des solutions pures avec des concentrations comprises entre 2,5 et 40 mg P/L pendant une période de 24 heures. La capacité d'adsorption de Langmuir a montré une valeur de 0,6 g/kg pour la bauxite [60]. Une autre étude prise par Altundogan et Tumen sur 1 g de bauxite avec une taille moyenne de particule de 19 μm dans une solution de 100 mL avec une concentration de 10 mg/L de orthophosphate/phosphate d’organique a indiqué une élimination maximale du phosphate total (y compris l'ortho et l'organique) de 49,5 %. [61]. Des

échantillons de bauxite provenant du district de Mulanje, au Malawi, utilisés pour l'élimination du phosphore à partir d'une solution pure de phosphate de 100 mg/L, ont montré une capacité d'adsorption de 2,2 mg/g [62].

2.2.11 Dolomite

La dolomite est un minéral composé de carbonate de calcium et de magnésium, $CaMg(CO_3)_2$. Une étude en mode discontinu (batch) sur la dolomite avec une taille comprise entre 2 et 300 µm (médiane de 15 µm), composée de 68 % de calcite et 14 % de dolomite, a montré une haute capacité d'adsorption de phosphate de 377,8 mg/g [63]. Dans une étude similaire en mode discontinu sur des dolomites, réalisée par Hamoodi et al. [64], la performance d'élimination était d'environ 30 %. Les auteurs ont conclu que la faible dissolution de CaO à la surface de la dolomite diminuait considérablement l'élimination du phosphate de la solution aqueuse. Ayoub et al. [65] ont réalisé un test continu ascendant sur deux colonnes remplies de dolomite de taille inférieure à 75 µm. Ils ont rapporté une élimination presque complète du phosphate à partir d'une faible concentration initiale de phosphate (~ 0,3 mg/L) et en l'absence d'autres ions compétiteurs tels que HCO_3^-. Le pH joue un rôle clé dans la performance d'adsorption, des valeurs faibles fournissant une charge positive à la surface de la dolomite, ce qui aide à éliminer les ions phosphate à charge négative [65].

2.2.12 Zeolite

Les zéolithes appartiennent au groupe des aluminosilicates, produites naturellement généralement dans les fractures des roches volcaniques [66]. Le concept de l'élimination des nutriments par les zéolithes repose sur deux réactions en série [67]:

(i) Remplacement du calcium sur la zéolithe par des ions ammonium dans l'eau.

(ii) Précipitation des ions phosphate avec le calcium libéré par la zéolithe.

L'élimination de l'azote est suivie de l'élimination du phosphore lorsque suffisamment de calcium est libéré dans le milieu aqueux. Dans une étude réalisée par Karapınar, utilisant une zéolithe composée de 51,8 % de SiO_2, 18,3 % d'Al_2O_3 et 4,7 % de CaO pour l'élimination simultanée de l'ammonium et du phosphate, une solution de calcium a été ajoutée pour compenser [67]. De plus, une concentration plus élevée en phosphate réduit l'élimination de l'ammonium de l'eau. Lin et al. ont essayé de trouver les conditions optimales en utilisant des zéolithes pour l'élimination

simultanée de l'ammonium et du phosphate. Les expériences ont montré que la meilleure élimination des nutriments était obtenue à un pH de 9,3 et un rapport N/P supérieur à 3,3. Il convient de noter que la présence d'ions compétitifs tels que K a une influence négative sur l'élimination de l'ammonium [68].

2.2.13 Calcaire

Le calcaire (carbonate de calcium $CaCO_3$) est un type de roche sédimentaire carbonatée. Lamont et al. ont réalisé une série de tests en mode discontinu (batch) utilisant du calcaire naturel d'une taille d'environ 1 mm pour l'adsorption du phosphore. Une performance d'élimination de 80 % a été enregistrée sur une solution de phosphore avec une concentration initiale de 3 ppm [69]. L'étude continue sur des filtres en calcaire de taille comprise entre 0,2 et 2 mm alimentés par un effluent secondaire réel a montré que la concentration en phosphate atteignait 0,5 mg/L en 80 jours lorsque le pH était maintenu dans la gamme appropriée de 7 à 9. Les auteurs ont mentionné le mécanisme d'adsorption du calcaire pour l'élimination du phosphate [70].

2.2.14 Cendres de charbon volantes

Les cendres de charbon sont des matériaux produits dans les industries de la houille et des centrales électriques. Les cendres de charbon sont principalement utilisées pour l'élimination du phosphore par le biais de mécanismes d'adsorption/précipitation. Le mécanisme d'élimination dépend de la composition chimique des cendres volantes/de charbon, telles que le CaO, FeO, Al_2O_3, SiO_2, MgO. Il existe de nombreuses études sur l'utilisation des cendres de charbon pour l'élimination du phosphore [71]–[73] et la performance d'élimination varie entre 50 et 95 % en fonction du type de cendres volantes/de charbon et du mécanisme d'adsorption ou de précipitation. D'un autre côté, il y a quelques efforts pour l'élimination de l'azote en plus du phosphore. Myllymäki et al. ont montré l'utilisation des cendres volantes pour l'élimination simultanée de l'ammonium et du phosphate par la formation de struvite. Cependant, dans ce cas, une concentration élevée d'ammonium et de magnésium ainsi qu'un pH favorable compris entre 8,5 et 9 sont nécessaires [74]. La formation de struvite nécessite un rapport molaire égal de 1:1:1 pour NH_4:Mg:PO_4, ce qui constitue la meilleure méthode pour l'élimination simultanée du phosphore et de l'azote. Cependant, malgré cette approche, la performance d'élimination reste relativement faible, avec des taux d'élimination rapportés de 43 % pour l'ammonium et de 33 % pour le phosphate, respectivement.

2.2.15 Résidus de bauxite

Le résidu de bauxite, également appelé boue rouge, est un sous-produit industriel produit lors du processus d'extraction de l'alumine. Les principaux composés chimiques dans le résidu de bauxite sont les oxydes d'Al, Fe, Si, Ti et, dans une moindre mesure, de Ca. Par conséquent, on peut s'attendre à ce que le processus d'élimination du phosphore soit principalement régi par le mécanisme d'adsorption [75]. Dans l'étude réalisée par Barca et al., utilisant des résidus de bauxite carbonatés dans deux colonnes, la colonne A injectée par des eaux usées synthétiques contenant du phosphate et du nitrate, et la colonne B de la même manière mais avec du glucose comme matière organique, alimentées en continu pendant 54 jours, puis avec un effluent réel de zone humide artificielle (CW) jusqu'à 140 jours [76]. Les data ont montré une élimination totale de 98 % et 91 % du TP sur une période de 140 jours dans les colonnes A et B, respectivement. L'élimination totale de TN a été rapportée à 66 % et 87 % dans les colonnes A et B, respectivement. Contrairement aux croyances sur le mécanisme d'élimination du phosphore par la bauxite en raison de la grande quantité d'Al et de Fe, les auteurs ont mentionné la précipitation du Ca-P comme principal mécanisme d'élimination du phosphore. L'élimination du TN dans la colonne A est liée à l'adsorption sur les groupes fonctionnels (par exemple, OH) et dans la colonne B, à la dénitrification hétérotrophe en conditions anoxiques. Une conclusion similaire a été déclarée par Park et al. dans une étude en mode discontinu (batch) sur l'élimination du phosphate par deux résidus de bauxite différents, indiquant que même avec un faible pourcentage élémentaire de Ca (~3 %), le mécanisme de précipitation du Ca-P est le principal facteur d'élimination [77].

2.2.16 Scories

Les scories sont l'un des sous-produits industriels couramment utilisés pour l'élimination du phosphore des solutions aqueuses. Elles sont produites comme sous-produit de nombreuses industries telles que l'acier, le fer, l'exploitation minière, etc. Le type de processus de production détermine dans une certaine mesure la composition chimique des scories [78]. Les scories contiennent généralement des composés chimiques tels que SiO_2, Al_2O_3, Fe_2O_3, CaO et MgO. En fonction de ces composants, les scories peuvent être regroupées en scories alcalines ou non alcalines. Les scories alcalines, riches en CaO et MgO, éliminent le phosphore par précipitation, tandis que les scories non alcalines, contenant principalement du silicium, de l'aluminium et du fer, éliminent le phosphore par adsorption [79]. D'autre part, le pH opérationnel influence également

le mécanisme d'élimination, comme déclaré par Han et al. en utilisant des scories de convertisseur à oxygène basique (BOF). L'adsorption sur les oxyhydroxydes de fer (Fe-oxy) est le principal mécanisme d'élimination à pH neutre et acide, tandis que la précipitation du Ca-P régit l'élimination du phosphore à pH alcalin [80]. La disponibilité et l'abondance des scories sont des paramètres importants dans leur sélection, et les filtres sont ensuite conçus en fonction des scories disponibles.

Une étude de synthèse sur diverses scories de BF utilisées dans différents projets suédois a montré que les tests en mode discontinu (batch) sur trois différentes scories de BF ont révélé une élimination du phosphore allant de 25 à 100 % avec des solutions synthétiques de phosphore et entre 35 et 70 % en utilisant des eaux usées réelles [81]. Westholm a rapporté que les études en colonnes injectées par une solution synthétique et des eaux usées réelles utilisant des scories similaires ont atteint à une performance d'élimination de 86 à 100 % [81]. Barca et al. ont comparé deux scories d'acier alcalines, BOF) et du EAF, dans des expériences en mode discontinu (batch) pour l'élimination du phosphate [82]. Les analyses de composition chimique ont montré la raison de la différence de capacité d'élimination du phosphore. Comme la scorie BOF contient en moyenne 52 % de CaO contre 24 % dans la scorie EAF, elle a pu éliminer plus de 90 % de phosphore dans toutes les solutions de phosphate, contre 12-80 % d'élimination de phosphate par la scorie EAF. Par conséquent, la libération de Ca dans les scories alcalines est importante pendant le processus d'élimination du phosphore.

2.2.17 Filtra P

Filtra P est un MAP fabriqué à partir d'un mélange de calcaire, de gypse et d'oxydes de fer [83]. Les expériences en mode discontinu sur des solutions de phosphate réalisées par Herrmann et al. utilisant Filtra P, fourni par Nordkalk, Finlande, et provenant de la carrière de calcaire, ont montré une haute capacité d'élimination du phosphore de 4,3 g/kg de Filtra P [84]. Dans l'étude en colonne réalisée par Gustafsson et al., injectée par une solution synthétique de phosphate (5 mg/L) et d'ammonium (30 mg/L), une rétention de 98,2 % du phosphore a été enregistrée après 971 volumes de pores avec Filtra P de taille 2-13 mm. Cependant, il n'y a pas d'informations sur la conversion ou l'élimination de l'ammonium [83].

2.2.18 Filtralite P™

Filtralite P™ est un produit d'argile expansée composé d'argile minérale naturelle illite avec des additifs naturels. Il est produit en faisant passer des agrégats d'argile granulée à travers un four rotatif à 1200°C pour obtenir une teneur élevée en calcium dans le MAP [85]. Ádám et al. ont étudié une série d'expériences en mode discontinu (batch) et continu utilisant Filtralite P™ pour l'élimination du phosphore à partir d'effluents secondaires synthétiques et réels. L'étude des isothermes en mode discontinu a montré une faible élimination à des concentrations élevées de phosphate (~500 mg/L), mais une élimination efficace dans une gamme de concentrations faibles, entre 1 et 10 mg P/L [86]. L'étude en colonnes sur deux types d'eaux usées différentes, synthétiques avec 10 mg P/L et des eaux usées secondaires réelles avec 4,9 mg P/L, a montré une élimination du phosphore de 97 % à 54 % dans la première colonne et une élimination totale de 91 % du phosphore dans la deuxième colonne par Filtralite P™ [86].

2.2.19 Polonite

Le polonite est fabriqué à partir de roche sédimentaire siliceuse opoka en la chauffant à 900 °C.. L'étude a utilisé Polonite avec des valeurs élevées de Ca et de Si pour une solution synthétique de phosphate et d'ammonium [83]. La performance d'élimination du phosphore pour une injection continue en colonne avec des eaux usées synthétiques a été rapportée à 96,7 % pendant une période de 68 semaines de fonctionnement. Renman et al. ont étudié un filtre Polonite avec une taille comprise entre 2 et 5,6 mm pour traiter des eaux usées brutes avec une concentration initiale TN de 32 mg/L [87]. Les résultats ont montré que la conversion de l'ammonium en nitrate était supérieure à 90 %, cependant, l'élimination du nitrate était d'environ 18 %. Les auteurs ont mentionné que l'espace disponible pour la dissolution de l'oxygène dans le filtre, ainsi que la production remarquable de nitrites et de nitrates, confirmaient que la nitrification s'était produite dans la colonne.

CHAPITRE 3 ARTICLE 1: NITROGEN AND PHOSPHORUS REMOVAL BY REACTIVE FILTER AS A TERTIARY TREATMENT UNIT FOR ISOLATED HOUSES WITH HIGH ALKALINITY GROUNDWATER SOURCE

Journal of Water Process Engineering

Volume 62, 30 Avril 2024, 105319

Amin Tabatabaeefar [a*], Chad Penn [b], Dominique Claveau-Mallet [a**]

a Department of Civil, Geological and Mining Engineering, Polytechnique Montreal, Montreal, H3C 3A7, Quebec, Canada. amin.tabatabaeefar@polymtl.ca

b National Soil Erosion Research Laboratory, USDA Agricultural Research Service, 275 S. Russell St., West Lafayette, IN 47907, USA. chad.penn@usda.gov

** Corresponding author: Tel. (514) 340-4711 Ext. 2186, dominique.claveau-mallet@polymtl.ca

***** Contribution décrite : Conception, expérimentation, analyse, rédaction

Abstract

Three slag reactive filters were fed with elevated alkalinity household secondary effluent containing bicarbonates, bicarbonates+soluble organic carbon, and bicarbonates+particulate matter, respectively, for 30 days. Water was sampled for nutrient and metal concentrations, alkalinity and pH. Slags were analyzed with scanning electron microscopy. The slags were exhausted by calcite precipitation throughout the entire filter. Despite calcite accumulation in the filter, no pressure build-up was observed. The saturation index and shape of calcite precipitates were influenced by the presence or absence of organic carbon. Major reactions leading to filter exhaustion were calcite formation (3.1-3.3 g), hydroxide release (1.7-2.4 g), and hydroxyapatite formation (0.82-0.94 g). The results showed effective removal of phosphate during the period tested since column outlet concentrations never exceeded 1 mg P-PO_4/L. NH_4^+ removal of approximately 30% was measured in the inlet zone of the filter fed with biodegradable organic

carbon. Incomplete nitrification was observed in the inlet zone at pH between 8.75 and 9.5, while complete nitrification (formation of NO_3^-) was observed at pH between 8.5 and 8.75. Slag reactive filters are suitable for the tertiary treatment of high alkalinity domestic wastewater. The contribution of calcite to media exhaustion highlights the importance of alkalinity control processes coupled with reactive filters as a tertiary treatment.

Keywords: Phosphorus; EAF Slag; Domestic Wastewater; Nitrogen; Calcite

3.1 Introduction

Nutrients discharged to water bodies from wastewater can lead to severe problems such as eutrophication and aquatic toxicity. Eutrophication consists of excessive algal growth that results in oxygen depletion, aesthetics problems, impedance to recreational activities, changes in the ecosystem, and a shift towards non-native aquatic species [33], [34]. Therefore, nutrient discharge to surface waters from wastewater is regulated.

Nitrogen (N) and phosphorus (P) concentration and discharge threshold criteria vary among water bodies and countries. Poikane et al. [88] comprehensively reviewed the N and P limitations in surface waters according to European Water Frame Directive policies. The author declared the range of 0.25-4 and 0.25-35 mg N/L and the range of 5-500 and 8-660 μg P/L in various European lakes and rivers, respectively, for maintaining ideal ecological status. The United States Environmental Protection Agency limits the maximum total N and total P (TP) concentration in effluent discharged to surface waters at 10 mg N/L and 1 mg P/L [89], respectively. In some cases, however, water quality regulations are P-oriented rather than N-oriented. For example, the maximum P concentration in effluent of wastewater disposal systems for isolated dwellings is 1 mg P/L for sensitive ecosystems in Quebec, Canada, while there are no restriction regarding N [22].

Several methods have been utilized for wastewater P removal in large scale centralized systems such as enhanced biological phosphorus removal [90], chemical dosing [91], and membrane bioreactor [92]. The common method in small decentralized systems for several houses or a small community is the combination of a septic tank for primary treatment and drainfield (leachbed) for secondary treatment. However, due to operational challenges in decentralized treatment systems, there is no guarantee of meeting water quality thresholds as shown in several studies [14]–[17]. Therefore, addition of a tertiary treatment unit is necessary to remove target contaminants, specifically, P. This is important especially in remote areas or isolated houses that require small/compact treatment systems.

Adsorption, [93]–[96] and reactive filters (RFs) [97], [98] are potential P removal techniques among onsite treatment plants known as tertiary treatment units in target communities. RFs are a promising method for P removal from wastewater, yet not widely used in domestic wastewater applications. RFs consist of a bed of reactive materials, called P sorbing materials (PSM) which

react with P and remove it from wastewater [55]–[58]. Based on their origin, PSMs can be divided into three groups [99], [100]: natural materials, industrial by-products (IBP), and manufactured adsorbents. The most important parameters for PSM selection are local availability and cost (Figure 3.1). Although manufactured adsorbents provide good P removal performance, their high cost is a major disadvantage. Therefore, research efforts on less expensive materials with acceptable P removal efficiency have been conducted over the last two decades [101], [102].

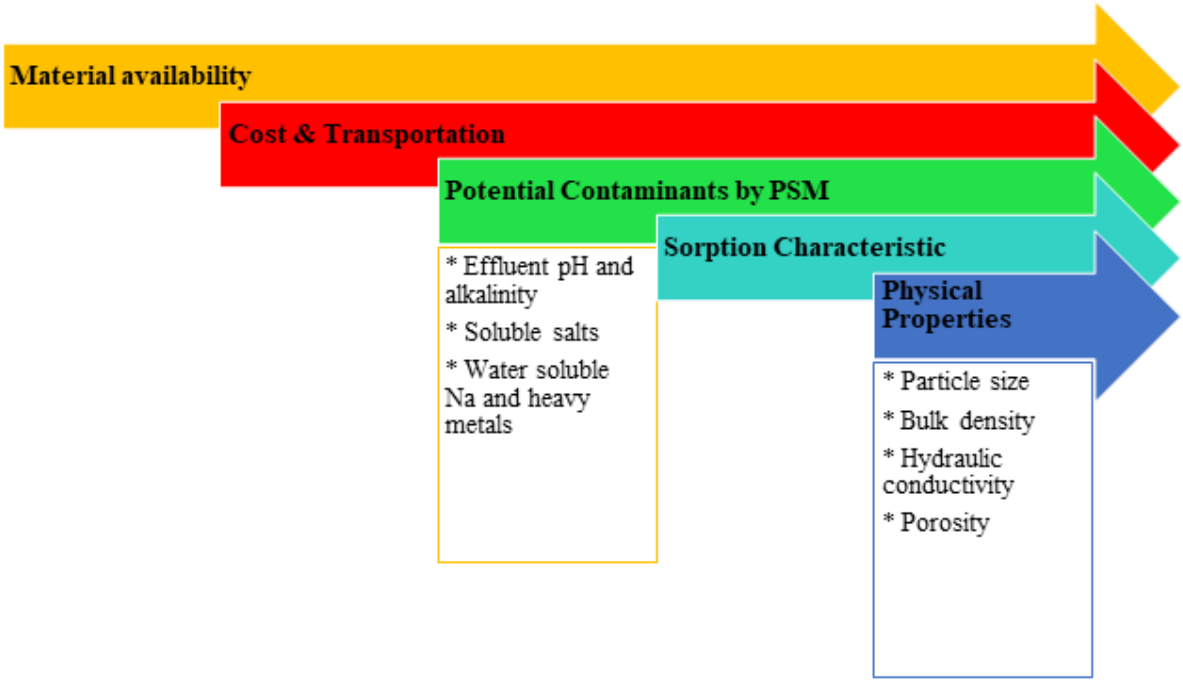


Figure 3.1 Parameters for PSM selection for P removal in reactive filters [102].

Industrial by-products recently gained attention due to their availability, low-cost, and P removal capacity. In addition, the re-use of by-products conserves landfill space. Steel slags are a by-product of the steel industry, which vary in character depending on material origin and production process. The most common slags used in wastewater treatment are blast furnace slag (BF), basic oxygen furnace (BOF), and electric arc furnace (EAF) [30], [31]. Steel slags may also be used as a soil amendment or fertilizer after P adsorption [103], [104]. Steel slags are utilized for P removal from wastewater, as a substrate in constructed wetlands (CWs), and as material in small-scale RFs [78], [105]–[108]. In the case of alkaline reactive filters, bubbling of CO_2-enriched air to the outlet stream is a practical solution to neutralize a high—pH effluent [23] in order to meet discharge standards [109], [110].

The proportion of the population served by municipal wastewater systems by province and territory of Canada is presented in Figure 3.2. Approximately 10-40% of the population are not connected to centralized treatment systems (around 11% in Quebec) [9]. The Federal Government [10], listed the number of Canadian residents relying on septic tank systems at about 25% - approximately 8 - 11 million people. This represents a large volume of discharge and a potential pollution source. Therefore, reducing P discharge from domestic septic systems would prevent an appreciable P load from entering surface waters.

Another major difference between locations with centralized and de-centralized treatment is that rural areas utilize groundwater for domestic water. Groundwater has a wide range of pH and alkalinity due to variations in geology and long underground contact time. Several studies reported alkalinity values of different locations in Slovenia, Sweden and United States between 12 to 500 mg HCO_3/L [111], [112]. Montcoudiol et al. characterized groundwater in several regions of Quebec and reported pH and HCO_3^- in the range of 5.98-9.66 and 17.1-572 mg/L, respectively [113]. The presence of HCO_3^- in groundwater and thus domestic wastewater leads to consumption of slag Ca for the precipitation of carbonates as calcite ($CaCO_3$).

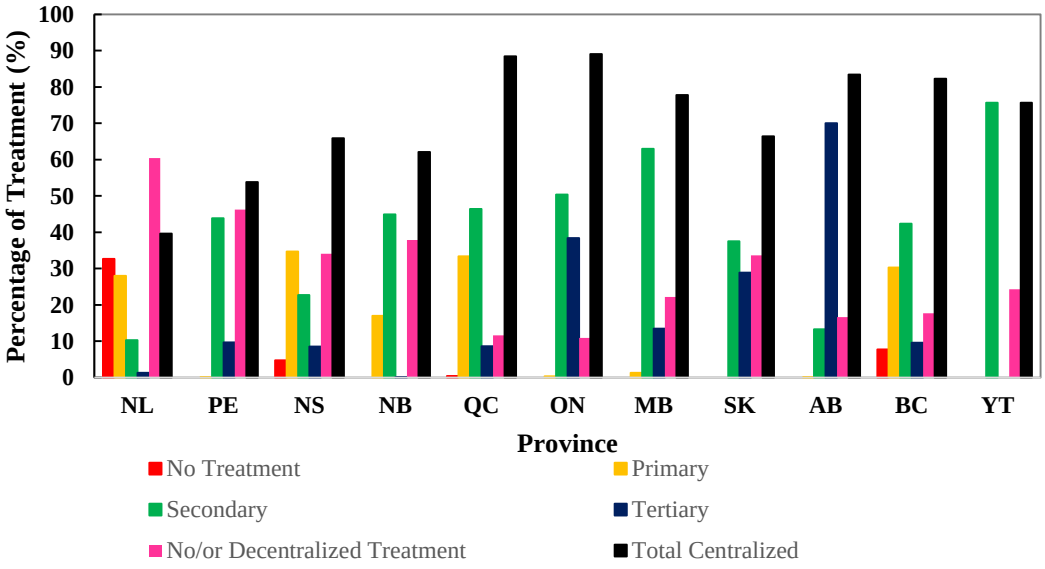


Figure 3.2 The proportion of the Canadian population served by municipal wastewater systems by province and territory in 2017 [9].

There are two major consequences of calcite formation. First, carbonates consume the available Ca from slag which cannot react with P and second, the newly formed minerals accumulate, hinder

flow, and reduce the contact between water and slag surfaces [114]. Therefore, it is critical to understand the effect of high alkalinity on Ca-rich RFs such as EAF slag filters.

There are numerous published articles on slag applications that focus on P sorption from wastewaters using batch experiments. Even among column and flow-cell studies, effluents consisted mostly of synthetic wastewater containing P only. There are also few published articles that utilized elevated alkalinity in wastewater and measurement of subsequent impacts on slag media. Furthermore, most past studies did not consider the impact of slag on nitrogen removal and potential biological activity, focusing only on P removal. Therefore, there is a need to study slag systems using wastewater with elevated alkalinity and possessing characteristics of household secondary effluent with regard to P removal, nitrogen cycling, slag exhaustion, and physical effects on the RF. In order to discern between various mechanisms that would occur simultaneously in real wastewater, it is necessary to study synthetic wastewater possessing several combinations of certain dissolved and solid wastewater components. In this article, a continuous gravity feeding system was applied to EAF slag columns to evaluate RF performance from high alkalinity secondary effluent. The objective was to evaluate slag columns for P and N removal, changes in physical flow characteristics, and slag physical properties, using continued loading of synthetic effluent in order to shed light on how different wastewater components may impact slag RF performance.

3.2 Materials

3.2.1 Slag media

Slag was provided by Bionest (EAF type, from Harsco Minerals, located in Contrecoeur, Québec). The chemical composition of the EAF slag is indicated in Table 3-1. The main elements in order of weight percentage were CaO, FeO, SiO_2, MgO, Al_2O_3, and MnO (>97%). The particle and bulk density of EAF slag was 3.35 and 1.62 g/cm^3, respectively, based on the methods described by Letshwenyo and Sima [115]. The slag particle size distribution was determined by manual sieving with sizes of 2.38, 3.35, 4.76, 6.7, 8 and 9.51 mm. The diameter less than 10 and 60% of all particles (D_{10} and D_{60}) were 5 and 7 mm, respectively.

Table 3-1 The chemical composition of EAF slag used in the column experiments.

Component	Unit	Value
CaO	%	30.1
FeO	%	25.5
Al2O3	%	5.7
SiO2	%	18.9
MgO	%	12.5
MnO	%	2.6
ZnO	%	0.01
S total	%	0.04
C total	%	0.15

3.2.2 Preparation of secondary effluent

The typical range in total nitrogen (TN), total phosphorus (TP), chemical oxygen demand (COD), total suspended solids (TSS), and pH in secondary effluent (e.g. the effluent after primary and secondary treatment units) among municipal and domestic wastewater treatment plants over the past two decades is shown in Table 3-2.

Table 3-2 Average composition of secondary effluent from various centralized and decentralized wastewater treatment units [24]–[27], [114], [116]–[137]. It should be noted that due to few data on onsite treatment effluents, municipal data was used.

	pH	TSS	TN	$N\text{-}NH_4$	$N\text{-}NO_3$	TP	COD	BOD_5
Avg	7.52	11	25	7.7	10.7	3.8	41	9.2
Median	7.46	7.50	17	3.6	9.2	1.9	28	8.9
Max.	8.30	30	77	44	26.2	26	90	18
Min.	6.65	1	6	0.22	1.35	0.15	8	2.2

29 data points were used.

The secondary effluents' composition gathered from different wastewater treatment systems located in USA, Canada, Korea, Japan, Switzerland, United Kingdom, Cyprus, Lithuania, New Zealand and China.

Average concentrations of TN, TP and COD in secondary effluents were selected as a target for the synthetic effluent utilized in this study. It should be noted that the TSS concentration of the synthetic effluent used in this study was 30-40 mg/L in order to raise the possibility of clogging.

Chemicals including $NaHCO_3$, KH_2PO_4, K_2HPO_4, NH_4Cl, $NaNO_3$, kaolin powder, cellulose powder (insoluble organic matter), sodium acetate trihydrate ($C_2H_9NaO_5$), and acetic acid (1 M) with tap water were used to simulate secondary effluent. Acetic acid/sodium acetate trihydrate buffer solution was chosen to simulate dissolved organic carbon.

Stock solutions consisting of TSS, TN, TP, and COD in the range of 30-40, 25-30, 3-4, and 30-40 mg/L, respectively, were prepared by adding kaolin (60%)/cellulose (40%), KH_2PO_4, K_2HPO_4, NH_4Cl, $NaNO_3$, and buffer solution of sodium acetate trihydrate ($C_2H_9NaO_5$)/acetic acid (dissolved organic carbon) to tap water. A total alkalinity of 350 mg HCO_3^-/L (including tap water) was provided by $NaHCO_3$ in order to achieve a value similar to groundwater. The alkalinity from acetic acid/sodium acetate averaged 10 to 12 mg HCO_3^-/L. This feedstock was renewed every 4-5 days to maintain the target concentrations at room temperature. It should be noted that many past studies did not utilize organic matter in their wastewater, which is likely to impact the system physically and chemically. Therefore, three types of feedstock were used: a) $NaHCO_3$ (Column 1-blank/control); b) $NaHCO_3$ with Kaolin and Cellulose (Column 2-including TSS mineral solids and poorly biodegradable organic solids); c) $NaHCO_3$ and sodium acetate/acetic acid (Column 3-including dissolved organic carbon). The composition of the three feedstock are indicated in Table 3-3.

Table 3-3 The feedstock components for each scenario: Column 1 (blank/control), Column 2 (including suspended solids) and Column 3 (including dissolved organic carbon).

	TP 3-4 mg/L	TN 25-30 mg/L		Alkalinity 350 mg HCO_3/L	COD 30-40 mg/L	TSS 30-40 mg/L
Materials	K_2HPO_4/KH_2PO_4 (50%/50%)	$NaNO_3$ (80%)	NH_4Cl (20%)	$NaHCO_3$	Buffer solution of Acetic Acid/ Sodium trihydrate acetate	Kaoline/cellulose (50%/50%)
Column 1-blank/control	✓	✓	✓	✓		
Column 2-TSS	✓	✓	✓	✓		✓
Column 3-organic matter	✓	✓	✓	✓	✓	

3.2.3 Column tests

The column schematic and sampling locations are illustrated in Figure 3.3. The sampling points were at 8 (section 1), 20 (section 2), and 37 cm (section 3) from the bottom of columns. The column was constructed with three consecutive flanges screwed to each other and therefore enabled dismantling without shaking or excess disturbance (Figure A1).

Columns were fed with three types of feedstock as indicated by Table 3-3. A peristaltic pump continuously applied wastewater from the feedstock supply to the top feeding pipe. Wastewater flowed by gravity from the feeding pipe to the bottom of the slag column (10 cm diameter and 50 cm height), which was filled with EAF slag possessing a range in particle diameter from 2.5-10 mm. Three-way valves connected to standpipe piezometers allowed periodic sampling and pressure head measurement.

The measured porosity (n) of EAF slag media was 0.52 [115]. The void hydraulic residence time (HRT_v) was 16 h based on calculated porosity. The HRT_V was set at 16 h based on typical ranges found in previous studies with similar media [100], [101]. The flow rate averaged 2.25 mL/min.

Four samples were taken daily (except weekends) from each sampling point for pH and alkalinity measurements. Anion and cation analyses were conducted at all sampling points two times per

week except for sampling point 3. The feedstock was sampled whenever it was renewed. The monitoring frequency was chosen to ensure potential time trends and parameter variability were captured. The monitoring time for the experiments was 30 days for each column. The experiment duration was designed to be long enough to observe media exhaustion within the filter (observation of pH below 10).

A metal leaching analysis during the column test showed that the current EAF slag has low solubility for most metals, but there are some with higher concentration such as Vanadium. Readers can find detailed information on the trace metal analysis in the supplementary file (Table A1).

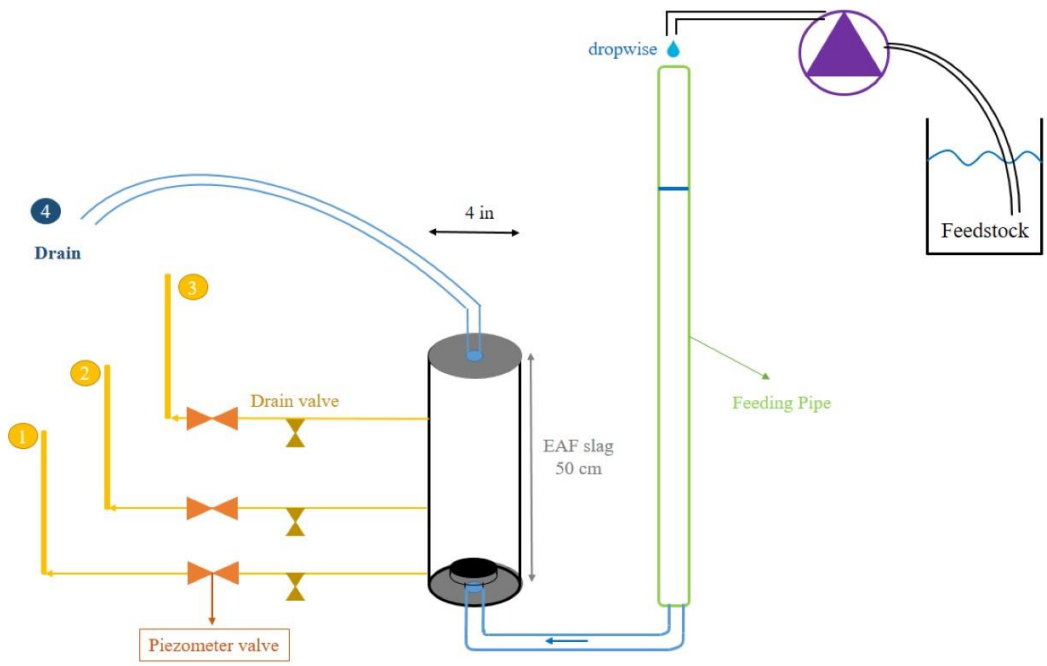


Figure 3.3 Schematic of experiment for testing P removal by EAF slag contained in a column, fed by simulated wastewater contained in a reservoir. Each number indicates a sampling point and piezometer.

3.2.4 Analytical determinations

The chemical composition of EAF slag was characterized through digestion using electrical fusion equipment (Claisse LeNeo) with the final digestate analyzed by Atomic Absorption (AA200 from Perkin Elmer). pH and alkalinity measurements were conducted according to the method presented in [138]. The pH endpoints of 8.3 and 4.5 were selected as endpoints for carbonate (CO_3^{2-}) a

bicarbonate (HCO_3^-) and bicarbonate to carbonic acid, respectively. Alkalinity was calculated by titration according to [138].

$$Alkalinity\ \left(mg\frac{CaCO3}{L}\right) = \frac{v * N * 50 * 1000}{V} \tag{3.1}$$

where v is the volume of titration, N is the acid sulfuric concentration and V is the volume of sample. The NH_4^+, NO_3^-, NO_2^-, PO_4^{3-}, Ca^{2+}, and Mg^{2+} concentration in water samples was measured by Ionic Chromatography (ICS 5000 AS-DP DIONEX Thermo Scientific). The concentration of metals from the leaching analysis was determined with an ICP-MS, Perkin Elmer NexION 300x.

3.2.5 Column dismantling and slag characterization

After each run, the column was dismantled. The three column sections were unscrewed and opened. Slag was carefully taken from each section with little disturbance for Scanning Electron Microscopy (SEM) analysis (mostly from bottom to middle of column). The SEM analysis was performed by a JEOL 7600F SEM-FEG. Samples were dried at room temperature for 24 hours and coated with gold nanoparticles; the SEM was set at 10 to 15 kV with a LEI mode. The working distance varied between 15 and 20 mm depending on location of the slag sample.

3.2.6 PHREEQC modeling

Saturation indices observed in water samples were calculated using the speciation software PHREEQC V.3 [73]. The selected database (phreeqc.dat) was modified by adding data for HAP and calcite [74,75]. The information related to selected phases and their solubility constants (Ksp) is listed in Table 3-4. For each water sample collected in each column, the measured pH, Ca^{2+}, Mg^{2+}, NO^{3-}, NO^{2-}, $NH4^+$, $PO4^{3-}$, and alkalinity were inserted in PHREEQC in units of mg/L except alkalinity which was in meq/kg. Saturation indices were calculated by PHREEQC for each water sample.

Table 3-4 Selected mineral phases and solubility constants used in PHREEQC modeling.

Phase	Chemical formula	Solubility constant (Log K_{sp})	Reference
HAP		-46	**[139]**
Amorphous calcium carbonate		-7.5	**[140]**

3.3 Results and discussion

During the duration of the experiment, there was no pressure build-up recorded by piezometers. After dismantling columns, a white surface was observed on the slag (not feasible to be sampled) among all columns. Photos of slags after dismantling columns are shown in the supplementary file (Figure A2). These white-surface slags were mostly observed in sections 1 and 2. Column 3 fed with dissolved organic carbon (buffer solution of acetic acid/sodium acetate) had a foul odor that was not observed in the other columns. Also, the slag in this column was somewhat slimy in texture. These observations indicated biological activity in Column 3.

3.3.1 Impact of alkalinity on slag exhaustion

Figure 3.4 and Figure 3.5 illustrate changes in pH and alkalinity during the experiment, respectively. In Column 1, there was a descending trend at sampling points 1 and 2 from 9.8 to 9 and 10.5 to 9.64, respectively. At sampling point 2, the pH increased to 11 over several days and then decreased to below 10 over four weeks. Similar results with small fluctuation in pH were observed in columns 2 and 3. The low pH values near the inlet at point 1 in all columns may be due to poor dissolution of CaO and OH groups with insufficient hydraulic residence time (HRT) and an excessive bicarbonate concentration in the feedstock. The pH at point 2 in all columns increased to a maximum level over a few days or one week, followed by a decrease. This indicates that this section of the column was exhausted during the experiment.

Conversely, points 3 and 4 in all columns maintained a high pH due to sufficient dissolution of slag minerals that were not exhausted. Similarly, Wang et al. [141] showed that slag pH and buffer capacity were consumed in a moving front as the feedstock solution moved from the inlet to outlet. It should be noted that the pH values at point 3 are greater than at point 4. This phenomenon may be related to the sampling technique that allowed outlet samples (point 4) to have contact with atmospheric air for approximately 1 hour and thus decreased pH.

For all columns, bicarbonate concentration increased as carbonate concentration decreased at points 1 and 2, but more intensively at point 2. Bicarbonate alkalinity was highest near the inlet (point 1), suggesting less reaction with slag contents to form possible carbonate products such as Mg/or $CaCO_3$. With time, total alkalinity at point 1 increased from low values to higher than the feedstock concentration. This could be related to progressive exhaustion of the slag, combined with

the high concentration of bicarbonates in the feed. The presence of organic carbon did not show a major change in alkalinity and pH levels when comparing Columns 2 and 3 with Column 1 (blank/control column without organic carbon). In other words, slag exhaustion is less affected by organic carbon source compared to inorganic carbon (i.e. bicarbonate).

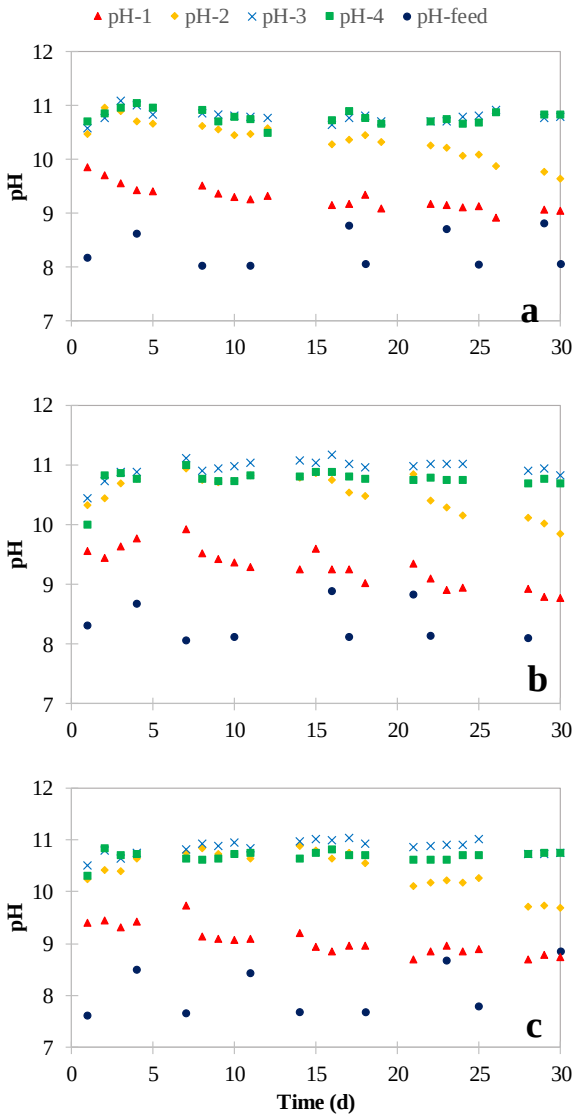


Figure 3.4 The variation of pH in a) Column 1 (without an organic carbon source), b) Column 2 (with cellulose as organic carbon source) and c) Column 3 (with acetic acid/sodium acetate buffer as soluble organic carbon source). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3.

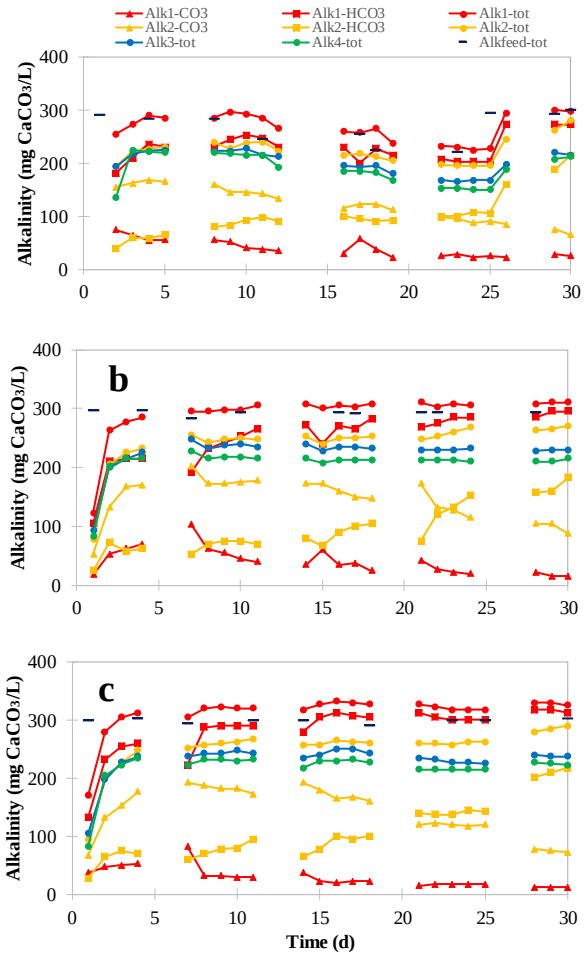


Figure 3.5 The variation of alkalinity in a) Column 1 (without an organic carbon source), b) Column 2 (with cellulose as organic carbon source) and c) Column 3 (with acetic acid/sodium acetate buffer as soluble organic carbon source). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3.

An overview of studies on reactive filter performance with similar PSMs and geometry among different wastewater alkalinities is shown in Table 3-5.

As can be seen in Table 3-5, the reactive filters operated over a longer time period achieved greater P removal with low to slightly alkaline wastewater. However, in this study with high alkalinity levels in the feedstock, point 2, which is representative of the middle section, would have exhausted in only 30 days. Therefore, it could be anticipated that such an exhaustion would occur further within the column, given longer operation time. The theoretical CaO consumption needed for the formation of calcite, hydroxyapatite (HAP) and hydroxyl group (OH^-) within the columns were calculated based on stoichiometric relations and are shown in Table 3-6. Units in Eq. 1 to 4 are M

for CaO_{needed}, CaO_{HAP}, $CaO_{Calcite}$, CaO_{pH}, $PO_4^{3-}{}_{outlet}$, $PO_4^{3-}{}_{inlet}$, OH^-, $Carbonate_{inlet}$ and $Carbonate_{outlet}$.

$$ACaO_{needed} = CaO_{HAP} + CaO_{Calcite} + CaO_{pH} \tag{3.2}$$

$$CaO_{HAP} = \left(\frac{5}{3}\right) \times \left[PO_{4_{outlet}} - PO_{4_{inlet}}\right] \tag{3.3}$$

$$CaO_{pH} = [OH^-]/2 \tag{3.4}$$

$$CaO_{Calcite} = [Carbonate_{inlet} - Carbonate_{outlet}] \tag{3.5}$$

Table 3-5 Comparison of total P (TP) removal among several slag reactive filters, and the conditions of testing, specifically, hydraulic retention time (HRT), duration, and alkalinity in influent wastewater.

Wastewater	Filter Media	Alkalinity in influent	Void Hydraulic retention time (HRTv)	Test Duration	TP range (mg P-PO4 /L)	Ref.
Synthetic	Polonite®	Slightly alkaline (pH between 7 to 9)	Not mentioned	90 days	< 1 (outlet stream)	**[55]**
Synthetic	Slags	140 mg $CaCO_3$/L	24 h	52 weeks	0.58-1.2 (outlet stream)	**[108]**
Grandes-Piles (Quebec) Water Resource Recovery Facility	EAF slag	86-192 mg $CaCO_3$/L	15 h	589 days	< 1 (outlet stream)	**[114]**
Synthetic	EAF slag	102 mg $CaCO_3$/L	14.9 h (0-517 days) 30.2 h (517-623 days)	623 days	< 0.05 (outlet stream)	**[142]**
Perdana Wastewater Plant	Slags	205 mg $CaCO_3$/L	1.67 day (total HRT)	20 days	Not mentioned (initial TP = 19)	**[143]**
Synthetic	EAF slag	300 mg $CaCO_3$/L	16 h	30 days	< 0.02 at point 4 0.32-0.47 at point 2	This study

The results show that the major CaO consumer in our RF was calcite. The required CaO for calcite formation is approximately equal to CaO consumed for HAP formation plus solution OH (for pH

increase). Exhaustion, which is defined as the consumption of CaO, decreases the RFs lifetime. Among the tested columns, there was not much difference between pH fluctuations or alkalinity values. Comparison of Column 1 (high alkalinity, no organic carbon or particulate content) with other columns showed the effect of bicarbonate concentration on exhaustion. This means that groundwater with high alkalinity promotes CaO consumption for calcite formation and therefore can negatively influence slag filter lifetime. The CaO exhaustion due to calcite formation is a non-reversible process. Therefore, the only solution to CaO exhaustion would be material replacement. In addition to stopping the process or bypassing the RFs, material replacement requires time and additional costs that are not suitable on a regular basis for users with on-site treatment. This conclusion highlights the importance of alkalinity controlling on-site wastewater treatment processes when coupled with tertiary treatment such as RFs.

Table 3-6 The theoretical CaO consumption for the formation of calcite, hydroxyapatite and OH- ions in three columns.

	Total CaO consumption (g) for three compounds			
Column	Calcite	HAP	OH	Total
Column 1	3.3	0.85	1.7	5.9
Column 2	3.1	0.94	2.5	6.6
Column 3	3.2	0.81	2,1	6.1
* The point 3 is selected as the highest point in the column and minimum contact with air.				

3.3.2 Fate of nutrients

The concentration of PO_4^{3-}, NO_3^-, NH_4^+, and NO_2^- in each column at each sampling point are shown in Figure 3.6 and Figure 3.7. The concentration of Ca^{2+} and Mg^{2+} are shown as supplementary information in Figure A3.

3.3.3 Phosphate removal at high pH

The P concentration at point 1 in Column 1 increased from 0.7 to 2 mg P-PO_4/L during the experiment. Similar trends were observed at point 1 in Column 2 (increasing from 1.5 to 2.5 mg P-PO_4/L) and Column 3 (increasing from 1.2 to 2.3 mg P-PO_4/L).

Phosphorus concentrations at point 2 began to increase above 0.5 mg P-PO_4/L at the end of the experiment in Columns 2 and 3 (Column 1 not measured), because of progressive slag exhaustion. The Ca^{2+} concentration mirrored PO_4^{3-} with a declining trend during the experiments. The PO_4^{3-} concentrations at the outlet (point 4) were in the range of undetectable concentration below 0.2 mg /L over the entire period in all columns.

3.3.4 Nitrogen removal by partial nitrification in the presence of organic matter

Most studies on RFs focused on P removal with little information about the fate of nitrogen species. There are several studies on NH_4^+ and NO_3^- removal by slags in which adsorption as intra/extra diffusion or chemisorption were defined as removal mechanisms [144], [145]. However, in these studies, the experiments were performed in batch mode and under low pH in N solutions without complex matrixes. The occurrence of biological-driven N removal in RFs has not been largely investigated. In general, biological activity in wastewater treatment is favored at temperatures between 10 to 30 ^oC and pH of 6.5-7.5. The presence of carbon sources and nutrients supports microbial growth in addition to inorganic nutrients such as S, K, Ca, Fe, Na and Cl [36].

The NO_3^- and NH_4^+ concentrations were mostly unchanged during the experiments in Column 1 (blank/control without organic carbon). In Column 3 (in presence of acetic acid), the NH_4^+ removal was in the range of 23-31%. In the first half of the experiment, Column 3 showed apparition of 6 to 11 mg N/L of NO_2^-, while in the second half of the experiment, NO_2^- concentrations were in the range of 1 to 2 mg N/L. Negligible concentrations of NO_2^- were observed in Columns 1 and 2.

The NH_4^+ in Column 3 was possibly transformed to NO_2^- and NO_3^- by autotrophic bacteria using alkalinity (CO_2 in water) as a carbon source. Despite NH_4^+ and inorganic carbon source present in all columns, Column 3 was the only column showing NO_2^- formation typical of nitrifying bacteria establishment. One possible hypothesis is the presence of soluble biodegradable carbon (acetic acid) in the influent of Column 3, which is a favorable condition for the growth of a biofilm with heterotrophic bacteria. The presence of a biofilm may have protected autotrophic bacteria from high-pH conditions in the column (pH between 9 and 9.5 in sampling point 1 of Column 3). Indeed, the formation of a biofilm promotes nitrogen removal through nitrification-denitrification [146]. In addition, mutualism between heterotrophic and autotrophic bacteria have been observed previously in other conditions: Keluskar et al. observed interdependence of *Nitrosomonas* and heterotrophic

bacteria in absence of external organic carbon source [147]. A second hypothesis is the possible development of heterotrophic nitrification bacteria, which were observed in slag filters [148], [149]. Therefore, in alkaline slag filters, the lability of carbon sources strongly influences the establishment of a biofilm, and consequently, the establishment of nitrifying microorganisms. NH_4^+ removal was achieved in sampling point 1 with pH between 9 and 9.5, with no additional NH_4^+ in sampling points 2 to 4 at pH between 10 and 11, which suggests that nitrifier organisms establish at pH below 9.5. Further research with supplementary analyses such as microbial analysis, dissolved oxygen, oxidation-reduction potential and COD measurement is needed to confirm this hypothesis.

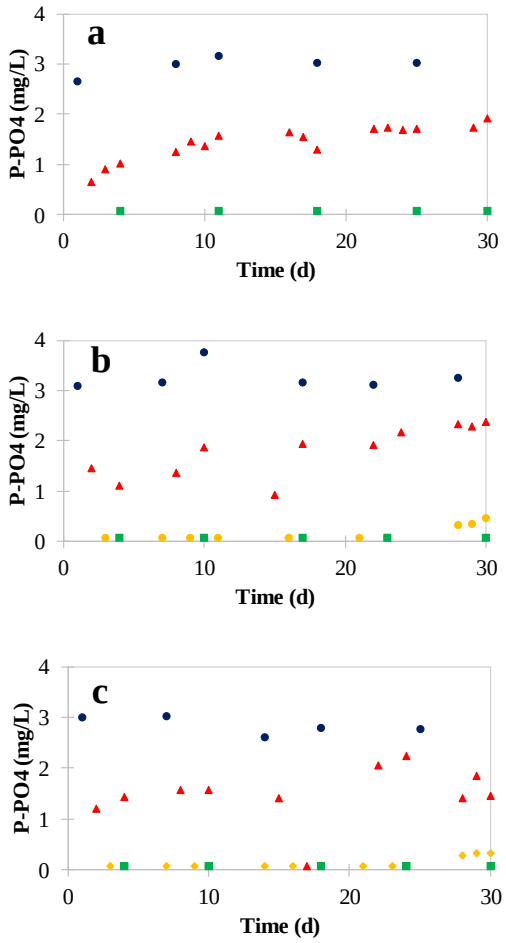


Figure 3.6 Changes in $PO4^{3-}$ concentrations in a) Column 1 (without an organic carbon source), b) Column 2 (with cellulose as organic carbon source) and c) Column 3 (with acetic acid/sodium acetate buffer as soluble organic carbon source) at four sampling points (feedstock ●, 1 ▲, 2 ♦ and 4 ■). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3.

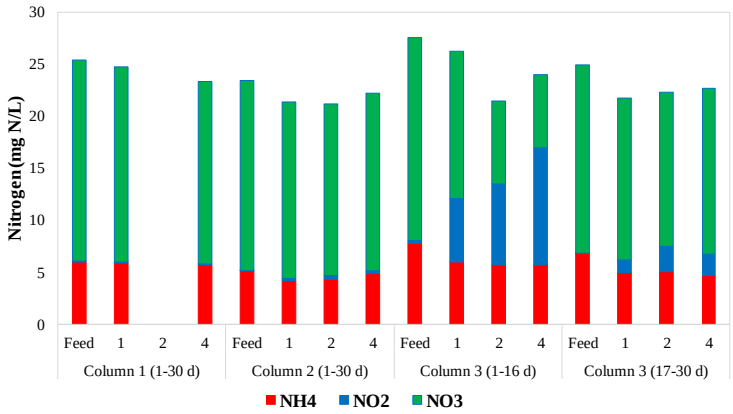


Figure 3.7 Changes in NO_3^-, NH_4^+ and NO_2^- concentrations in Column 1 to 3 at four sampling points (feedstock, 1, 2 and 4). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3.

3.3.5 Precipitation mechanism

The speciation modelling results are shown in Figure 3.8. All sampling points in all columns were oversaturated with calcite, suggesting that calcite precipitated throughout the entire length of columns rather than only within the inlet zone. This is an indication of an efficient use of the slag media as it is potentially all used and progressively exhausted before reaching its lifetime. This distribution of calcite through the filter may explain the absence of head loss development during the experiment. Therefore, in applications with high-alkalinity wastewater, slag filters must be operated with a contact time sufficiently short to distribute the precipitation of calcite throughout the entire length of the filter. At the same time, the contact time must be sufficiently long enough to allow efficient slag dissolution of Ca^{2+} contents and P precipitation.

HAP was oversaturated only at point 1 for all columns, which indicates that P removal by precipitation occurred only in the inlet region of the columns. HAP was strongly undersaturated in sampling points 2 and 4, in the range of SI = -1 to -3.5. It should be noted for HAP calculations in points 2 (except the last three days) and point 4, the PO_4^{3-} concentration was below the detection limit of 0.2 mg/L. For these points, the PO_4^{3-} concentration was fixed at 0.2 mg/L for SI calculation. Mean HAP SI were -1.3±0.7 and -2.2±0.5 in sampling point 2 (for Columns 2 and 3, respectively); -1.9±0.3, -2.2±0.6 and -3.1±0.5 in sampling point 4 (for Columns 1, 2 and 3, respectively; no observable time trend). Such negative SI values do not align with results of recent studies with slag filters [142] and they suggest that P may be removed by other mechanisms than HAP precipitation.

One possible explanation is the occurrence of calcium phosphate precipitation by Ca released from formed calcite in the filter [150].

The SI in all points and all columns were lower for Column 3 compared to other columns. In the column effluent, the calcite saturation index was 0.5 for Columns 1 and 2, and 0.2 for Column 3. An effluent with a calcite saturation index of 0.2 instead of 0.5 suggests additional precipitation. For example, considering an effluent with an inorganic carbon concentration of 0.4 mM at saturation index of 0.5, shifting to a saturation index of 0.2 requires an inorganic carbon concentration of 0.312 mM. For wastewater having an alkalinity of 300 mg/L, this corresponds to a 3% increase of $CaCO_3$ precipitation within the filter; while it corresponds to a 15% increase in wastewater with an alkalinity of 100 mg/L. The major difference between the columns is type of wastewater which includes soluble organic carbon (acetic acid/sodium acetate) for Column 3, which suggests that in presence of soluble organic carbon, calcite is more precipitated as it reaches a saturation index closer to equilibrium.

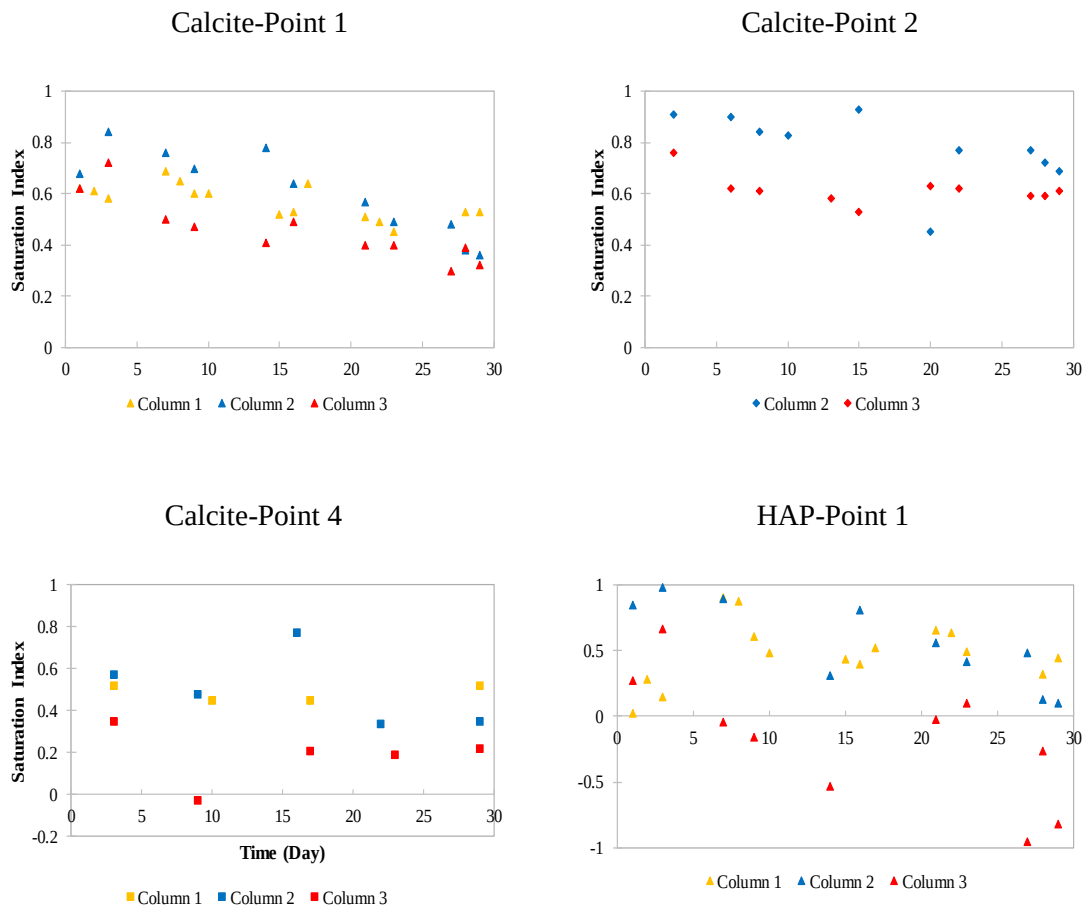
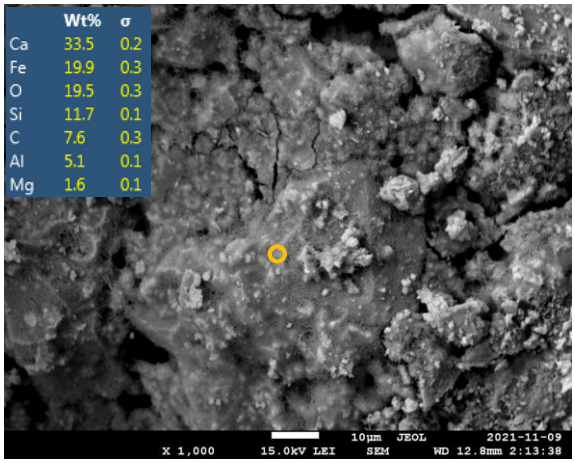


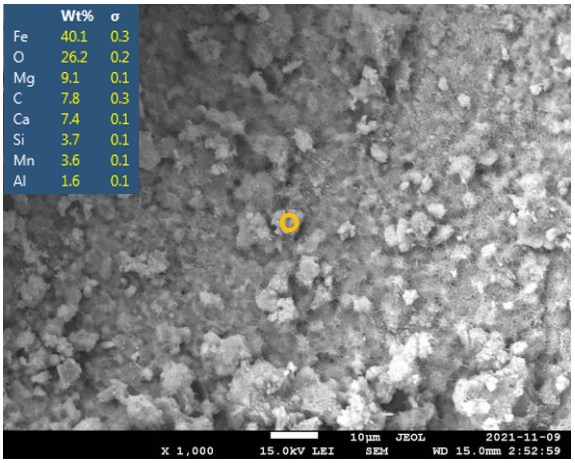
Figure 3.8 Saturation indices for calcite (pKsp = 7.5) and HAP (pKsp = 46) among each column at points 1, 2 and 4 within each column. Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3.

The SEM images of EAF slag with EDS data before and after the experiment are shown in **Error! Reference source not found.**. The fresh slag surface was heterogeneous with porous structure (Figure 3.9a&b). Used slag showed similar patterns of intact surfaces, but with scattered agglomerations of particles showing different shapes and sizes. These circle shape particles are similar to those reported in [151] which may be metal-phosphates and/or calcite. The surface composition of particles included Ca, C and O elements suggesting calcite formation. The presence of P in particles suggests PO_4^{3-} removal via P mineral formation. In Columns 1 and 2, circle-shaped crystals with 0.5 to 1 μm diameter were seen in coral-shaped agglomerations. In addition, in Column 2, bigger particles (10 to 50 μm) are present and are likely suspended solids from the influent (kaolinite and cellulose, showing high percentage of C, O, Al, Fe, and Si). In the bottom

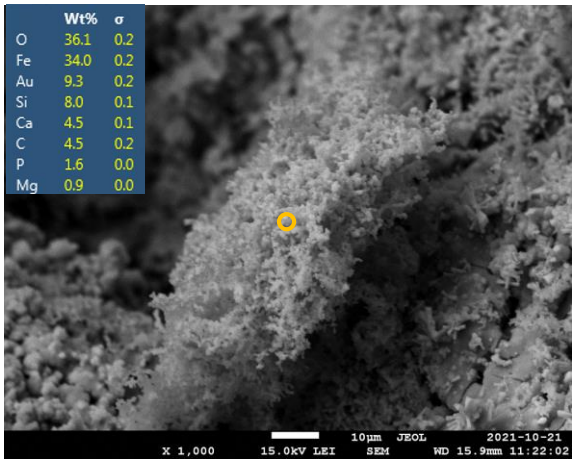
of Column 3, however, crystals had a smaller diameter (smaller than 0.2 μm) and were densely organized in bulb-shaped structures of 10 μm. The shape of crystals changed to coral-shaped structures in point 2 of Column 3. The results suggest a relationship between the shape of calcite solids and supersaturation index observed in the filter. In presence of organic matter, calcite crystals are densely organized and possess lower saturation index. This hypothesis requires further investigation to understand conditions that favor long-term calcite accumulation and pressure build-up in the filter and to accurately predict filter lifetime.



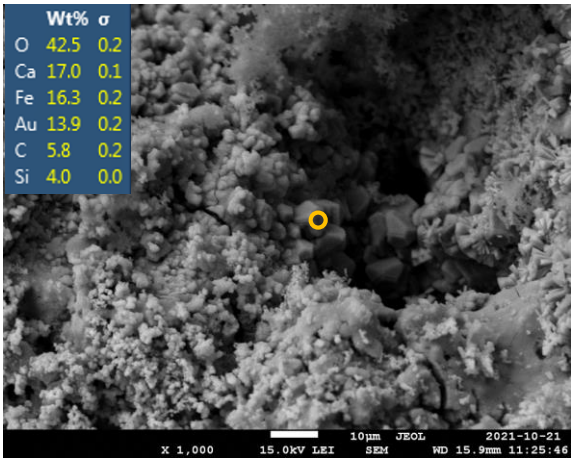
a (fresh slag)



b (fresh slag)

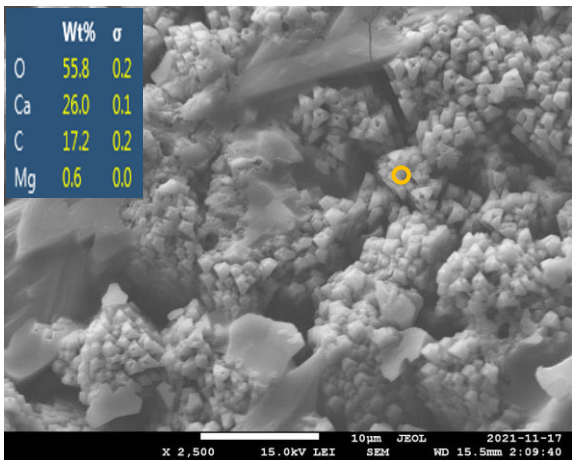


c (Column 1-bottom)

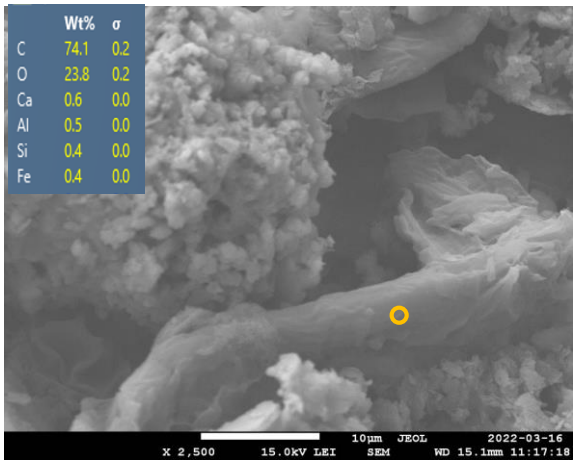


d (Column 1-bottom)

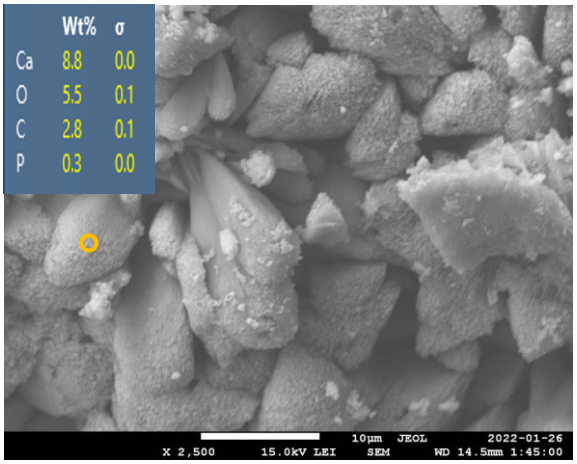
Figure 3.9 The SEM images of EAF slag: a & b) fresh slag, c & d) Column 1 (bottom), e) Column 1 (point 2), f) Column 2 (bottom), g) Column 3 (point 1), h) Column 3 (point 2). The SEM condition for a to d, x = 1000 and e to h, x =2500 all in 15 kV. EDS data is indicated in the top left of each figure.



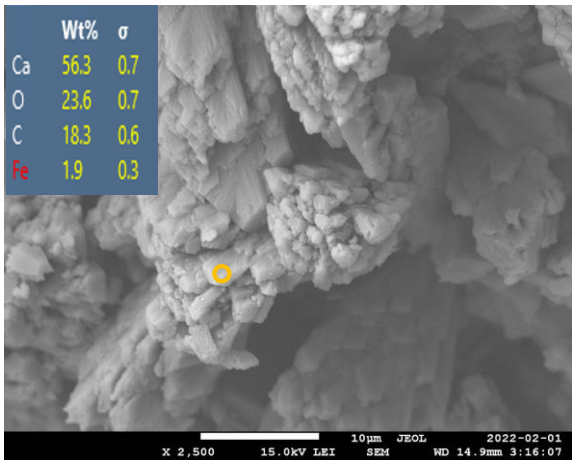
e (Column 1-point 2)



f (Column 2-bottom)



g (Column 3-point 1)



h (Column 3-point 2)

Figure 3.9 The SEM images of EAF slag: a & b) fresh slag, c & d) Column 1 (bottom), e) Column 1 (point 2), f) Column 2 (bottom), g) Column 3 (point 1), h) Column 3 (point 2). The SEM condition for a to d, x = 1000 and e to h, x =2500 all in 15 kV. EDS data is indicated in the top left of each figure (suite).

3.4 Conclusion

The RFs were exhausted by $CaCO_3$ precipitation throughout the whole filter, as suggested by saturation index values > zero at all sampling points of the filters, and by observation of precipitate accumulation on slag surface. Major reactions leading to filter exhaustion were the formation of $CaCO_3$ (3.1-3.3 g), the release of OH for pH increase (1.7-2.4 g) and the formation of $Ca_5(PO_4)_3OH$ (0.82-0.94 g), expressed as g of CaO consumed during the experiment. The significative contribution of $CaCO_3$ precipitation to media exhaustion highlights the importance of alkalinity control for wastewater treatment processes when coupled with RFs as a tertiary treatment.

Although the experiment was relatively short-term, the great filter exhaustion showed the effect of high alkalinity. Despite $CaCO_3$ accumulation in the filter, no pressure build-up or major clogging were observed, potentially due to uniform formation/distribution of the mineral throughout the column. It should be noted that the chemical precipitation of minerals did not result in clogging, however, physical clogging by suspended solids and biological clogging through biofilm formation are progressive phenomena that requires more time to develop. The saturation index and shape of $CaCO_3$ was influenced by the absence or presence of organic matter, suggesting that long-term hydraulic behavior of RF and progressive clogging may be influenced by the composition of wastewater.

The results showed effective removal of phosphate during the period tested. Although column outlet concentrations never exceeded 1 mg P-PO_4/L, the sub-section studies demonstrated fast exhaustion near the inlet and middle of column, similar to observations by [141]. The pH at points near the middle of column, after an ascending period, decreased to below 9 and 10, respectively, as P concentrations increased.

Nitrogen removal was observed in the filter even in a high pH environment. The lability of carbon source is important since easily biodegradable COD could improve the nitrification process, possibly because of autotrophic bacteria being protected by heterotrophic bacteria, or because of the potential presence of heterotrophic nitrifier organisms. NH_4^+ removal of approximately 30% was observed in the inlet zone of the filter fed with wastewater containing readily biodegradable soluble organic carbon. Incomplete nitrification (formation of NO_2^-) was observed in the inlet zone at pH between 8.75 and 9.5, while complete nitrification (formation of NO_3^-) was observed at pH between 8.5 and 8.75.

Finally, the results indicate that EAF slag RFs achieve tertiary treatment for domestic wastewater with high alkalinity, in North America context focused on removal of P. Slag RFs reduce P below the recommended threshold values (TP < 1 mg/L) for domestic effluent release.

3.5 Acknowledgement

This project was funded by the Canada Research Chair for Decentralized and Small-Scale Water Treatment (file number 950-232871). Amin Tabatabaeefar would like to thank Fayolle Canada for the receiving of the scholarship and wish to thank the Foundation et Alumni de Polytechnique Montréal and Polytechnique Montréal for their work. We appreciate Bionest, the partner company,

who provided the EAF slags for the project. Also, we should say our thanks to Gabriel St-Jean the LGE technician who has helped a lot on setup preparation, analytical determinations and other recommendations during the project.

CHAPITRE 4 ÉTUDE COMPLÈTE SUR LES SCORIES DE FOUR À ARC ÉLECTRIQUE POUR LE TRAITEMENT TERTIAIRE DES EFFLUENTS DOMESTIQUES SECONDAIRES

4.1 Introduction

L'eutrophisation se produit lorsque les écosystèmes aquatiques sont enrichis en nutriments, azote (N) et phosphore (P), ce qui augmente la croissance des plantes et des algues dans l'eau [152], [153]. Ce problème mondial a des conséquences néfastes telles que la mortalité des poissons, la prolifération des algues, la dégradation de la qualité de l'eau et, finalement, l'effondrement des écosystèmes aquatiques [154], [155]. La gamme de rejets de phosphore total provenant des stations de traitement des eaux usées municipales dans divers pays tels que la Chine, l'Australie, l'Italie, la Suède, les États-Unis et le Brésil se situe principalement entre 0,2-1, 0,1-4, 0,8-1,5, 0,2-0,4, 0,3-1,2 et 0,4-3,2 mg P/L, respectivement [156]. En réponse, plusieurs réglementations ont été mises en place pour contrôler les rejets de phosphore (P) dans les cours d'eau [157], [158].

Différentes méthodes sont utilisées pour l'élimination du phosphore des eaux usées, telles que l'élimination biologique améliorée du phosphore [159], la précipitation chimique [160], l'électrochimie [161], [162], les zones humides construites [163], l'adsorption [164], [165] et les filtres réactifs [114], [166]. Divers aspects influencent le choix de la méthode. Cependant, le filtre réactif utilisant des matériaux dérivés de sous-produits industriels présente des avantages tels qu'une faible empreinte, un coût abordable, une abondance de matériaux IBP et une simplicité d'utilisation [102]. Plusieurs études ont examiné le potentiel des sous-produits industriels tels que les cendres de charbon [167], le sable de quartz [168] et le schiste bitumineux [169] pour l'élimination des nutriments. La plupart des études sur les filtres réactifs pour le traitement des eaux usées ont utilisé des scories pour l'élimination du phosphore en raison de leur haute performance d'élimination [170]–[172].

De nombreuses études ont été menées sur l'utilisation des scories pour l'élimination du phosphore. Une préoccupation majeure concerne la variabilité des scories en termes de propriétés chimiques et physiques, ainsi que l'élimination conséquente du phosphore. Le mécanisme d'élimination des scories dépend de leur nature. Les scories sont généralement riches en Fe, Si et Al [72], [173] mais contiennent principalement des métaux alcalins tels que le Ca et le Mg, qui peuvent précipiter le phosphore en solution. Il est à noter que le processus d'élimination est toujours un mélange

d'adsorption avec Fe/Al et de précipitation avec Ca/Mg ; cependant, l'intensité de chaque mécanisme varie [172]. Ainsi, les caractéristiques des scories doivent être prises en compte lors de la conception du filtre. L'une des principales préoccupations est que le mécanisme de précipitation entraîne un épuisement non réversible des scories et un colmatage supplémentaire dû à l'accumulation de particules. Les études précédentes sur les scories étaient principalement des tests en mode discontinu [79], [170], [172] ou en mode continu, dans des conditions contrôlées, en utilisant des solutions de phosphate avec une matrice simple [174]. Ces tests ne représentent pas des conditions réalistes d'une matrice complexe. En d'autres termes, la capacité d'élimination du phosphore et les prévisions de durée de vie ne sont pas fiables, surtout pour des prévisions à long terme. Dans cette étude, un filtre à scories a été alimenté avec des eaux usées réelles contenant d'autres constituants tels que l'azote, la matière organique et parfois une concentration élevée de carbone inorganique. L'objectif principal de cette étude était d'évaluer l'élimination du phosphore par le filtre à scories en se basant sur les concentrations de phosphore dans l'influent et l'effluent [97], [175]. La présence des constituants mentionnés ci-dessus peut influencer le comportement du filtre à scories. Par exemple, une alcalinité suffisante dans le système peut favoriser la nitrification. Comme l'ont mentionné Metcalf & Eddy [36] le processus de nitrification nécessite environ 7,1 mg d'alcalinité pour chaque mg d'ammoniac nitrifié. Il convient de noter que la présence d'alcalinité et d'azote sous forme d'ammonium est nécessaire pour que la nitrification se produise, mais le processus nécessite également du carbone organique pour l'activité biologique. La demande chimique en oxygène dans les effluents secondaires domestiques se situe dans une plage basse, entre 20 et 40 mg/L. Cette concentration de demande chimique en oxygène dans les eaux usées secondaires serait-elle suffisante pour l'activité biologique ? Une étude précédente a montré des signes de nitrification [176]; cependant, des analyses supplémentaires telles que l'oxygène dissous , la demande chimique en oxygène et le potentiel d'oxydoréduction (ORP) sont nécessaires pour confirmer la nitrification et l'activité biologique. Cela est nécessaire car plusieurs études ont rapporté l'adsorption de NO_3^- et NH_4^+ par les scories [145], [177].

4.2 Matériaux

4.2.1 Scories

Les scories (de type four à arc électrique (EAF)) provenant de Harsco Minerals, situées à Contrecoeur, ont été utilisées. La composition chimique des scories est indiquée dans le Tableau

4-1. Les particules de scories ont des tailles comprises entre 1 et 12,5 mm, la majorité se situant entre 3 et 7 mm.

Tableau 4-1 La composition chimique des scories de four à arc électrique (EAF) utilisées dans cette étude.

Composant	Unit	Valeur
CaO	%	26.9
FeO	%	30.5
Al2O3	%	5.4
SiO2	%	15.1
MgO	%	11.6
MnO	%	1.84
ZnO	%	< 0.01
S total	%	0.04
C total	%	0.22

4.2.2 Préparation de l'influent et des solutions

Deux eaux usées secondaires, synthétiques et réelles, ont été utilisées et leur composition moyenne est indiquée dans le Tableau 4-2. Les eaux usées synthétiques ont été préparées en ajoutant du KH_2PO_4, K_2HPO_4, $NaNO_3$, NH_4Cl, $NaHCO_3$, une solution tampon d'acide acétique/acetate de sodium et de la poudre de kaolin comme solide en suspension (SS) à de l'eau du robinet. Les eaux usées secondaires réelles ont été fournies par la Régie d'Assainissement des Eaux du Bassin de Laprairie (RAEBL). Du $NaHCO_3$ a été ajouté aux eaux usées réelles pour augmenter leur alcalinité à un niveau représentatif des applications décentralisées. La Rhodamine WT (20 %) a été utilisée pour les tests de traceurs (fisherscientific).

Tableau 4-2 La composition moyenne des effluents secondaires synthétiques et réels utilisés dans cette étude.

	$P\text{-}PO_4$	$N\text{-}NO_3$	$N\text{-}NH_4$	$N\text{-}NO_2$	SS	COD	Mg	Ca	Alcalinité
	mg/L								mg $CaCO_3$/L
Synthétique	2.8	21.5	5.6	0.1	40	28.4	8.4	30.6	298
Réel	< 0.06	20.3	0.51	0.34	-	31.3	17.8	26.8	296

4.2.3 Tests en colonne

Deux colonnes de scories identiques, entièrement remplies, Colonne 1-S et Colonne 2-R, ont été alimentées respectivement par des effluents secondaires synthétiques et réels pendant une période de 6 mois. Les colonnes avaient un diamètre de 10 cm et une hauteur de 50 cm. L'injection d'entrée se faisait à 5 cm au-dessus du fond. Trois points d'échantillonnage, à des hauteurs de 10 cm (point 1), 25 cm (point 2) et 40 cm (point 3) par rapport au fond de la colonne, étaient connectés à des piézomètres. Une pompe péristaltique déplaçait les eaux usées, rafraîchies tous les 3 à 4 jours, du point d'alimentation vers le sommet du tuyau d'alimentation, puis par gravité vers chaque colonne. Le temps de résidence hydraulique des vides était de 16 heures avec un débit moyen de 2,2 mL/min dans les deux colonnes. Le pH et l'alcalinité ont été analysés pendant quatre mois. De plus, les ions dominants, la demande chimique en oxygène et la concentration d'oxygène dissous ainsi que le potentiel d'oxydoréduction (POR) ont été mesurés. Pendant les trois derniers jours, un test de traceur a été réalisé par injection d'un volume connu de rhodamine dans les deux colonnes pour analyser les performances hydrauliques.

4.2.4 Déterminations analytiques

L'alcalinité a été calculée par titrage selon [138]. Les points de fin de titrage de pH 8,3 et 4,5 ont été sélectionnés comme points de fin pour le carbonate (CO_3^{2-}), le bicarbonate (HCO_3^-) et le bicarbonate vers l'acide carbonique, respectivement. La composition chimique des scories de four à arc électrique (EAF) a été caractérisée par digestion à l'aide d'un équipement de fusion électrique (Claisse LeNeo), avec le digestat final analysé par absorption atomique (AA200 de Perkin Elmer). Le pH et l'alcalinité ont été mesurés selon la méthode décrite dans [138]. La concentration des anions et cations dans les échantillons des colonnes a été analysée par chromatographie ionique

(ICS 5000 AS-DP DIONEX Thermo Scientific). La concentration en oxygène dissous a été mesurée à l'aide d'un appareil de mesure d'oxygène dissous de table, modèle YSI 5000, et la demande chimique en oxygène selon [178].

4.2.5 Démontage des colonnes et caractérisation des scories

Chaque colonne a été démontée à la fin de l'expérience. Les scories collectées depuis le fond de la colonne, les points 1 à 3 et la surface supérieure (4) sont présentées dans la Figure S2 ; celles-ci ont été analysées par microscopie électronique à balayage (SEM). L'analyse SEM a été réalisée à l'aide d'un microscope JEOL 7600F SEM-FEG. Les échantillons ont été recouverts d'or après un séchage d'une journée à température ambiante ; la configuration du SEM a été fixée à 15 kV et en mode LEI. La distance de travail variait entre 15 et 20 mm pour obtenir des images nettes.

4.2.6 Phreeqc

Le programme de spéciation, Phreeqc V.3, a été utilisé pour calculer la spéciation physico-chimique à l'équilibre. La base de données sélectionnée (phreeqc.dat) a été modifiée pour l'hydroxyapatite (HAP, $Ca_5(PO_4)_3(OH)$ et la calcite en utilisant les constantes de solubilité de 10^{-46} M^9 and $10^{—7.5}$ M^2, respectivement, selon [139], [140]. Les cations, y compris Ca^{2+}, Mg^{2+} et NH_4^+ ainsi que les anions, y compris NO_3^-, NO_2^- et PO_4^{3-}, ont été saisis en unités de mg/L, tandis que l'alcalinité a été saisie en meq/L. À partir de cela, les indices de saturation des minéraux potentiels ont été calculés pour chaque échantillon d'eau individuel.

4.3 Résultats et discussion

4.3.1 Observation générale lors du démontage

Après le démontage, il a été observé que les scories dans les deux colonnes s'étaient cimentées ensemble près du côté opposé à l'injection d'alimentation, du point 2 au point 3, ainsi qu'à la surface supérieure de la colonne (Figure S1 et Figure S2). Après 24 heures de séchage à température ambiante, la surface des particules de scories dans toutes les sections de la Colonne 1-S était recouverte de dépôts blancs, tandis que la surface des particules de scories dans la Colonne 2-R ressemblait principalement à des scories fraîches en apparence (Figure S2). Cette différence est probablement due à l'absence de phosphate dans la Colonne 2-R.

4.3.2 pH and alcalinité

Les variations de pH et d'alcalinité sont présentées dans la Figure 4.1. Comme prévu, l'alcalinité élevée de l'eau d'alimentation a permis un épuisement des scories plus rapide dans la partie inférieure de la colonne par rapport aux sections supérieures dans les deux colonnes. Cependant, la Colonne 2-R a montré une diminution précoce du pH pendant l'expérience, en particulier aux points 1 et 2, ce qui a entraîné un déplacement des bicarbonates, ajustant l'alcalinité à des valeurs similaires à celles de la solution d'alimentation. Le point 3 a montré un comportement similaire avec un changement brusque de pH dans la Colonne 2-R, comparé à un changement plus progressif observé dans la colonne alimentée en phosphate dans les eaux usées (Colonne 1-S).

Il est intéressant de noter que, même dans un environnement à forte alcalinité (~ 350 mg HCO_3/L), les scories de four à arc électrique (EAF) ont éliminé les ions phosphates en dessous du seuil de détection (moins de 0,2 mg/L). De même, les valeurs d'alcalinité totale dans l'effluent étaient plus faibles dans la Colonne 2-R, qui ne contenait pas de phosphate supplémentaire dans la solution d'alimentation. Une plus grande affinité pour le phosphore par rapport aux carbonates parmi les minéraux de calcium a été vérifiée par Castellar et al. [56] sur du béton cellulaire autoclavé broyé (CAAC) avec une teneur élevée en calcium dans la plage de 5 à 20 mg P/L à un pH de 7 à 8,5. Les différences entre les Colonnes 1-S et 2-R sont analogues à celles observées par Castellar et al. [56] avec et sans phosphore dans l'environnement, mais à un pH élevé. La formation de calcite et d'hydroxyapatite est favorable à un pH >10. Dans la Colonne 1-S, il y avait une compétition entre le phosphate et l'alcalinité, tandis que dans la Colonne 2-R, il n'y avait pas de telle compétition en raison de l'absence d'apport en phosphore.

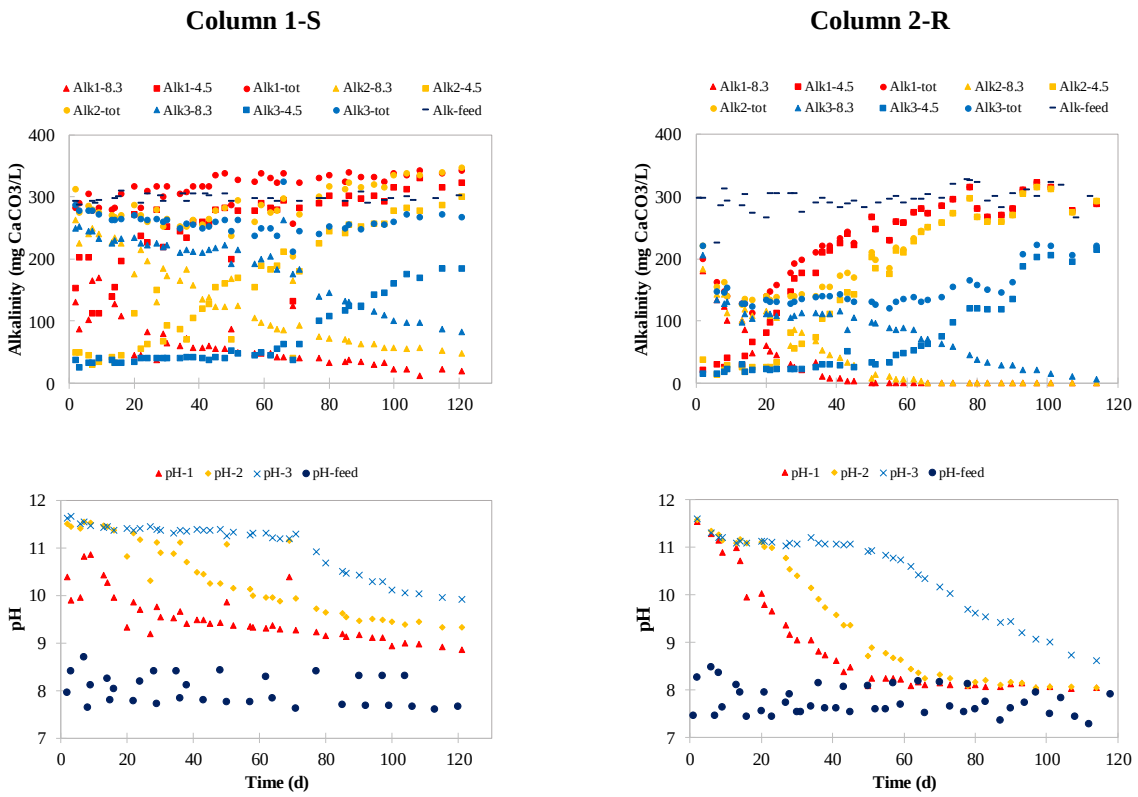


Figure 4.1 Les variations de pH et d'alcalinité dans les Colonnes 1-S et 2-R. Les chiffres 1, 2 et 3 se réfèrent respectivement aux points d'échantillonnage 1, 2 et 3.

4.3.3 Média de scories sous conditions aérobies-anoxiques

Les concentrations d'oxygène dissous supérieures à 2 mg/L sont considérées comme indicatives d'un environnement aérobie (présence d'une quantité suffisante d'oxygène dissous) dans les bassins de boues activées. Un environnement anoxique et anaérobie est défini par l'absence d'oxygène libre (zéro mg O_2/L) [36]. Appelo et Postma ont déclaré que la limite entre les environnements anoxiques et oxiques dans les eaux souterraines est de 10^{-6} M, ce qui équivaut à 0,032 mg O_2/L [179]. Dans une autre étude, les valeurs moyennes minimales observées d'oxygène dissous proches des conditions anoxiques ont été rapportées comme étant de 0,3 ± 0,4 mg O_2/L dans les milieux du sol, ce qui est similaire aux milieux réactifs [76]. Ces variations indiquent que le type de milieu est important pour détecter la transition entre les conditions anoxiques et oxiques. Les concentrations d'oxygène dissous et le potentiel d'oxydoréduction (POR) aux points d'échantillonnage 1 à 3 au fil du temps sont présentés dans la Figure 4.2. Dans l'étude actuelle, les concentrations d'OD fluctuent principalement entre 0,6 et 4 mg/L, avec davantage d'oscillations au point 1 dans la Colonne 1-S.

Après environ 50 jours, les niveaux d'OD se sont stabilisés autour de 1 à 2 mg/L à tous les trois points, avec des valeurs légèrement plus élevées au point 1. Les valeurs dans la Colonne 2-R se situaient dans la plage de 1 à 2 mg/L avec moins de fluctuations.

Le niveau de POR au point 1 dans la Colonne 1-S a montré une augmentation progressive des valeurs positives. Des tendances similaires à la hausse ont été observées aux points 2 et 3, à l'exception des 40 à 60 premiers jours, où les valeurs ont commencé par être négatives. Après cette période, tous les points se sont stabilisés autour de 100 à 200 mV. Ces niveaux indiquent la transition entre les conditions anoxiques et oxiques dans l'eau. Les niveaux de POR à tous les points de la Colonne 2-R ont montré une courbe similaire, commençant par des valeurs négatives jusqu'au 30e jour, puis augmentant vers des valeurs positives qui se sont stabilisées entre 100 et 200 mV.

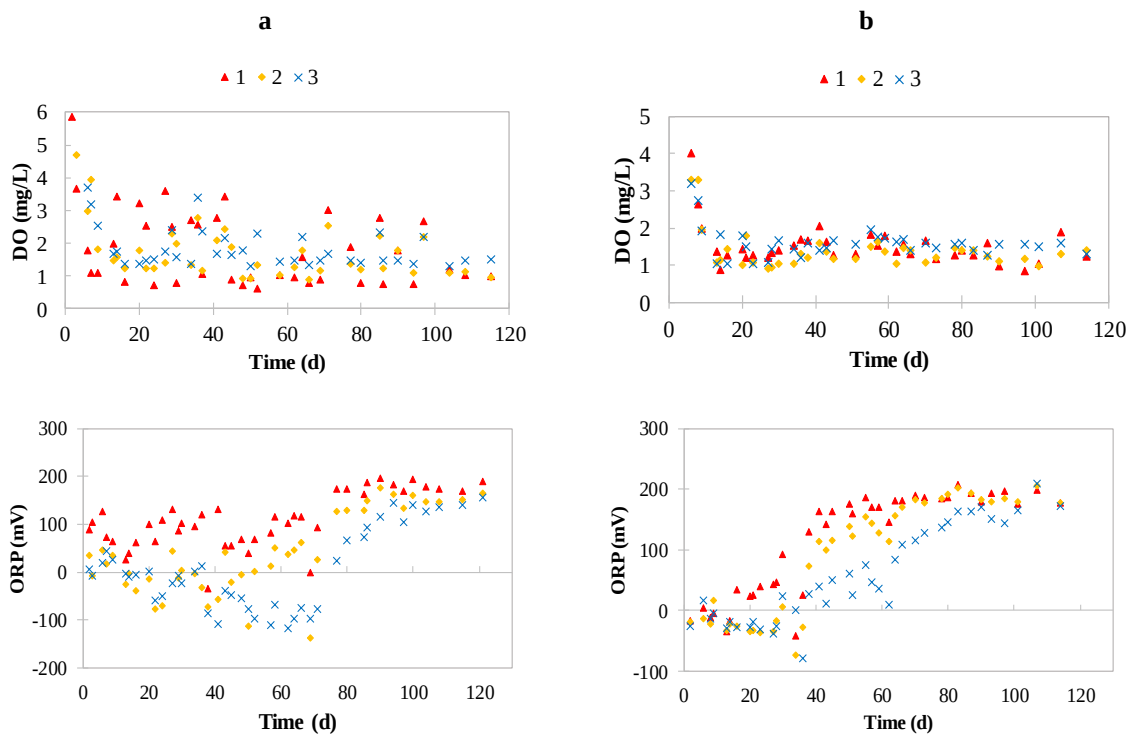


Figure 4.2 Les valeurs d'oxygène dissous (OD) et du potentiel d'oxydoréduction (POR) en fonction du temps sur une période de quatre mois pendant l'exploitation de a) la Colonne 1-S et b) la Colonne 2-R

De manière générale, des valeurs de POR positives indiquent un environnement oxydant, tandis que des valeurs négatives suggèrent un environnement réducteur [180]. La gamme des réactions biochimiques possibles en relation avec les niveaux de POR est indiquée dans le Tableau 4-3 [181].

Il est concevable qu'au point 1 de la Colonne 1-S, avec des valeurs positives d'oxygène dissous et de POR, la nitrification de l'ammonium se soit produite. Ce processus est possible en présence d'une alcalinité suffisante servant de source de carbone [36]. Une autre possibilité est l'activité des bactéries hétérotrophes qui, en présence de carbone organique dissous tel que l'acide acétique, peuvent contribuer à la formation d'un biofilm [148], [149], [176]. Les points 2 et 3, qui présentaient des valeurs faibles d'OD proches des conditions anoxiques et des valeurs initiales négatives de POR jusqu'au 75e jour, pourraient indiquer un phénomène de dénitrification. Par la suite, les conditions ont basculé vers un milieu oxique avec un POR positif, suggérant un environnement favorable à une nitrification partielle. L'élimination biologique du phosphore pourrait se produire dans un milieu anoxique ; cependant, cette hypothèse doit être confirmée par des analyses microbiologiques. Il est particulièrement important de considérer que la précipitation de Ca-P est le principal processus d'élimination du phosphore dans les filtres réactifs alcalins [82], [142]. La formation de sulfures est peu probable en raison de la nécessité de conditions anaérobies (absence d'oxygène libre), qui ne sont pas présentes. Cela est confirmé par les niveaux de sulfate, qui sont restés inchangés dans l'alimentation et aux trois points (données non montrées).

Il n'y avait pas de phosphate ni d'ammonium (sauf pendant deux jours) dans les eaux usées alimentant la Colonne 2-R. Par conséquent, après plusieurs jours, à mesure que les niveaux d'oxygène dissous se stabilisaient entre 1 et 2 mg/L, les niveaux de POR sont passés de valeurs négatives, indiquant une possible élimination biologique de la matière organique, à des valeurs positives stables, suggérant un environnement faiblement oxique. La formation de calcite était probablement due à l'excès d'alcalinité dans les eaux usées et aux réactions impliquant d'autres oxydes métalliques, sans affecter le niveau de POR.

Tableau 4-3 Réactions biochimiques potentielles dans les filtres réactifs et leurs niveaux de POR correspondants [181].

Réactions biochimiques	POR (mV)	
	Max	Min
Nitrification	+100	+350
Dégradation de la DCO dans un environnement oxique	+5	+250
Élimination biologique du phosphore	+25	+250
Dénitrification	-50	+50
Formation de sulfures	-50	-250

4.3.4 Élimination biologique de l'azote et élimination chimique du phosphore

Les formes d'azote et le phosphore dans les effluents de la Colonne 1-S et de la Colonne 2-R sont présentés dans la Figure 4. La concentration en phosphate dans la Colonne 1-S a augmenté à tous les points d'échantillonnage pendant la période de test. Cette augmentation s'est produite plus tôt au point 1 en raison des niveaux plus élevés de bicarbonates au bas de la colonne. Plus tard, l'augmentation a été observée aux points 2 et 3 dans les sections supérieures [176]. L'expérience a démontré que le filtre à scories de four à arc électrique (EAF) pouvait réduire les niveaux de phosphate à des valeurs inférieures à la limite acceptable (1 mg P-PO_4/L), même dans des conditions de forte alcalinité. L'élimination totale du phosphate a dépassé 99 % pendant six mois d'exploitation. Cependant, il est probable qu'en raison d'un épuisement important des scories causé par la forte alcalinité, les scories d'EAF ne puissent pas maintenir cette faible concentration de phosphore dans l'effluent sur de longues périodes. À la fin de l'expérience, la concentration en phosphate a été enregistrée à 0,48 mg P/L au point 3. Ce résultat souligne l'importance de contrôler l'alcalinité des eaux usées avant d'utiliser des filtres réactifs comme unité de traitement tertiaire.

À la fin de l'opération, l'élimination totale de l'azote (N) dans la Colonne 1-S était de 24 %. Deux hypothèses expliquent les variations de l'azote total dans le système : 1) Processus de nitrification-dénitrification : Ce processus s'est déroulé en deux phases : avant et après 75 jours (Figure 4.3c). Dans la première phase, une nitrification partielle de l'ammonium a eu lieu au point 1, accompagnée d'une dénitrification du nitrate, dont la concentration a diminué aux points 2 et 3. Après 75 jours, avec le passage de valeurs de POR négatives à positives, un environnement oxique a dominé aux

points 2 et 3, entraînant seulement une nitrification partielle et donc une augmentation des concentrations de nitrite et de nitrate. 2) N-immobilisation: La présence de carbone organique dissous, en particulier une combinaison d'acide acétique/acétate dans l'eau, favorise la conversion de l'azote inorganique (ammonium et nitrate) en azote organique, qui est ensuite incorporé dans la biomasse microbienne [182]. Dans la Colonne 2-R, il n'y avait pas d'ammonium appréciable dans la source d'alimentation, sauf aux jours 15 et 85, ce qui a rendu la nitrification possible, comme en témoigne l'augmentation de la production de nitrite par la suite (Figure 4 d et f). La concentration de nitrate était plus faible aux points 1 à 3 par rapport à l'alimentation. Plusieurs hypothèses pourraient expliquer cette observation : Premièrement, le nitrate pourrait avoir subi une dénitrification, comme discuté précédemment, en particulier pendant les 40 premiers jours lorsque les niveaux de POR étaient négatifs. Cela est probablement plausible compte tenu de la forte teneur en fer des scories, qui facilite la dénitrification. Cependant, même après 40 jours, lorsque les valeurs de POR sont devenues positives et que les conditions étaient faiblement oxiques, les concentrations de nitrate sont restées plus faibles à l'intérieur de la colonne. Deuxièmement, l'élimination du nitrate pourrait être attribuée à l'adsorption par les scories. Des études antérieures ont démontré l'efficacité des scories pour éliminer l'azote par adsorption, bien que ces études aient été menées dans le cadre d'expériences par lots dans des matrices d'eau simples [144], [145].

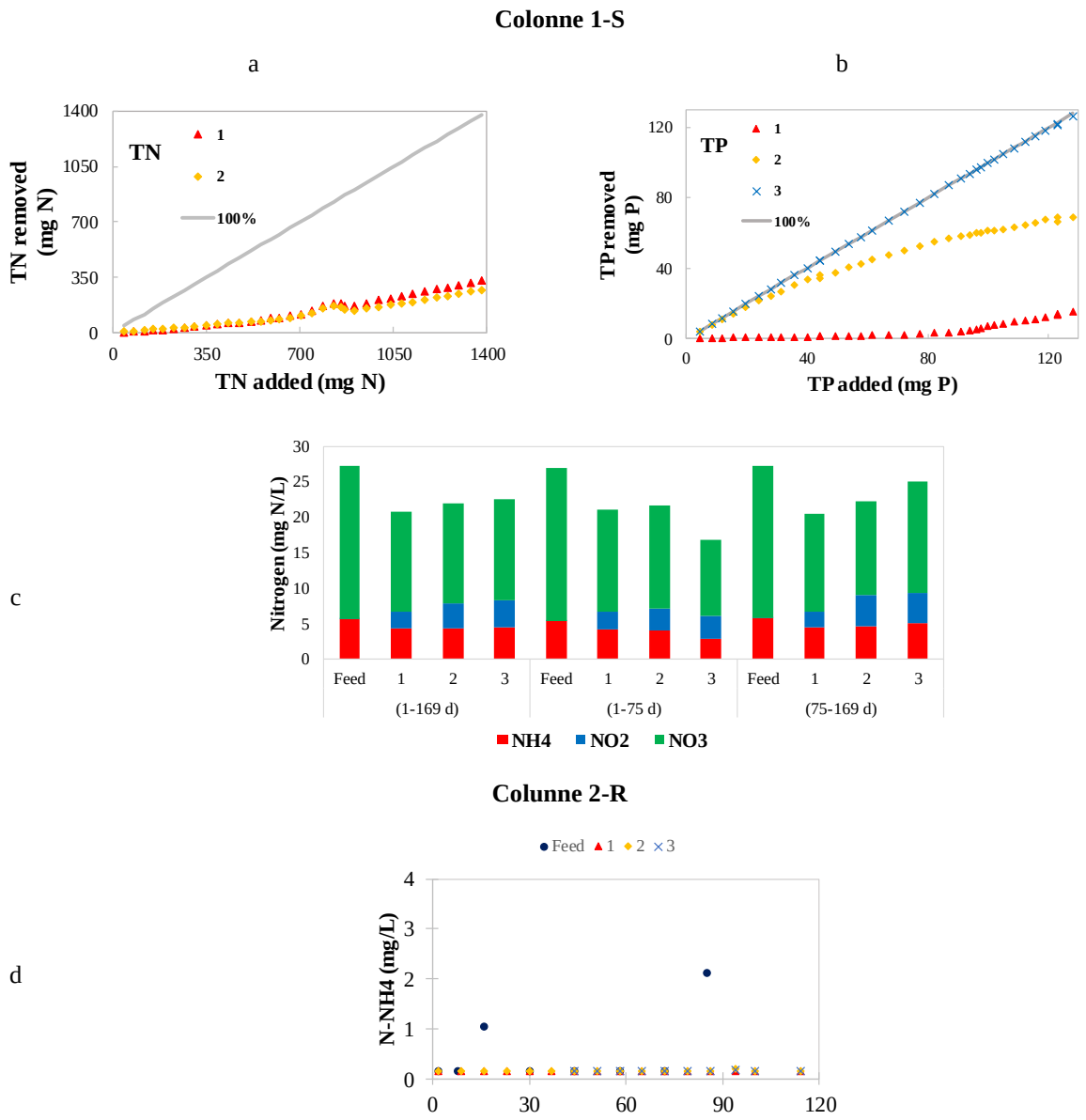


Figure 4.3 Les variations d'azote et de phosphore aux points suivants : alimentation, 1, 2 et 3 dans la Colonne 1-S (a, b, c) et la Colonne 2-R (d, e, f). Il est important de noter que les calculs ont été effectués sur la base des données moyennes.

e

f

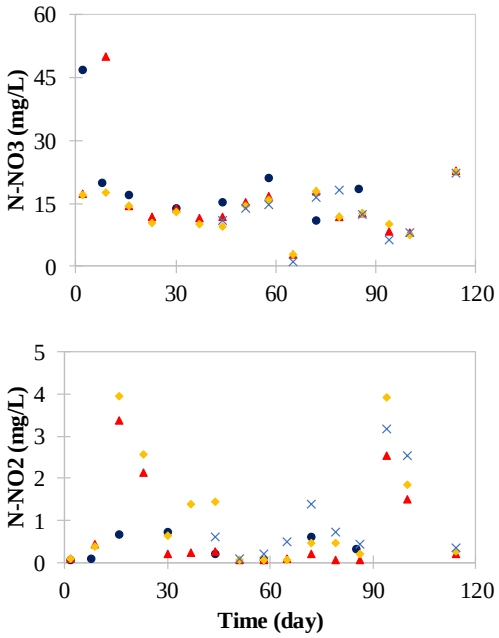


Figure 4.3 Les variations d'azote et de phosphore aux points suivants : alimentation, 1, 2 et 3 dans la Colonne 1-S (a, b, c) et la Colonne 2-R (d, e, f). Il est important de noter que les calculs ont été effectués sur la base des données moyennes (suite).

Le résultat de la spéciation Phreeqc est présenté dans la Figure 4.4. Les valeurs de l'indice de saturation de l'hydroxyapatite (HAP) au point 1 se situent dans la plage de sursaturation (SI = 0), suggérant la formation de HAP. Les valeurs de SI ont diminué pour atteindre la sous-saturation aux points plus éloignés de l'entrée dans la Colonne 1-S. Cette tendance est attendue, car la majorité du phosphate est éliminée dans les sections inférieures, ce qui entraîne des concentrations de phosphate très faibles dans les sections supérieures. La comparaison des valeurs de SI entre les colonnes avec et sans ajout de phosphate fournit des indications sur les réactions de précipitation dominantes. Dans la Colonne 1-S (avec phosphate), les valeurs de SI de la calcite indiquent sa formation dans un environnement sursaturé à tous les points d'échantillonnage. Cependant, dans la Colonne 2-R, la phase initiale de sursaturation s'est transformée en sous-saturation en raison d'un manque de carbonates suffisants. Cette transition s'est produite plus tôt au point 1 (37 jours) par rapport aux points 2 (44 jours) et 3 (86 jours), en corrélation avec la réduction du pH. Comme on peut le voir dans la Figure 4.1, l'épuisement rapide dans la Colonne 2-R a entraîné le remplacement des carbonates (CO_3^{2-}) par des bicarbonates (HCO_3^-), qui sont nécessaires à la formation de la calcite et à sa précipitation ultérieure.

La comparaison des concentrations de solution de Mg entre les deux colonnes a montré une tendance similaire aux points 1 à 3 (Figure B4). Cela suggère que le magnésium (Mg) a été principalement impliqué dans l'élimination de l'alcalinité par la formation de carbonate de magnésium ($MgCO_3$, SI > 0) à tous les points d'échantillonnage (données non présentées). La concentration de Ca dans la solution de la Colonne 1-S a montré une tendance ascendante, en accord avec les concentrations de phosphate. Cependant, dans la Colonne 2-R, les concentrations de Ca sont restées faibles à tous les points d'échantillonnage en raison de la formation de calcite. Cette observation soutient l'observation courante concernant l'affinité des scories de four à arc électrique (EAF) pour l'élimination du phosphore par la formation d'hydroxyapatite (HAP)

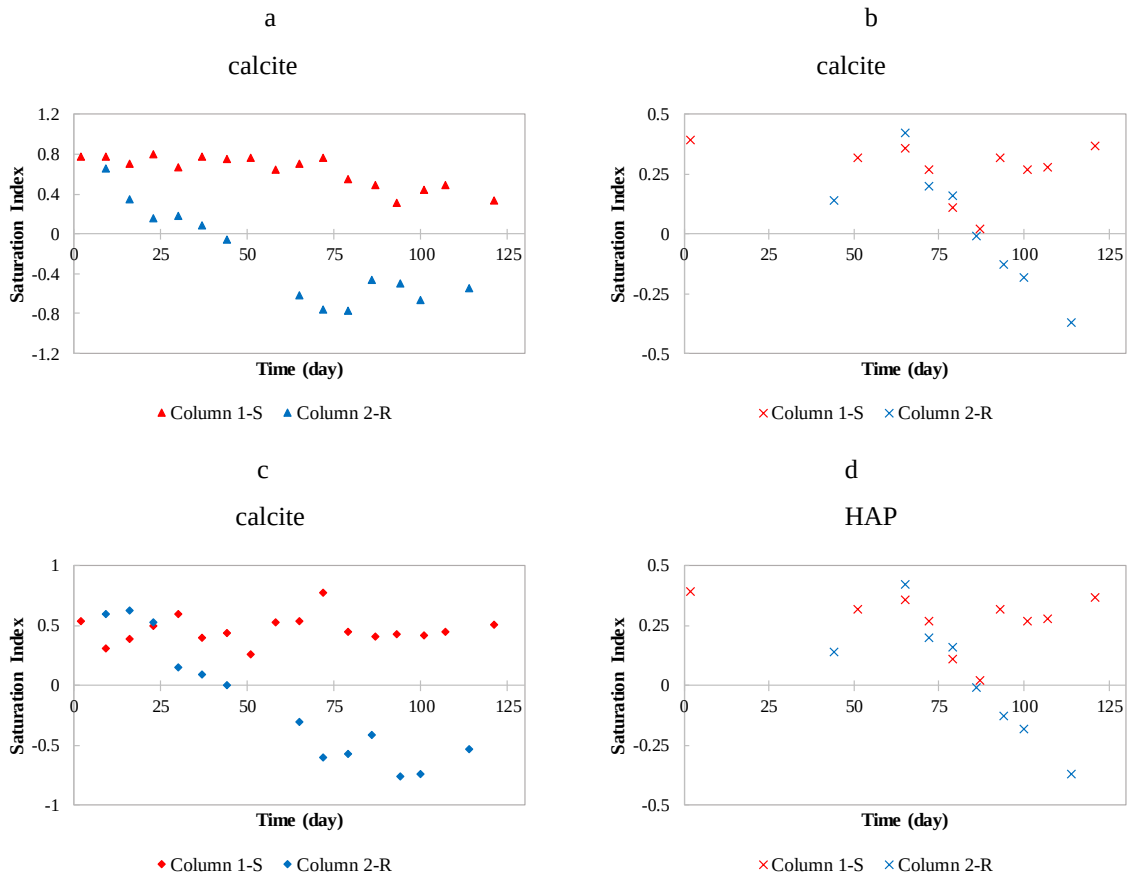


Figure 4.4 Indices de saturation pour l'hydroxyapatite (HAP) (panneau d, pKsp = 46) et la calcite (panneaux a, b et c, pKsp = 7,5) dans les Colonnes 1-S et 2-R aux points 1 ▲, 2 ♦, et 3. Pour les calculs de HAP, si la concentration en phosphore était inférieure à la limite de détection de 0,2 mg/L, la concentration en phosphore a été fixée à 0,2 mg/L pour le calcul de l'indice de saturation.

La variation de la demande chimique en oxygène est présentée dans la Figure 4.5. La différence de concentration entre l'alimentation et les points d'échantillonnage indique une activité biologique qui se produit en présence de nutriments et de métaux nécessaires à la croissance du biofilm. Une augmentation notable de la concentration en demande chimique en oxygène a été observée de manière plus marquée au point 1, probablement en raison d'un pH plus élevé par rapport aux points 2 et 3 [36] (pH 6.5-7.5). De plus, le changement de demande chimique en oxygène dans la Colonne 1-S au point 1, au jour 60, représente une diminution d'environ 40 % par rapport à la concentration d'alimentation, mais seulement une diminution de 15 % pour la Colonne 2-R. Cette différence est probablement due à la labilité de la source de carbone organique. Plus précisément, la Colonne 1-S utilisait une source de demande chimique en oxygène d'acide acétique/acétate de sodium, qui est une source organique facilement biodégradable. En revanche, l'influent de la Colonne 2-R était constitué d'eaux usées secondaires réelles contenant moins de carbone organique labile.

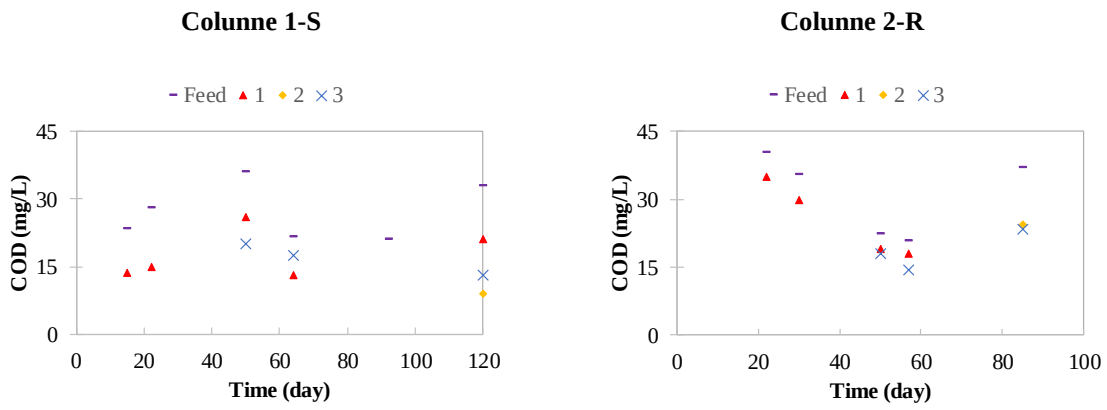


Figure 4.5 Les variations totales de la demande chimique en oxygène aux points d'alimentation et aux points 1 à 3 dans les Colonnes 1-S et 2-R.

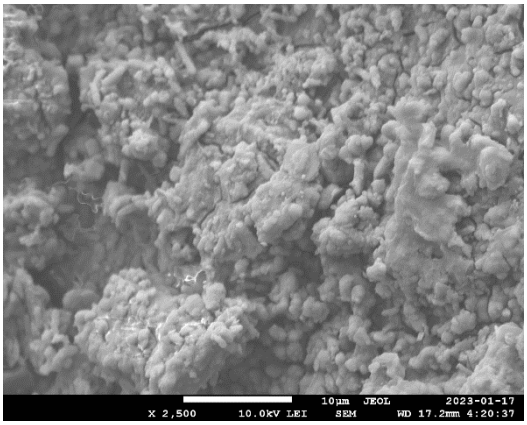
4.3.5 SEM

Les images SEM des scories de four à arc électrique (EAF) après le démontage des colonnes sont présentées dans la Figure 4.6. La distribution spatiale des éléments au point 1 (Figure 7a) de la Colonne 1-S a indiqué une concentration élevée de Ca et de P, suggérant la formation de Ca-P comme mécanisme d'élimination du phosphore [183]. La Figure 5b montre des concentrations élevées de Ca, de C et d'O, ce qui suggère la formation de calcite. Les concentrations de Si et d'Al étaient plus élevées au point 2 (milieu de la colonne) pour la Colonne 1-S, similaires à la concentration de Ca, suggérant un potentiel d'adsorption du phosphore. Comme prévu dans la

Colonne 2-R, qui n'était pas alimentée en phosphore, la composition élémentaire indiquait principalement du Ca, de l'O et du C, c'est-à-dire probablement une formation de calcite.

Colunne 1-S

a

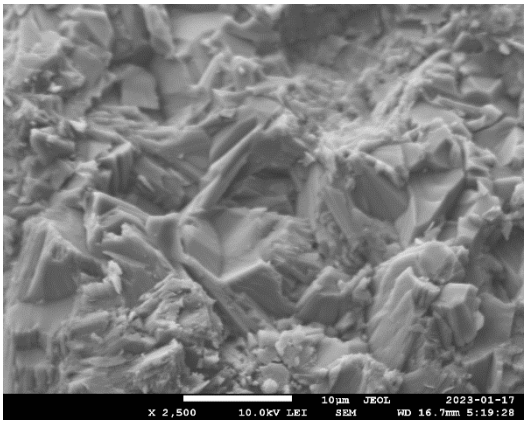


Map Sum Spectrum

	Wt%	σ
O	30.8	0.1
Ca	24.9	0.1
Au	21.8	0.2
C	9.0	0.1
P	7.1	0.0
Si	1.7	0.0
Fe	1.3	0.2
Mg	1.3	0.0
Al	1.0	0.0
Cu	0.6	0.0
Ti	0.4	0.1
Mn	0.0	0.3

Powered by Tru-Q®

b

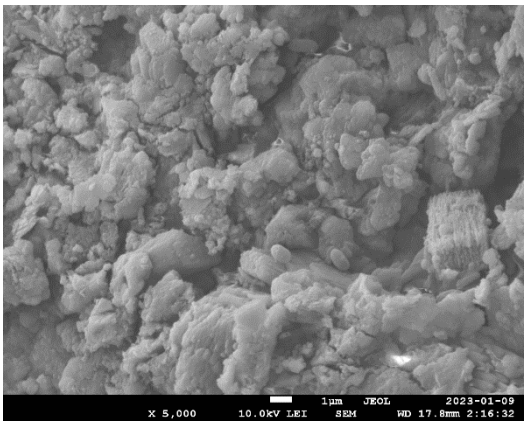


Map Sum Spectrum

	Wt%	σ
O	37.4	0.1
Ca	29.4	0.1
Au	21.3	0.1
C	10.5	0.1
Mg	0.5	0.0
P	0.4	0.0
Si	0.4	0.0
Al	0.2	0.0

Powered by Tru-Q®

c



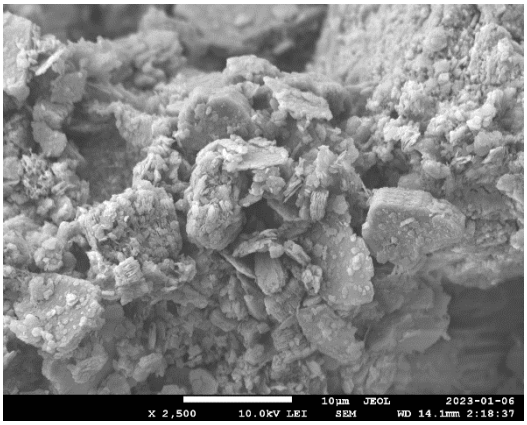
Map Sum Spectrum

	Wt%	σ
O	33.9	0.2
Ca	23.8	0.1
Au	22.0	0.3
C	6.6	0.1
P	3.9	0.1
Si	3.1	0.0
Al	2.2	0.0
Fe	1.5	0.2
Mg	1.2	0.0
Mo	0.8	0.2
Cu	0.8	0.1
Ti	0.2	0.1

Powered by Tru-Q®

Figure 4.6 Images SEM des scories après le démontage des colonnes : Colonne 1-S a&b) fond c) point 1 d) point 2 et Colonne 2-R e) point 1 f) point 2.

d



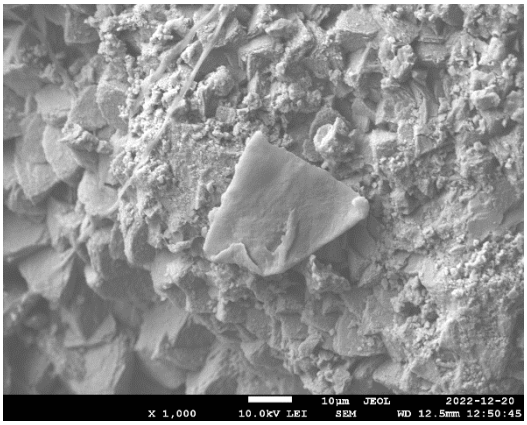
Map Sum Spectrum

	Wt%	σ
O	38.1	0.2
Au	21.9	0.2
Ca	11.6	0.1
Al	9.1	0.1
Si	9.0	0.1
C	6.7	0.1
P	2.8	0.1
Ti	0.4	0.1
Mg	0.4	0.0

Powered by Tru-Q®

Colunne 2-R

e



Map Sum Spectrum

	Wt%	σ
Au	35.6	0.2
Ca	32.3	0.2
O	19.5	0.1
C	8.9	0.1
Fe	2.0	0.2
Si	0.8	0.0
Mg	0.7	0.0
Al	0.2	0.0
Na	0.1	0.0

Powered by Tru-Q®

f

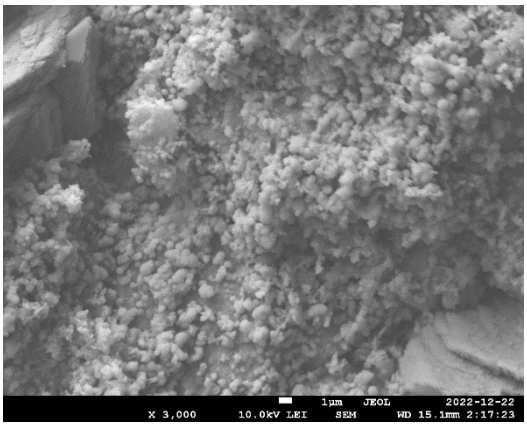


Figure 4.6 Images SEM des scories après le démontage des colonnes : Colonne 1-S a&b) fond c) point 1 d) point 2 et Colonne 2-R e) point 1 f) point 2 (suite).

4.3.6 Test de traceur

Le test de traceur a été réalisé par injection de rhodamine à l'entrée de la colonne. La courbe de distribution du temps de séjour pour les deux colonnes est présentée dans la Figure 4.7. Le temps

moyen calculé (tave) pour la colonne 1-S et la colonne 2-R était de 28,8 h et 16,2 h, respectivement. Le temps moyen plus élevé de la colonne 1-S avec une longue queue indique un court-circuit, tandis que dans la colonne 2-R, il est proche d'un régime de flux piston idéal [184], [185].

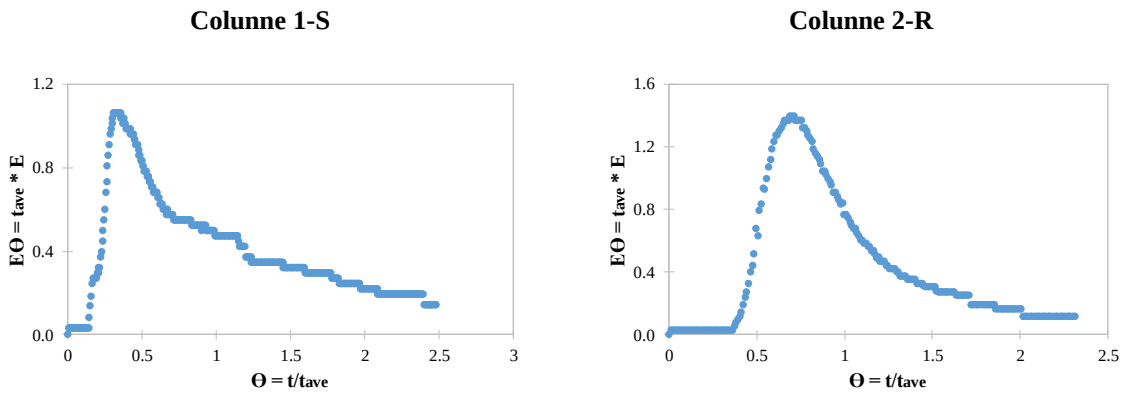


Figure 4.7 La distribution du temps de résidence a) Colonne 1-S b) Colonne 2-R, déterminée par l'injection de colorant rhodamine.

La surveillance des piézomètres n’a montré aucune accumulation de pression dans les colonnes pendant les 6 mois de fonctionnement. Plusieurs explications peuvent expliquer cette observation. Tout d'abord, le kaolin ajouté à la solution d'alimentation est de très petite taille, autour de 100 microns. Par conséquent, une grande masse de kaolin est nécessaire pour remplir les vides dans le filtre à scories. Deuxièmement, le kaolin n'a été ajouté que lors des rinçages hebdomadaires des eaux usées. Ensuite, il est possible que les très petites particules de kaolin se soient déplacées entre les vides et aient migré vers les sections supérieures. Une autre explication réside dans la méthode d'application des eaux usées. Pour toutes les études précédentes sur des colonnes verticales, que ce soit par un régime de flux de haut en bas ou de bas en haut, les injections étaient réalisées à travers des médias grossiers, par pulvérisation ou même directement dans le filtre par un tuyau. Cependant, pour cette étude, les eaux usées ont été appliquées en faisant passer le tuyau d'entrée dans le filtre jusqu'à une hauteur de 5 cm (au lieu du très bas), ce que l'on appelle "injection interne". Les eaux usées sont ensuite réparties après avoir atteint un capuchon en plastique (Figure B3). Cette méthode a pu permettre aux particules solides de se déposer au fond de la colonne sans bloquer le point d'alimentation (Figure B3).

4.4 Conclusion

Les résultats ont montré une bonne performance du filtre à scories EAF pour l'élimination du phosphore dans des conditions sévères pendant une période de 6 mois. Les valeurs de pH à la sortie étaient supérieures à 10, ce qui est nécessaire pour l'élimination du phosphore et pour atteindre une concentration de $P\text{-}PO_4$ inférieure à 1 mg/L. La comparaison entre les colonnes avec et sans ajout de phosphore a confirmé la plus grande affinité des scories EAF pour le phosphore par rapport aux carbonates. L'élimination du phosphore à la sortie était constamment supérieure à 99 %, tandis que l'élimination de l'alcalinité dans la Colonne 1-S a atteint un maximum de 28 %. En revanche, l'élimination maximale de l'alcalinité dans la Colonne 2-R, qui ne contenait pas de phosphate, était de 59 %. Ces valeurs montrent que les scories préfèrent éliminer le phosphore par rapport aux carbonates.

L'épuisement des scories s'est produit dans les deux colonnes, mais de manière plus intense dans la Colonne 2-R, sans phosphate dans les eaux usées d'alimentation. Après 6 mois, la concentration de P dans l'effluent était inférieure à 1 mg/L. Cependant, l'élimination du P à ce degré cessera finalement à mesure que l'épuisement des scories se poursuit et que le pH diminue. Une solution potentielle à ce problème est l'utilisation de lits sacrificiels avant les filtres réactifs principaux. Comme le montre une étude précédente [114], les médias pré-filtres en scories grossières pourraient être utilisés à deux fins : 1) l'élimination des solides en suspension 2) l'élimination de l'alcalinité. Selon la modélisation de Claveau-Mallet et al. [114], le remplacement des filtres réactifs principaux, en supposant une alcalinité d'influent de 210 mg $CaCO_3$/L, aurait lieu dans deux ans. Ces résultats ont montré l'importance du contrôle de l'alcalinité avant les unités de traitement tertiaire. Les solutions pratiques pour réduire l'alcalinité comprennent les injections chimiques, la diffusion d'air dans les unités en amont permettant l'élimination du CO2 de l'eau et les lits sacrificiels avant le filtre réactif.

L'activité biologique dans le filtre réactif a indiqué son potentiel pour l'élimination de l'azote. Il convient de noter que le DOC labile a été fourni au filtre réactif (Colonne 1-S). La solubilité et la labilité du carbone organique jouent un rôle clé car elles fournissent le carbone nécessaire à la dénitrification et à l'immobilisation en soutenant l'activité des micro-organismes, entraînant la formation de biofilm [186]. Cela suggère que l'injection de DOC labile, tel que l'acide acétique, pourrait créer des conditions propices à l'activité biologique et, par conséquent, à la nitrification

partielle et/ou à l'immobilisation. Cela est crucial en raison des réglementations de plus en plus strictes concernant le rejet des effluents prévues dans un avenir proche.

Cette étude a suggéré que notre nouveau design d'entrée pourrait avoir empêché le colmatage ou l'accumulation de pression grâce à l'injection interne. Il est recommandé d'examiner l'effet de l'introduction des eaux usées sur la performance du filtre réactif et d'évaluer à la fois l'élimination des polluants et la performance hydraulique.

4.5 Remerciements

Ce projet a été financé par la Chaire de recherche du Canada sur le traitement de l'eau décentralisé et à petite échelle (numéro de dossier 950-232871). Amin Tabatabaeefar souhaite remercier Fayolle Canada pour l'attribution de la bourse et remercie la Fondation et les Anciens de Polytechnique Montréal ainsi que Polytechnique Montréal pour leur soutien. Nous remercions également Bionest, l'entreprise partenaire, qui a fourni les scories EAF pour le projet.

CHAPITRE 5 ARTICLE 2: CLOGGING OF REACTIVE FILTERS FOR PHOSPHORUS REMOVAL – A REVIEW

Journal of Water Process Engineering, **Date de Soumission :** 10 Septembre 2024

Amin Tabatabaeefar [a*], Chad Penn [b], Yves Comeau [a], Dominique Claveau-Mallet [a]**

a Department of Civil, Geological and Mining Engineering, Polytechnique Montreal, Montreal, H3C 3A7, Quebec, Canada. amin.tabatabaeefar@polymtl.ca

b National Soil Erosion Research Laboratory, USDA Agricultural Research Service, 275 S. Russell St., West Lafayette, IN 47907, USA. chad.penn@usda.gov

** Corresponding author: Tel. (514) 340-4711 Ext. 2186, dominique.claveau-mallet@polymtl.ca

***** Contribution décrite : Recherche bibliographique, analyse, rédaction

Abstract

State of the art tertiary treatment technologies include reactive filters. However, clogging is a major factor which affects their performance. In the current study, our purpose was to review the efficiency of various reactive filters aimed at resolving clogging issues that affect phosphorus removal. Various aspects of clogging, including its origination and current regulatory strategies, were investigated and proposals leading to final recommendations were formulated. Our findings indicate that causes for clogging are divisible into two major groups as follows: operational factors and formation mechanisms. Clogging control strategies, including initial reactor design, operational strategies and clogging monitoring are presented. Finally, general directions for future studies are suggested.

Keywords: Reactive filter; Phosphorus; Clogging; Controlling strategies; Reactor design

5.1 Introduction

Phosphorus (P) transport to water bodies exacerbates the eutrophication of freshwater bodies [187]. This poses a major issue in rural or remote areas that rely on onsite treatment units for their effluent management [188], [189]. Common onsite treatment techniques include sand absorption fields [190], [191], sand filters [192], constructed wetlands (CW) [193], [194], and adsorption processes [155], [195]. Various factors influence the choice of P removal techniques. Reactive filters (RFs) offer an efficient, simple and low cost choice [196], [197]. Several reports have been published on the application of RFs in small-scale wastewater treatment systems for P removal in Europe [198], USA [57], Canada [199], and Asia [200]–[202].

RFs contain a bed of reactive media, termed P sorbing material (PSM), which reacts with dissolved P to remove it from wastewater. PSMs can be divided into three groups based on their origin: natural materials, industrial by-products (IBPs) and man-made adsorbents [99], [100]; Table 5-1 [85]. Materials can also be classified based on the type of main reactive content as those relying on (i) metal oxides - mostly aluminum (Al) and iron (Fe), and (ii) soluble divalent earth metal oxides - mostly calcium (Ca) and magnesium (Mg) [99], [102], [203]. P removal by Al/Fe oxides in PSMs occurs mainly via a ligand exchange reaction in the range of acidic to neutral pH, whereas P removal by PSMs containing Ca/Mg oxides occurs mainly via precipitation under alkaline conditions [204]. Parameters that are important for achieving high P removal efficiency include the Al, Fe, Ca and Mg reactive content of the PSM, available reaction sites, pH and physical properties, such as PSM shape, particle size, specific surface area, porosity and hydraulic conductivity [85], [203], [205]. PSM selection is influenced by various factors, such as P removal capacity, physical properties, potential contamination from PSM, availability and costs [102]. There is often a trade-off between cost and performance. For example, manufactured PSMs typically perform well, but high costs limit their widespread use. Therefore, a recent shift towards less expensive materials with acceptable removal efficiency has been observed [101].

The use of RFs for advanced wastewater treatment [55]–[58], [206]–[208], involves an element of uncertainty [209], [210] due to the involvement of certain issues such as clogging. Factors leading to clogging include hydraulic loading rates, wastewater composition and various physical, chemical and biological reactions. Published reviews on clogging have mostly focused on constructed wetlands [211]–[215]. However, there is a knowledge gap on clogging in RFs that

limits their adoption for P removal. Therefore, in this paper, our purpose is to present a comprehensive review of clogging that is associated with RF applications aimed at P removal, as well as the management of such clogging.

Table 5-1 Phosphorus sorbing materials [85].

Type	Adsorbent
Natural	alunite, apatite, bauxite, dolomite, laterite, limerock, limestone, oyster shell, peat, sand, shell sand, wollastonite, zeolite
Industrial by-product	coal ash, fly ash, iron ore, quartz sand, oil shale, slags
Man-made	Filtra P, Filtralite P, Leca, LWA (light weigh aggregate)

This review covers other applications related to P removal, such as sand filters and constructed wetlands. Three scientific search engines were used: Google Scholar, Engineering Village and Web of Science. The following keywords were used to find articles related to clogging: “constructed wetland,” “sand filter,” “reactive filter,” “slag,” “clog*,” “phosph*,” “wastewater” and “effluent.” A list of articles used in the review work is presented (Table C1).

5.2 Clogging phenomena in reactive filters

Studies on clogging in reactive media can be separated based on (i) operational aspects, such as mass loading (both flow and contaminants), retention time, and wastewater composition, [216], [217], (ii) physical, chemical or biological clogging mechanisms [218]–[220], and (iii) clogging effects [221].

5.2.1 Flow rate, HRT and HLR

Flowrate (Q) is expressed in units of volume of liquid (e.g., wastewater) added to the reactor per unit of time. The hydraulic retention time (HRT), also known as empty bed contact time (EBCT); [222], is defined as the total liquid volume of the reactor (V_f) divided by the flowrate (Eq. 5.1), while the filter void HRT (HRT_v) is defined as the void volume (V_v) divided by the flowrate (Eq. 5.2). The hydraulic loading rate (HLR) is normally defined as the flowrate divided by the area perpendicular to the flow (A) (Eq. 5.3).

$$HRT = {V_f}/{Q} \tag{5.1}$$

$$HRT_v = {}^{V_v}/_{Q} \tag{5.2}$$

$$HLR = {}^{Q}/_{A} \tag{5.3}$$

Based on RF material and process design, HRT_v governs the required contact time between wastewater and PSMs. These reactions lead to the formation of new products that fill the voids and change hydraulic conductivity (K), potentially resulting in preferential pathways and clogging of the RFs.

Water velocity influences the precipitation of reaction products, such as hydroxyapatite (HAP), in different ways. Lower water velocity results in larger HAP particle sizes and greater P removal. For example, white crystals mostly settled at the bottom of reactors operated at a low feed velocity (high HRT_v with an HLR of 14 mm/h) [43]. At higher velocities, the same study reported a uniform distribution of white precipitates along the length of the column. However, P removal at higher velocities involved smaller HAP crystals that were transported with the flow. Yet, the rate of HAP crystal growth was found to be independent of water velocity [223]. According to Hermann et al. the washout/loss of P precipitants from a system with upward flow in two Filtralite-P columns fed with synthetic (without organic matter) and real wastewater increased at higher flowrates of 55 and 44 mm/h, respectively [224].

Contaminant loading also exerts a major effect on clogging and hydraulic performance. Such loading can be expressed in terms of organic matter (chemical oxygen demand-COD, biological oxygen demand-BOD_5) or suspended solids (volatile suspended solids, VSS; inorganic suspended solids, ISS; or total suspended solids, TSS). A study conducted in 2007 on five horizontal sub-surface flow constructed wetlands (HSSFCWs) with downward flow in different cities reported more accumulation in the inlet zones with higher TSS loading rates. Ponding on the surface confirmed clogging at this upstream section [225]. The HSSFCWs filled with blast furnace (BF) slags experienced clogging and surface overflow in just a few years with an organic HLR of 16 g BOD_5 m^{-2} d^{-1}, whereas neither major clogging nor surface overflow was observed when the organic loading rate was lower than 8 g BOD_5 m^{-2} d^{-1}) [226]. In another study, in which two RFs were fed either a CW influent or a CW effluent, with the electric arc furnace (EAF) slag system installed upstream of CWs, severe clogging occurred before 180 d. However, the other EAF system installed downstream of the CWs operated for a longer period, because the BOD and TSS concentrations in

the inlet stream to the EAF were 7 and 3.5 times lower, respectively [227]. Similarly, Bird and Drizo demonstrated that in-series tanks with EAF slag filters receiving influent TSS and BOD concentrations higher than the values recommended for livestock wastewaters in North America (100 mg/L for TSS concentration and 5.5 m^3/d flowrate, respectively) clogged in only 52 d (56 bed volume) [101]. In the second stage, application of a lower TSS loading rate after a period of no loading, enabled the system to continue for 169 d (180 bed volume). These results confirmed that TSS and organic matter concentrations over maximum acceptable ranges would affect filter performance, hydraulic conductivity and clogging [101], [227].

High TSS loading increases accumulation of solids in the inlet zone. Preferential flow, surface ponding and overflow are visible signs of clogging due to the accumulation of solids [40, 47]. Different HLRs of 0.32, 0.64, 0.96 and 1.28 m/h in BF slag filters used for drinking water purification led to the deposition of solids on the surface and below-surface zones, causing the column to partially clog [229].

The concentration of bicarbonates is another critical characteristic of wastewater that can exacerbate clogging in reactive filters (RFs) through calcite precipitation. This parameter is particularly important for groundwater users dealing with high alkalinity levels. High alkalinity not only contributes to clogging, as demonstrated by Claveau-Mallet et al. [114], [142] in their study on EAF slag filters, but also accelerates slag exhaustion, thereby reducing the longevity of treatment performance. For instance, in a study where EAF slag was fed with identical synthetic wastewater containing phosphorus, nitrogen, and organic matter, but with one having an alkalinity of 100 mg $CaCO_3$/L and the other 300 mg $CaCO_3$/L, it was observed that 30% of the filter was exhausted after only 30 days of operation in the latter case, whereas no such exhaustion occurred in the former even after four months [230], [231].

5.2.2 Wastewater composition

Composition of influents, such as TSS, organic matter, nutrients and alkaline substances, can exert major effects on the reactions taking place within RFs and indirectly influence the HRT.

In addition to TSS loading, the type and size of influent particles may also exert a great impact on filter performance. Three different silica particles with sizes of 4, 20 and 40 μm were used in the influents of three identical sand columns. The experiment revealed that the drop in pressure increased with TSS size. Sand filters fed with larger silica sizes showed lower hydraulic

conductivity (relative hydraulic conductivity < 0.1) when the number of pore volumes treated exceeded 4500 [232].

The organic matter content in the influent may also exert a negative effect on filter performance. Filtralite-P columns fed with real wastewater led to biofilm formation in the media. These biofilm layers covered the active sites for Ca-P reactions and partly filled the voids [224]. Moreover, the types of organic materials present in the wastewater exert different effects on filters. Caselles-Osorio and Garcia monitored HSSFCWs that were fed different types of synthetic wastewater containing starch and glucose for eight months [233]. While there was no clogging in the HSSFCWs, the lower K values for HSSFCWs fed glucose indicated that biofilms produced by glucose degradation by-products had partly blocked flow pathways [233]. Similarly, Lianfang et al. [234] used a column filled with coarse sand (d_{10} = 1 mm and C_u = 4.4) to demonstrate that, although hydraulic conductivity values were reduced at all feed COD concentrations, they were more pronounced with starch feed. Although ponding was observed in in-starch feeding columns after 30 d (51 bed volume), ponding was observed in glucose feeding columns only after 60 d (102 bed volume). Furthermore, infiltration rates decreased with higher organic loading concentrations. This phenomenon was more intensified in the starch feeding column where increasing the COD from 50 to 100 mg/L caused faster ponding within 30 to 24 d (51 to 41 bed volume) [234].

Higher P concentration in wastewater leads to more precipitation in the PSM, which increases the possibility of clogging via void filling. Drizo et al. [235] tested different mixtures of EAF slag and serpentinite in 10 columns and found that increasing P concentration in the feed led to greater precipitation in the media, thereby initiating clogging in the system.

Alkalinity is another aspect of wastewater composition. Highly-alkaline wastewater easily reacts with PSM contents, such as Mg and Ca, generating different carbonate-metal precipitates. For example, a study showed that using inorganic influent with an alkalinity of approximately 100 mg $CaCO_3$/L led to head loss in EAF slag filters due to progressive carbonate precipitates formation [142]. Another characteristic of water is hardness. Hard water contains elevated concentrations of cations such as calcium (Ca^{2+}) and magnesium (Mg^{2+}), and anions such as carbonate (CO_3^{2-}), chloride (Cl^-), and sulfate (SO_4^{2-}). The presence of excess calcium and magnesium in the aqueous phase can enhance pollutant removal processes in reactive filters by promoting precipitation

reactions. However, high concentrations of these ions can also lead to increased clogging due to the formation of precipitates and carbonate scales.

5.2.3 Clogging mechanisms

Clogging mechanisms can be divided into three types: physical, chemical and biological. Physical clogging can be caused by solids deposition/accumulation. Chemical clogging is a result of chemical reactions between wastewater and substrates that produce precipitates. Biological clogging results from the formation of biofilm which accentuates clogging by trapping inorganic and organic solids [219].

5.2.4 Physical clogging

Physical clogging is associated with suspended solids, including inorganic and organic (both biodegradable and non-biodegradable) materials. TSS movement through PSMs is illustrated in Figure 5.1. Thus, different factors, such as media particle size, shape and physical bonding may influence TSS movement and capture. TSS deposits on the PSM's surface (filtration) causes media clogging (inner blocking) [236], [237].

Physical clogging mechanisms are categorized into three types: superficial clogging (or surface adsorption); particle accumulation (or inner blocking); and mixed clogging (particle entrapment) [236]. Accumulated solids can be grouped into two types: interstitial solids; and adhered solids. Interstitial solids are easily releasable while adhered solids are not [225]. Investigations of real HSSFCWs revealed that a large portion of accumulated TSS in the inlet zone comprised interstitial solids (99%) for which the VSS/TSS ratios were in the range of 10-20% [225], thus being largely inorganic. The low values of the VSS/TSS ratios suggested that the upstream treatment units had not removed sufficient TSS before reaching the CWs and that some fine material had been added along with gravel media to the CWs when surface ponding occurred [225].

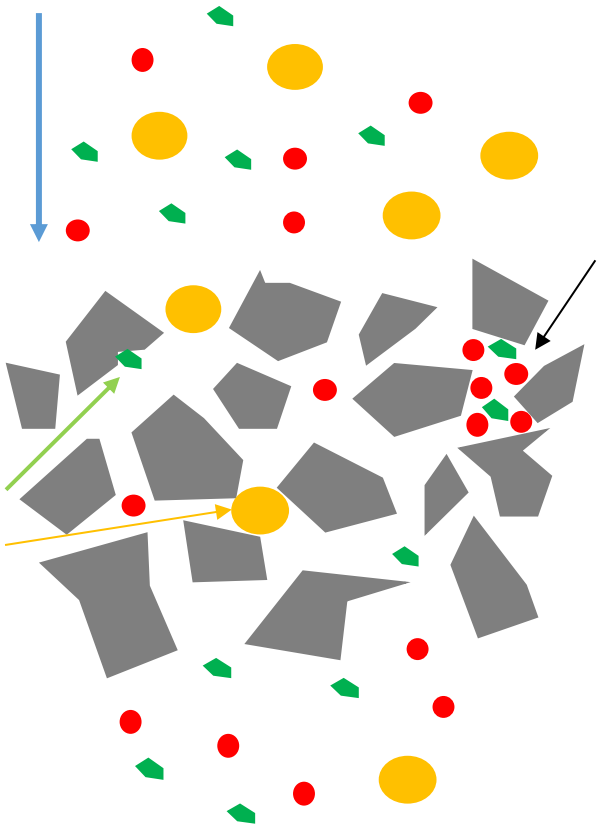


Figure 5.1 Schematic of suspended solids movement in slag medium. Suspended solids (orange, red and green particles); gray shapes: slag particle; blue arrow: flow direction; green arrow: surface (physical) adsorption; black arrow: particle accumulation; yellow arrow: particles entrapment.

TSS may originate from sources other than wastewater. Mineral studies have shown that solids accumulating in wetlands may include fine quartz and calcite particles [238]. This was substantiated by Caselles-Osorio who found that a large proportion of the inorganic solids added with the gravel media were fine silt and clay [225]. Kandra et al. suggested that possible disintegration of the slag granular media may have led to clogging via void filling by solids and deposition of particles, resulting from such disintegration [239]. Sampling of a HSSFCW filled with BF slags that had been fed the effluent of an upflow anaerobic sludge blanket reactor (UASB) unit by Matos, demonstrated that more than 80% of the clogging material was inorganic, with further mineralogical studies indicating that clogging materials had originated from weathered slag [240]. A similar study which tested a BOF slag (40%)/sand, fed treated synthetic wastewater without organic matter, reported that hydration of CaO resulted in slag expansion followed by its partial disintegration into fine particles which blocked pores [241]. These phenomena are directly related to PSM characteristics, such as mechanical stability, chemical resistance and durability.

In general, TSS particles in wastewater cause severe clogging in the RFs, particularly in the inlet zone. Ye et al. [236] used kaolinite particles as TSS in a system of cylindrical columns filled with river sand. Surface photographs showed surface clogging (superficial) with large particles retained on the surface of the sand filter. The mass of TSS present in the subsurface of columns was found in sand filter voids (inner blocking). SEM images showed that a part of TSS adheres to sand even after the filter backwash (adhered solids). As expected, the relative hydraulic conductivity of columns decreased on average by around 50% over 4 d (128 bed volume) [236]. Similar results were reported by Banihashem and Karrabi [232] where pressure loss aligned with hydraulic conductivity decreased in columns with influent consisting of larger silica particles. Larger drops in pressure of over 400 Pa in the first layer of the column fed by 20-μm particles indicated severe clogging in this zone (surface clogging). Comparison between these images and non-clogged columns indicated a higher extent of aggregation with feeds containing larger TSS particles [232].

Segismundo conducted ponding pressure and mass accumulation tests on sand columns with different heights (400 and 575 mm) during downward flow feeding at a constant loading rate and observed a layer caked at the top of the substrate (superficial) [242]. This mineralogical study confirmed that a major accumulation of solids occurs in the top 15% of the filter layers in both columns (inner blocking). Particle size analysis indicated that the larger particles had less ability to move to deeper depths. The initial outflow results showed a reduction of 22.3% in the 400 mm high column during the experiment time, whereas the reduction was 16.5% in the 575 mm high column. However, a greater change in the cumulative water flux was observed in the 575 mm high column at the end. The author hypothesized that ponding pressure in the 575 mm high column pushed particles deeper into the column, resulting in severe clogging, compared to that in the 400 mm column. Greater TSS entrapment and depth of accumulation reduced the active pore volume of the sand filter. Pressure head measurement on the bottom of columns, justified the relationship between ponding height and surface clogging. Surface clogging prevented water penetration and led to more ponding. When the water accumulated at the ponding section, the pressure at the bottom decreased and vice-versa. This study highlighted the clogging effect of TSS filtration in the inlet section [242].

5.2.5 Chemical clogging

PSMs used in RFs or as supplementary fillers in CWs and sand filters contain metals that react with wastewater constituents. Typical slag contains Ca, Al, Si, Mg, Fe and to a lesser degree, Mn, P, Ti and Cr [102], [243].

Mechanisms underlying P removal by PSMs are mainly adsorption and precipitation. A series of batch experiments aimed at differentiating between mechanisms underlying adsorption and precipitation in alkaline slag were conducted by Vu et al. [244], in which adsorption was assumed to be excluded in measurements of P removal occurring without mineral contact). The results confirmed precipitation as the main mechanism underlying P removal, but not the only one. They suggested that adsorption governs P removal during the first stage of interaction between P and slag, followed by P removal via precipitation [244]. This is confirmed when over a period of 4 d, the difference in P removal between slags and slag-free solutions was decreased. Also, the adsorption mechanism has lower effect on P removal in coarse slags compared to fine slags, as at the first days the gap between coarse slags and leachates diagrams are smaller compared to fine slags. It is noted that P removal by coarse slags is less than fine slags.

pH of the solution also has a critical impact on P removal. Precipitation reactions can be broadly divided into two groups [245]–[249]:

- acidic to neutral environment (pH < 7)

$$Fe^{3+} + H_nPO_4^{-3+n} \rightarrow FePO_4 \downarrow + nH^+ \tag{5.4}$$

$$Al^{3+} + H_nPO_4^{-3+n} \rightarrow AlPO_4 \downarrow + nH^+ \tag{5.5}$$

$$Al(OH)_3 + H_2PO_4^- \rightarrow AlPO_4 \downarrow + OH^- + 2H_2O \tag{5.6}$$

- alkaline environment (pH > 7)

$$Ca^{2+} + OH^- + HPO_4^{2-} \rightarrow Ca_3(PO_4)_2 \downarrow + H_2O \tag{5.7}$$

$$Ca^{2+} + OH^- + HPO_4^{2-} \rightarrow Ca_5(OH)(PO_4)_3 \downarrow + 2H_2O \tag{5.8}$$

$$Mg^{2+} + NH_4^+ + PO_4^{-3} + 6H_2O \rightarrow MgNH_4PO_4 \cdot 6H_2O \downarrow \tag{5.9}$$

Additional reactions at high pH may limit P removal by consuming available metals as follows:

$$Ca^{2+} + CO_3^{2-} \rightarrow Ca(CO_3) \downarrow \quad (5.10)$$

$$Mg^{2+} + CO_3^{2-} \rightarrow Mg(CO_3) \downarrow \quad (5.11)$$

$$Mg^{2+} + Ca^{2+} + CO_3^{2-} \rightarrow CaMg(CO_3)_2 \downarrow \quad (5.12)$$

Carbonates in the system may originate from influent alkalinity or from CO_2 found in the air that becomes CO_3^{2-} when dissolved in a high pH solution. The resulting precipitation products fill the voids in a manner similar to that by TSS particles that can agglomerate and block water flow.

HRT also influences the precipitation of minerals. A previous study used hydrated oil shale ash (size range of 6-16 mm) in a continuous downward-flow system with 3 different HRTs [14]. A scanning electron microscope (SEM) analysis was used to analyze precipitates in the PSM before and after experiments. Untreated ash displayed a porous structure with a needle-like ettringite mineral that disappeared after a column test. A white precipitate observed on the surface of all filters was confirmed via X-ray diffraction (XRD) analysis to be hydroxylapatite (HAP). An FTIR analysis conducted on a thin layer coating of the PSM surface showed peaks of calcite ($CaCO_3$) and Ca-phosphate. Greater calcite formation occurred in columns with a longer HRT (or lower flowrate) which inhibited dissolution of Ca-bearing phases from the PSM and thereby reduced P removal. Among all columns, calcite formation was lowest in the column with the shortest HRT, although its overall P removal efficiency was also the least [14].

Precipitates may migrate within filter media. Filters of Filtralite-P were tested at three different scales in tanks by treating a P solution using small, meso, or large scale CW biofilters that had been used to pre-treat school wastewater effluent (Ádám et al. [250]). The authors observed white precipitates at the outlet of small tanks when the system had high pH values. The amount of precipitation depended on both influent P concentration and P loading rate. The authors explained that the precipitated P had leached to the bottom of the media and accumulated. Sample analyses in the mesoscale tank showed that accumulation of P in the mid-section of the tank inlet was greater, more concentrated near the walls and increased with depth or distance from the surface. This could be explained by increased clogging in mid layers that re-directed the flow towards the sides of the tank. SEM analyses showed a peak of $CaCO_3$ in the outlet section indicating that Ca^{2+} had reacted with air (i.e. CO_2) available in the outlet zone [250]. The large-scale CW was far from P saturation because the plant had been designed for 15 years of operation whereas the unit had only operated for 3 years at the time the study was conducted.

Slag bed clogging occurs due to the accumulation of precipitates. A dye test conducted by Penn et al. who investigated a field-scale structure which included EAF slag intended to treat agricultural subsurface drainage, found that limited water was flowing through the filter after 11 months of' operation [251]. The test showed that most of the flow had been diverted by the overflow into bypassing the slag filter. The authors reported that unwanted chemical precipitation had influenced P removal not only by clogging the voids, but also by decreasing the pH which was unfavorable for calcium phosphate precipitation. Pressure head measurements indicated that the baseline level increased over time, confirming that slow clogging had taken place inside the bed, requiring a greater pressure head to maintain flow.

A highly alkaline influent containing inorganic carbon, resulted in a lower lifetime due to chemical clogging [114], [176]. Calcite formation was compared over two time periods within a series of EAF slag columns used in a water resource recovery facility over 1.6 years. The authors linked $CaCO_3$ formation to inorganic carbon in the influent.

5.2.6 Biological clogging

The presence of organic matter (OM) creates an environment that favors biological activity. Microorganisms consume OM and produce various organic compounds, especially biofilm. Biofilms involve a network of microorganisms embedded within a extracellular polymeric substances (EPS) [252]. The EPS consists of polysaccharides and proteins (70-80%), and nucleic acids, with lower amounts of humic acid, uronic acid, oil and amino acids, which enable biofilm formation. In the presence of nutrients and proper environmental conditions (pH around neutral to slightly basic), cells grow mainly on surfaces thereby increasing biofilm thickness [252], [253].

The variation and development of bio-clogging is shown (Figure 5.2). In the first step described above, biofilm growth increases biofilm thickness. This thickness narrows the flow path and blocks narrow channels. Next, microorganisms accumulate and colonize at various points, thereby clogging the voids [254]. If the biofilms are stable, they may persist for a long time at each location. However, unstable colonies (sloughed biofilms) may detach and be deposited on new locations (third type). Thus, stable biofilms exert a major effect on clogging. They form webs that can trap inorganic/non-biodegradable organic particles and create a hard-slimy structure (fourth type). This fourth type, which is more stable, happens to be the worst and leads to severe clogging.

Biomass formation may lead to surface clogging (type 1) in sand filters, as shown by Rodgers et al. [255]. An SEM analysis of the surface layers of three-layer sand filters, that were fed synthetic wastewater consisting of glucose, dried milk and yeast (OM sources), showed that biomass formation had occurred on sand surfaces as well as within pores after 27 months of operation [255]. The gel-like texture of biomass formations leaches into the media subsurface, leading to filter clogging (type 3). The VS content of the filter media at the inlet area more than doubled (2.4%) compared to that of virgin sand (1%). This difference gradually decreased as some biofilms leached to the deeper coarse sand layer, confirming that clogging material may be mobile within coarse media (1.3% VS content). Hydraulic conductivity of the upper coarse layer showed low values compared with virgin sand, thereby indicating surface clogging [255]. Similar results were reported for columns containing gravel and pozzolana as the medium by Ménoret et al. [256]. Tracing tests conducted after 8 months indicated that biofilm growth in the filters had resulted in the formation of a stagnant zone, that produced a residence time distribution (RTD) curve with a longer tail, indicating the presence of dead zones in the filter. During the second flow period, the columns clogged after 18 and 21 cycles for gravel and pozzolana, respectively. The authors attributed this to the lack of a resting period without any flow, leading to increased accumulation of stable OM in the filter media.

Biomass formation in the inlet zone of CWs can prevent wastewater dispersion resulting in ponding, flooding and overflow bypass [238].

As mentioned before, wastewater composition influences clogging in the filter. Al-Saedi et al. examined four different components of synthetic wastewater, i.e. tap water, ammonium and nitrite, ethanol and sucrose, which were applied to several upflow sand columns [257]. The authors added OM in two phases, starting with a C/N ratio of 2 which was increased to 4 after 105 d, by adding ethanol and sucrose. The end point of clogging was assumed when the outflow stream had effectively ceased in upward flow from a header tank with initial head difference of 20 cm. The authors contended that clogging was due to biological activity (type 1), since there was no influent TSS and no excessive accumulation of inorganic solids. The relative hydraulic conductivity (K/K_0) of all columns decreased over the experiments. After increasing the organic source (step 2), final clogging occurred after 105-154, 231-238 and 343-364 d for ethanol, sucrose and inorganic nitrogen WW, respectively. The control column with tap water only lost 40% of K/K_0 after 370 d. OM content analysis (measured as proteins and polysaccharides) showed a uniform distribution of

biofilm growth in all layers. According to the relative low hydraulic conductivity values in the inlet zone, this area could be expected to accumulate more OM compared to the rest of the column [257].

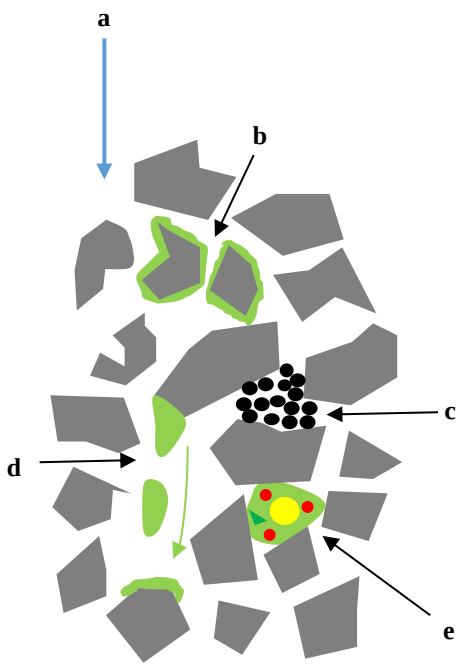


Figure 5.2 Mechanisms of bio-clogging: a) flow direction b) first: biofilm formation c) second: colonization d) third: biofilm detachment e) fourth: inorganic-organic particles entrapped in biofilm.

Two different IBPs, i.e. light weight aggregates (LWA) and sand shell, were used in a horizontal flow system fed batch mode synthetic wastewater, including tryptic soy broth. Visual observations indicated that the water level had risen close to the inlet zone, indicating the possibility of pores being clogged due to biological growth (type 1) [258]. The authors measured drainable porosity and hydraulic conductivity at three depths in each of the three sections (inlet, middle and outlet). In general, LWAs had higher values of drainable porosity and hydraulic conductivity than sand shells before and after treatment with wastewater. The low values of hydraulic conductivity in sand shell at the inlet section indicated clogging due to the presence of high organic matter and biomass growth (type 1). Variability in drainable porosities of the LWA medium caused local clogging at different layers in the inlet and outlet sections. The middle layer of the outlet section experienced a sudden reduction in hydraulic conductivity related to the potential formation of inorganic gels due to calcium leaching from the media and subsequently reacting under low redox conditions (type 4) [258].

Bio-clogging in two sand columns inoculated for four days with pre-treated wastewater plus acetate (as carbon substrate) was evaluated by Seifert et al. [259]. The experiments were performed in three stages: (a) 113 d under bio-clogging conditions, (b) removing the substrate (acetate) from the inlet and (c) hypochlorite injection from day 131-140 for disinfection. Within the first 20 d (720 bed volume), severe clogging was observed in the inlet zone of two columns due to increased reduction in hydraulic conductivity (up to four orders of magnitude) (type 1). This was attributed to microorganism activity possessing sufficient substrate (Phase I). After the first phase, hydraulic conductivity increased for 20-30 d, which was attributed to severe bio-clogging which blocked flow paths, thereby increasing water velocity. Next, the high velocity allowed sand media to be rapidly bypassed and decreased the growth of biomass at the inlet area (Phase II). In Phase III, the detachment of biomass at day 40 slightly increased hydraulic conductivity, followed by Phase IV during which substrate injection ceased, leading to a sudden sharp reduction in hydraulic conductivity being observed. This was attributed to severe clogging due to detached biomass that filled the upper sections (type 3). However, disinfecting the filter using hypochlorite initiated a positive effect of around two orders of magnitude on hydraulic conductivity (Phase V) [259].

Letshwenyo et al. suggested that changes in flow characteristics (type 1) in a tank containing slag/sand/gravel media that was continuously fed wastewater, were caused by biofilm formation at the surface layer [260]. There was no head loss during the first three weeks while water height remained at 5 cm above the media surface (downward flow direction). Head loss development was monitored at weeks 4 and 5 at 2 and 5 cm, respectively. Subsequent to bed cleaning, head losses reached 7 cm at week 10.

The nature of accumulated particles is also important in void filling or filter clogging. Biomass formations are able to fill greater volumes than inorganic TSS or precipitants on an equal mass basis [240]. A mass analyses conducted by Matos et al. [240] showed mostly inorganic particles in the filter media samples with low VS/TS ratio related to the low density of accumulated OM. However, the high inlet zone VS/TS ratios indicated a strong presence of OM and biofilms (type 1) as reported by Matos et al. [240].

The type of OM in wastewater may affect biofilm formation. OM can be divided into two groups: labile (easily biodegradable) and non-labile. The difference between these two groups is manifested in their function, as labile OM is readily available for biological activity while non-labile behaves

in a manner similar to inorganic particles. Zhou et al. [261] investigated four identical synthetic wastewaters in VSSFCWs with sand/plant configuration (Table 5-2):

From a visual aspect, a gel-like slime was observed on the surface of beds 1, 2 and 4, which clogged after 48, 20 and 28 d, respectively. A blanket-like starch layer formed on the surface of bed 3 before clogging occurred. Microscopic images of clogging matter in bed 1 showed a gel-like layer containing polysaccharides and proteins which were known biofilm components (type 1), but additional un-degraded starch particles were present in bed 2 (type 4) [261]. K/K_0, showed a gradually decreasing trend for bed 1 until clogging occurred, compared to a rapidly declining trend in beds 2 and 4. K reduction in bed 3, which was lower than those in other beds, finally reached a steady-state condition without clogging. The upper layers (0-10 and 10-20 cm) were associated with major declines in porosity and hydraulic conductivity [261]. For bed 3, SEM images showed a lack of biological activity (no biofilm) and displayed a mesh of starch particles that allowed solids and water to pass, explaining its ability to reach a stable condition without clogging. Although non-biodegradable particles tend to aggregate in media, they also tend to diffuse further into the subsurface of the filter media [261]. Similar results have been reported by another study [262] which found that fine particles were mostly retained in the upper section of sand filters. These particles mainly consisted of OM that contributed to bio-clogging as well as to physical clogging via particle settling. The upper side of both sand filters were dark and lighter in the subsurface [262].

Table 5-2 The four types of feeding in VSSFCWs by Zhou et al. [261].

No.	Material in wastewater	Type of clogging
1 (type 1)	Glucose	biofilm formation [1]
2 (type 2)	Starch	organic particles [2]
3 (type 3)	Starch and antiseptic	unbiodegredable organic particles [3]
4 (type 4)	Glucose and startch	combinational clogging [4]
[1] Bio-clogging [2] Op-clogging [3] Ip-clogging [4] C-clogging		

Labile OM is not always the cause of the worst clogging. Lianfang et al. investigated different concentrations of glucose and starch in synthetic wastewaters using a continuous downward-flow sand filter over a 3-month period [234]. Reductions in hydraulic conductivity were related to COD and were more pronounced in starch feed. Their conclusion was different from that of Zhou [261],

who emphasized biological clogging. The comparison of organic matter (OM) content between glucose- and starch-based feeds showed only slight differences between layers in the former, but significant differences in the latter. The figure illustrating the correlation between the reduction of effective porosity and accumulated OM content indicates that the distribution of OM is more uniform across the filter layers in the glucose-based feed. Since glucose is a readily biodegradable matter, then clogging in the upper section of columns receiving starch was mainly caused by organic particles instead of biofilms. The authors concluded that TSS concentration may exert a major effect on clogging with biofilm growth accelerating clogging.

Excessively high pH is unsuitable for biomass growth. Using a Filtralite-P column, Hermann et al. [224] found that pH in the 8.5-9 region, facilitated biological activity and inhibited Ca-P precipitation. Although biofilm growth requires proper conditions, such as the presence of OM, neutral pH and nutrients, a recent study by Claveau-Mallet et al. [142] demonstrated that biological activity may take place even under slightly high pH (approximately 9). The experiment was conducted for approximately 500 d using two identical columns filled with EAF slags fed two different synthetic wastewaters: (i) tap water/phosphates (column 1) and (ii) tap water and acetic acid/sodium acetate mixture without nutrients (column 2). The authors observed white precipitation in column 1 as expected and irregular cementations in column 2. Visual observations confirmed the presence of biofilms in all cells of column 2, including in outlet sections with pH over 10. The authors concluded that an alkali tolerant biofilm may form and endure for a long-term, even under harsh conditions. Spider-web formations were noticed between the particles on the surface of slag. This clearly showed that biofilms were able to keep growing in media, even under conditions involving pH > 10 and a lack of nutrients [142].

5.2.7 The consequences of clogging

Hydraulic conductivity, filter lifetime, hydraulic efficiency and filter performance are the main parameters affected by filter clogging. TSS loading, biomass accumulation, particle size of the medium and chemical reactions are factors that affect clogging. Examples of the impact of clogging, resulting in the failure of filter media [255], overflowing or ponding [239] and pore volume reduction [257] have been reported.

Postila et al. attributed the low hydraulic conductivity observed among IBPs during 3 months of feeding, to media with small particle size [263]. They also assumed that the dissolution of clogged

materials may lead to variations in hydraulic conductivity. Complete clogging was recorded by Kandra et al. after feeding 170 L (25 bed volume) and 315 L (46 bed volume) of wastewater to Riversand and Scoria gravel media, respectively, each possessing 2 mm diameter particles [239]. The authors stated that void filling by solids and deposition of particles had clogged the granular filter [239]. A similar conclusion was reported by Gustafsson et al. [83]. Filtra-P was no longer usable after week 35 (971 pore volumes) due to clogging. The authors reported that a yellow-brown color in the effluent indicated the disintegration of Filtra-P. They concluded that particle degradation, which occurred due to matrix dissolution, had resulted in the precipitation of secondary phases [83].

Filter lifetime is strongly influenced by clogging. Bird and Drizo stated that an EAF slag filter had clogged after 52 d (56 bed volume) due to a high TSS loading rate [103] . However, they found that the EAF tanks with lower influent TSS had a longer lifespan [103]. A similar result was obtained with EAF slag by Weber et al. using two different feeds [227]. Clogging due to influent flowing through a CW has not been reported, but severe clogging occurred before 180 d in a separate set of columns due to a high concentration of TSS and BOD_5 [227]. Letshwenyo et al. [260] monitored the operation of a system for over four months and reported that its surface layer required cleaning twice, in weeks 5 and 10, due to biological layer clogging. The author mentioned that accumulation and growth of biofilms on the sand surface had decreased filter lifetime and that the top layer may require frequent cleaning to maintain efficiency of bacterial removal [260].

The hydraulic efficiency (λ) of a filter characterizes the distribution of the influent into the media and indicates short-circuiting or dead zones [264]. A poor λ indicates increased deviation from the plug flow pattern which is measured using tracing tests [265]. The hydraulic efficiency of two types of RFs with λ values between 0.69 to 0.85 for an EAF slag filter and between 0.75 to 0.92 for a BOF slag filter, was measured by Barca et al. [266] . These were the acceptable values for hydraulic efficiency (good efficiency > 0.75, satisfactory efficiency between 0.5-0.75 and poor efficiency $\leq$ 0.5) [264], [266]. However, the treated volume of the BOF filter decreased over time due to void filling, porosity reduction and aggregation of particles, phenomena that were not observed for EAF slags. They concluded that hydraulic efficiency values were possibly related to the creation of preferential flow paths and/or particle segregation in the EAF filter during operation [266].

Evolution of the above-mentioned parameters gradually leads to a decrease in performance efficiency. Vidal et al. suggested that high concentrations of bacteria, dark color and strong odor in a sand filter were signs of a clogged filter [221]. The considerable decrease seen in the performance of CW after a few years of operation may be attributed to influent TSS loading, biomass accumulation and presence of fine sand [267]. Eruptions and pooling were observed after two years with their occurrences increasing over time due to clogging. Furthermore, the astringent odor resulted in undesirable conditions [267]. Operational factors may also explain clogging. For example, Kirkkala et al. found that sand/Fosfilt filter media experienced clogging in the surface layer after only a few months which was due to a lack of distribution pipes that allowed clogging materials to accumulate at a single point and block drainage [268].

5.3 Clogging control strategies

5.3.1 Particle size of reactive filters media

The particle size of PSMs affects the hydraulic conductivity of RFs [217], [269] via an inverse relationship [243]. There are several recommendations regarding PSM particle size distribution. European guidelines recommend gravel sizes of 3-6, 5-10 and 6-12 mm for CWs [220]. Danish EPA guidelines recommends that particle sizes, d_{10} and d_{60}, should be in the range of 0.3-2 mm and 0.5-8 mm for HSSCWs, respectively [237]. Brix et al. [237] used different configurations of various types of sands and artificial media in 44 columns and fed them synthetic wastewater to test P removal. During a 3-month period, no clogging was observed in PSM columns possessing particle sizes in the range of EPA guidelines. In another study using LWA and sand shells with d_{10} of 1.3 and 0.5 mm, respectively, in HSSFCWs, the former showed greater hydraulic conductivity and drainable porosity after long term biofilm growth [258]. In addition to the recommended particle size range, the uniformity coefficient (C_u) should be less than 4 to ensure a suitable hydraulic conductivity and minimize potential clogging [270].

Mancl and Rector recommended a particle size in the range of 0.5-1.5 mm and a uniformity coefficient, C_u, below 3 for sand filters that operate for long periods without resting [271]. The clogging effect is more pronounced in fine sand filters (d_{10} of 0.33 mm and C_u 2.6) compared to coarse sand filters (d_{10} of 0.8 mm and C_u 3) due to particle accumulation and biofilm growth, particularly for compact configurations as reported by Rolland et al. [272].

Published Swedish articles and guidelines recommend particle sizes larger than 4 mm in slag media [81]. Those studies indicate that finer materials show a higher potential for clogging compared to coarse ones. However, P removal capacity may be reduced when larger particles are selected. Although larger PSMs possess greater hydraulic conductivity, they may result in formation of preferential flow paths [260] and thereby a reduced HRT. Kirkkala et al. used Fosfilt, an IBP, in two field-scale sand filters (F1 & F2) fed wastewater [268]. The Fosfilt substrates were not appropriate for low TSS concentrations due to their fine size particle size (0.125-0.5 mm). Similar conclusions were made by Postila et al. [263] who compared four types of media and different column sizes for P removal efficiency. Among media with smaller particle size, fine slag particles (3-10 mm) yielded low hydraulic conductivity values and faster clogging. A project conducted at the Polytechnique Montreal indicated that feeding columns filled with three different slag sizes in the range of 0-1, 5-15 and 20-40 mm displayed lower hydraulic conductivity values in finer media [273]. A low potential for clogging existed in medium size slag, which therefore showed better capability for P removal [273].

The size range of PSMs utilized in previous studies is summarized in Table 5-3. The smallest range of 0-10 mm was the most common. Thus, choosing PSMs with a smaller particle size to maximize P removal was justified. Large-size particles are mostly utilized as a coarse layer for improved wastewater distribution.

Table 5-3 The size range of used PSMs in different studies.

PSM size (mm)	Number of applications
0-10	39
10-20	6
> 20	3

It is recommended that fine particles be mixed with other PSMs. Media mixes or punctual layering was shown to be effective for water flow. Two systems of Polonite/peat (10%) were fed synthetic and real wastewater for 1.5 years by Renman and Renman [274]. The authors used peat in column and tanks to minimize chemical clogging caused by $CaCO_3$. Both columns continued without mechanical clogging thereby preventing overflow and hydraulic failure [274]. It should be noted

that the supplementary material for mixing must have a grain size, thickness, and permeability that are compatible with the primary PSM. Additionally, the supplementary material should exhibit chemical stability and be coarse enough to prevent fine particles from being carried away by the flow [275].

Slag particle size directly impacts hydraulic efficiency and the lifetime of RFs. Particle size optimization can be used to reduce clogging in RFs. One option is to use different particle sizes in series. Claveau-Mallet et al. employed a two-stage system to reduce clogging [114], using 5-10 mm barrels followed by 3-5 mm barrels, where the 5-10 mm barrels removed some influent TSS, inorganic carbon and P [114].

The shape of media particles has little effect on P removal and clogging. Shape irregularities did not directly influence flow path or direct flow towards such as side walls leading to "short circuiting" [239]. Kandra et al. [239] tested four different materials, i.e. zeolite, scoria, river sand and glass beads (polymer material), with similar average sizes of 2 mm but different shapes, that were fed semi-synthetic wastewater. The hydraulic conductivities showed that there was no significant difference between the shapes of filter media, indicating that possible disintegration of granular media could increase the clogging effect.

5.3.2 Reactive filter inlet design

Different inlet design types, including the method of application (direct or indirect), type of feeding (point or distribution) and direction of water flow in the filter (vertical or horizontal), have been used in filtration systems (Figure 5.3). Vertical flows are commonly used with direct applications via distribution feeding.

Two modes of water flow direction are recognized: vertical and horizontal. The horizontal flow pattern is mostly used in wetland structures filled with substrates as shown (Figure 5.3), whereas a majority of RFs considered in this study utilized vertical flow. This may be due to vertical flow filters performing better compared to horizontal flow ones and being simple to construct [202]. Vertical flow itself could be downward or upward. Downward flow systems are associated with a higher probability of surface ponding due to clogging in the subsurface zone leading to overflows. Furthermore, ponding pressure may move particles deeper into the filter [242]. Upward injection is associated with an increased risk for preferential flow towards and along the side walls, thus bypassing wastewater/medium contact. Weber et al. [227] studied the effect exerted by flow

direction (upflow vs downflow) on P removal efficiency and found no significant difference in terms of P removal. However, the author did not investigate the manner in which flow direction impacted potential clogging.

Method of wastewater application may involve direct or indirect feeding. Direct application refers to wastewater feeding without an intermediate step, while indirect application feeds wastewater to a RF from an upstream unit. Direct application mostly entails pumping from a source to the filter. Indirect feeding to RFs could be an overflow of CWs or other treatment units like biofilters or from an upstream processing unit, such as a preliminary settling tank, pumps to constant-head tanks for downward flow. The number of direct injections outnumber indirect applications (Figure 5.3). However, it should be noted that indirect application is relegated to the scope of RFs. Direct application systems are more vulnerable to clogging or mechanical issues caused by TSS and the biological activities associated with untreated effluent, compared to indirect feedings that have received wastewater pretreatment.

Another aspect in the inlet design is the style of feeding, which is divisible as follows: point and distribution. While point feeding is simpler to operate at the laboratory scale, most industrial RFs utilize distribution systems to achieve more uniform application to the RF surface. There are several methods of distribution feeding, including water spraying, distribution pipes and surface coarse layers. At present, published information regarding the relationship between feeding style and hydraulic performance of RFs remains scant. A recent study compared different styles of feeding, including point, distribution and inside injection, in three identical EAF slags fed by synthetic house secondary effluent, using kaolin as TSS [230]. The piezometer table showed 0-, 3- and 10-mm pressure for inside, distribution and point feeding, respectively over several months. In addition, the analyses demonstrated longer periods of stabilization at approximately pH 11, for inside injection compared to others. Injection method not only impacts hydraulic performance, but also chemical conditions that may affect P removal.

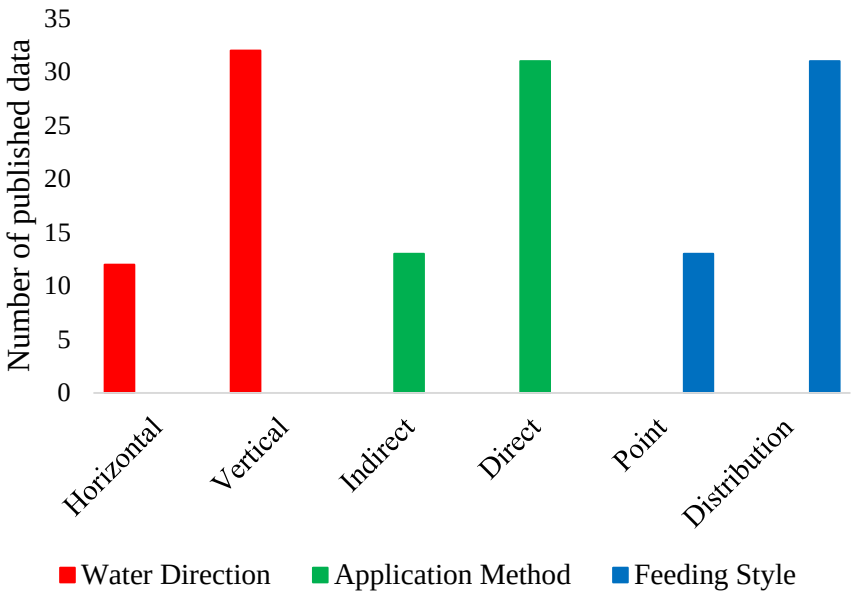


Figure 5.3 Summary review on inlet design of studies in Table C1.

5.3.3 Bicarbonate input

Secondary reactions between alkaline elements (mostly Ca and Mg) and bicarbonate result in mineral formation and filter exhaustion [263]. There are two major sources of bicarbonate potentially entering RFs: (i) wastewater and (ii) air containing CO_2.

The wastewater with origin of groundwater may become highly alkaline due to contact with soluble carbonate minerals in aquifers [112], [113], [276]. Therefore, the alkalinity and bicarbonate levels of groundwater are intrinsic to the source and not amenable to regulation (non-operational source). However, CO_2 diffusion from air to water provides a second source of bicarbonate. As explained by Penn et al. [251], as the CO_2 concentration that is soluble in water increases, it may easily convert to carbonate as follows:

$$CO_2(g) + H_2O \leftrightarrow 2H^+ + {CO_3}^{2-} \qquad 5.13$$

Air containing CO_2 was reported by Barca et al. to reduce P removal efficiency in a reactor that was open to the atmosphere, limiting the filter's ability to raise pH [277]. In addition, it is a fairly irreversible reaction which consumes soluble Ca required for P removal through the precipitation of calcite. Moreover, calcite itself has poor solubility in water compared to other Ca and Mg minerals [251]. Another negative aspect associated with CO_2 diffusion in the influent, for instance

in slag filters, is that bicarbonate may promote the dissolution of Ca phosphate, resulting in the re-release of P that had been previously removed [251]. The diffusion of air (or CO_2 dissolution in water) shows the importance of isolating RFs from exposure to air [278]. A recent study that investigated a series of slag barrels used for P removal [114] predicted that the operational longevity of an RF system with an influent alkalinity of 50 mg $CaCO_3$/L would be 7 years of operation, compared to 2 years of operation with and influent alkalinity of 200 mg $CaCO_3$/L.

5.3.4 Operational strategies

Some techniques aimed at overcoming clogging in RFs have been described. Those that have been tested by past studies include the use of pre-filters, applying a series of RFs, revitalization of filter materials, optimization of operation factors (such as HRT and flow direction), RF isolation from the air, chemical addition and backwashing.

Sacrificial pre-filters with large particles between 10 and 40 mm were tested by Koiv et al. [279], who found that they were not effective in increasing the lifetime of a system due to low pH. However, this type of sacrificial pre-filter may be acceptable if the pH could be sufficiently increased to allow the precipitation of calcium carbonate [114].

Filters in series can help ease operations and correct mechanical issues, and thus be usable during maintenance periods. Bird and Drizo [101] suggested a system that involved redirecting flow to a second filter while the first filter was being cleaned.

Using a long HRT_v can favor the formation of calcium carbonate especially at inlet zone whereas using a short HRT_v or in the other way, higher flowrate, may allow participation of calcite in whole of filter [223].

Certain strategies may be utilized to restore the treatment capacity of clogged filters, mainly in constructed wetlands with reactive materials. A refurbishment process involving partial or complete media removal for cleaning or replacement may be helpful [280]. Although P removal capacity may be recovered via partially excavating, refilling and resting the filter [103], the effects that this procedure may exert on clogging cannot be guaranteed.

Reducing the atmospheric CO_2 input improves the efficiency of P removal by maintaining a high media pH and reducing clogging by limiting calcium carbonate precipitation. Hydraulic performance was improved after sealing columns, due to a reduction in calcite formation caused

by atmospheric CO_2 [278]. Inorganic carbon concentration in the influent of the filter may be reduced and regulated via certain configurations, for example, by recirculation in a septic tank as demonstrated by Claveau-Mallet et al. [199]. Upstream nitrification may also reduce the concentration of inorganic carbon in the influent as it is used as the carbon source for cellular synthesis for this autotrophic biomass [114].

Chemical remediation by adding oxidizing agents, such as hydrogen peroxide (H_2O_2), has also been suggested by Pedescoll et al. who conducted tests in constructed wetlands [216]. Hydrogen peroxide, which was used in a HSSFCW in Minnesota by Nivala and Rousseau [218], reportedly displayed an acceptable performance in both de-clogging and pollutant removal. It should be noted that chemical addition was tested in CWs. This may be related to the fact that the major removal mechanism for their PSM was adsorption, which allows for the sorbate to be desorbed via a regeneration process. RFs, which mostly rely on precipitation as the removal mechanism, are less amenable to PSM recovery and de-clogging.

Backwashing with treated water is one method used to control clogging in RFs. Xie et al. [200] followed two regeneration methods in a BF slag column: resting (no flow period) and backwashing with treated water with elevated Ca concentrations. Both methods showed sufficient regeneration in relation to Ca recovery and P removal.

5.3.5 Clogging monitoring

It is important to monitor the performance of treatment systems and prevent them from failing or breaking down. Several methods of hydraulic monitoring are described below.

5.3.6 Hydraulic conductivity

Clogging in filters may be identified via hydraulic conductivity measurement. Hydraulic conductivity (K) indicates the resistivity of a material against flowing water. The range of hydraulic conductivities for various materials used in filters is presented (Table 5-4), with higher values indicating the ease of water flow through filter media.

Two methods are commonly used to measure hydraulic conductivity on a laboratory scale. Notably, RFs operate under saturated conditions, and thus the methods presented below involve $K_{saturation}$ measurements.

Table 5-4 Hydraulic conductivity reported for various materials including natural based, industrial by-product or man-made materials.

Material	**grain size (mm)**	**K (m/d)**	**Reference**
Natural sands			[237]
Almind	1.4 (d10)	770	
Birkesig	0.32 (d10)	67	
Farum	0.2 (d10)	30	
Quartz	0.29 (d10)	111	
Steel Slag	3-10	4.32	[263]
Copper Slag	0.425-1.18	69.64	[115]
Ca-Fe oxide granules	-	0.19	[281]
LECA	1-20	509-16640	[282]
Filtrate-P	0.5-4	410-1750	
Seashell	0.7-15	561-26432	
Limestone	2-12	3070-2882	
Calcinated diatomaceous ear (CFD)	0.5-6	384-4631	
Ferric hydroxide granules (CFH)	0.5-2	850	

The fixed wall permeameter-constant head method is a common test for hydraulic conductivity of coarse grained materials [283], [284]. The setup constitutes a rigid cylinder in which the test sample is placed between two porous discs. In the constant head method, the water tank is placed above the column and the water level inside the water tank is maintained during the experiment. The volume of water that passes through the materials is easily measured during a given time and used to calculate K using Darcy's law (Eq. 5.15). Contrary to the process involved in the constant head method, the fixed wall permeameter-falling head method involves a process in which the head of

the reservoir tank is not constant and falls during the time of operation [285]. This method utilizes Eq. 5.16 for K:

$$Q = KA\frac{(h_2 - h_1)}{L} \quad 5.14$$

$$K = \frac{a \times L}{A \times t} \ln\frac{h_1}{h_2} \quad 5.15$$

Where flow rate (Q), height (L) and cross section (A) of the sample, the cross section of the tube (a) and the initial and final heights (h1 and h2, respectively).

The flexible wall permeameter-constant head method is a pressurized controlled system, the walls of which are removable. This method decreases the possibility of leakage along sidewalls, which tends to occur with fixed walls. Another feature of this setup is that it is conducted within a triaxial device containing porous discs, which seal the sample from the bottom/top sides, and a water measuring device [286].

Hydraulic conductivity measurements enable a view of the flow pattern in the RF and help to predict clogging in advance via decreases in the measured K values. It is generally accepted that the K values in the inlet section will be less than those in the subsurface of the filter, due to major clogging in this section, [287], although not always. Pedescoll et al., studied the operation of two real wetlands for 5-years and reported the occurrence of ponding in the Verdu wetland and several flooding events in the Corbin wetland [238]. A hydraulic conductivity study was performed in March and April 2007. The expected pattern of low K values at the inlet zone and further along the length of the wetland was not observed. Hydraulic conductivity of both wetlands showed lower K values in both inlet and outlet zones and higher values (1-3 orders of magnitude) in the middle zone. They reported that clogging occurred in both wetlands due to higher loading rates, with clogging being more pronounced in the Corbin wetland, and that clogging blocked the flow of wastewater into the inlet zone, thereby leading the wastewater from the inlet towards downstream zones. Subsequently, it infiltrated into the outlet zone, where biofilm growth reduced K values in the outlet zone [238]. Another reason for high K values in the midway of the filter is the formation of flow paths near the walls or mid filter. These develop as a result of clogging and blocked flow paths, thereby allowing water to quickly pass through un-blocked zones with less contact with media. Thus, these factors should be considered when reaching conclusions based on K values.

5.3.7 Tracer test

The tracer test allows the flow behavior in a reactor or a system to be quantified. This test is conducted by adding a known concentration of a non-degradable substance to the system and assessing its concentration at various locations as a function of time [219].

The four methods that may be used to inject a tracer are as follows: (i) pulse injection; (ii) step; (iii) periodic and (iv) random input. A complete description of each injection method is provided by Levenspiel [288]. The three substances commonly used as tracers are (i) lithium (cation), (ii) bromide (anion) and (iii) fluorescent dyes; others include chloride, iodide, and fluoride. Fluorescent dyes include rhodamine RWT and B fluorescein [219], [289]. Headley and Kadlac [289] discussed details regarding tracer selection according to system environment, injection amount, and the required number of samples.

Penn et al., [251] used a fluorescent yellow/green dye to qualitatively assess clogging or preferential flow in the filter of a P removal structure containing slag, that was used to treat tile drainage from high-P soils. The upstream dam showed small locations of dye. They concluded that the significant limitation of water flow that was observed had been caused by clogging in the slag bed.

The most common and practical tracer test is based on pulse injection followed by the recording of outlet concentration in relation to time. Results can be compared to theoretical or nominal HRT (nHRT). Several studies have used tracers to estimate tracer HRT [226], [263], [272]. Tracer HRT may more or less show hydraulic residence time compared to nHRT due to various levels of mixing, dispersion and hydraulic inefficiencies in the filter [222], [289]. The curve obtained from outlet tracer concentration versus time is termed residence time distribution (RTD). The surface area under the RTD curve represents the mass of tracer over the average flowrate (for instance g.s/L). This can be compared with the known mass of tracer that was injected into the system, based on the flowrate. This figure is also useful for estimating two important parameters: tracer or mean HRT (τ); and variance (σ^2), as shown in the following equations:

$$\tau = \frac{\int_0^\infty t\,C dt}{\int_0^\infty C dt} \qquad 5.16$$

$$\sigma^2 = \frac{\int_0^\infty t^2\, C dt}{\int_0^\infty C dt} - \tau^2 \qquad 5.17$$

where C is the measured concentration of tracer and t is time. A τ close to nHRT suggests that the entire filter is being utilized by wastewater. A value less than nHRT indicates dead zones or a stagnant point in the filter, while higher values indicate short circuiting, tracer sinking in the filter, or adsorption onto filter media. Variance is an indication of the nature of mixing (lateral, longitudinal, or vertical) of wastewater during passage from the filter [219], [288], [289]. According to a study [273] that was conducted to evaluate the use of different slag media for P removal, there was a dead zone in larger filters, compared to medium size filters which demonstrated short-circuiting without a dead zone.

5.3.8 Pressure head

Pressure head is defined as water pressure measured at a given location. In the laboratory, a piezometer table measures liquid level by allowing equilibration with atmospheric pressure at different locations or elevations of filter media [142]. Measurements conducted by Anjali et al., [229] showed that the pressure head of a column with a lower loading rate was 65 mm after 35 d and that this pressure head increased with the loading rate to 75 mm after 45 d of operation. Maximum head loss was 190 mm for 1.28 m/h filtration rate [229]. Under field conditions, this may be measured by installing monitoring wells. An increase in the pressure level in the distribution tank indicated clogging in the slag P removal structure [57]. Reportedly, during a test with a feed showing inorganic alkalinity, the pressure head, which was below 2.5 cm mainly in cell 1 (bottom of the column), decreased with a decreasing influent flowrate [142].

5.4 Recommendations for the future studies

We recommend that future studies aimed at investigating RFs should focus on reporting systematic data and qualitative information related to clogging, which may help develop clogging mitigation strategies. A list of "what-to-report" elements is proposed (Table 5-5).

Table 5-5 Proposed guidelines for reporting data on clogging in scientific studies on reactive filters.

Aspect of RF study	Note
Influent alkalinity	influent alkalinity (mg $CaCO_3$/L) or influent TIC (mg C/L). This data is a direct indication of how much calcite can be formed in the voids.
Sealing from CO_2 infiltration	level of sealing of the RF container and sides against CO_2 infiltration. State the thickness and type of material of the container, the presence of caps and type of cap used to seal the filter. Is the media in direct contact with air? Were the CO_2 fluxes through container sides, container caps or piping measured?
Operational parameters	Specify if a fixed water level was set for flow control; the operating pressure of the pump; if there is an overflow system; the evolution of pressure over time; the effect of maintenance events on operation pressure; hydraulic conductivity over time; the feeding mode as batch or continuous, inlet dosing as point feeding, distribution pipe, spraying, or coarse media.
Particle size stability	Report initial and post-dismantling particle size distribution on representative samples to assess quality control. Report layering of media
Visual observations	Provide explicit details regarding "clogging problems" specifying, for example, overflow conditions, short-circuiting, clogging due to pipe filling or media cementation.

5.5 Acknowledgement

This project was funded by the Canada Research Chair for Decentralized and Small-Scale Water Treatment (file number 950-232871). Amin Tabatabaeefar would like to thank Fayolle Canada for the receiving of the scholarship and wish to thank the Foundation et Alumni de Polytechnique Montréal and Polytechnique Montréal for their support.

CHAPITRE 6 ÉTUDE DE PERFORMANCE DU CONCEPT D'ENTRÉE DANS LES FILTRES RÉACTIFS COMME UNITÉ DE TRAITEMENT TERTIAIRE POUR LES SYSTÈMES D'ASSAINISSEMENT DÉCENTRALISÉS

6.1 Introduction

Les filtres réactifs (FR) ont récemment attiré l'attention en raison de leur capacité à éliminer les polluants de l'eau contaminée par des métaux [290], des nutriments [90], [291] et des colorants [292]. Leur petite taille, leur simplicité d'utilisation et leurs coûts réduits sont des caractéristiques qui favorisent leur application dans le traitement des eaux usées [293]–[295]. Différents matériaux peuvent être utilisés dans les FR pour l'élimination ciblée des polluants. En fonction de la nature du matériau adsorbant et des conditions opérationnelles, différents mécanismes régissent l'élimination des polluants, notamment l'adsorption [296], l'échange d'ions [297] et la précipitation [172] etc.

En contradiction avec les avantages mentionnés ci-dessus des FRs, il existe également quelques problèmes liés à leur mise en œuvre. Indépendamment de la performance du matériau réactif et de sa sélection, la performance hydraulique des FR est essentielle. Le temps de séjour hydraulique (TSH) contrôle le temps de contact entre les matériaux réactifs et les eaux usées [298]. Les FRs peuvent présenter des limitations physiques telles que des courts-circuits, des zones mortes, des chemins secondaires et des obstructions, qui perturbent ce contact [176]. Plusieurs études ont examiné les mécanismes des défaillances hydrauliques, incluant des paramètres physiques, chimiques et biologiques dans les milieux poreux [299]–[302]. Prétraitement des eaux usées par substrat, sélection du substrat, superposition des matériaux, mélange des matériaux, optimisation du temps de séjour hydraulique (TSH), et repos des milieux poreux [211]–[213] sont quelques solutions pour surmonter le problème. Généralement, les filtres réactifs (FR) sont divisés en deux modes d'alimentation : vertical (à écoulement ascendant ou descendant) et horizontal. La pulvérisation [55], la distribution via une couche de matériau grossier [272] et le tuyau de distribution [251] sont des pratiques utilisées à deux fins : 1) une meilleure distribution des eaux usées 2) l'anti-colmatage dans la zone d'entrée. Dans une zone humide construite (ZHC) à échelle

de laboratoire, avec une longueur totale de 50 cm, conçue pour l'élimination du phosphore dans les effluents domestiques secondaires, une couche de gravier (1,5-2 cm de diamètre) a été placée dans la zone d'entrée. Cette section de la couche de gravier avait une longueur de 5 cm et servait de couche de matériau grossier [303]. Les auteurs ont affirmé que cette configuration aide à minimiser le colmatage, mais aucune comparaison n'a été disponible pour appuyer cette affirmation. De manière similaire, Bird et Drizo ont utilisé des scories de four à arc électrique de 10 à 20 mm de diamètre (18 % en poids) dans la zone d'entrée de deux colonnes de filtres verticaux, qui étaient par ailleurs remplies de matériaux de 5 à 10 mm de diamètre (82 % en poids) pour réduire les incidents de colmatage. Ils ont également ajouté un filtre en toile de fromage sur les tuyaux d'entrée des filtres, ce qui a permis de réduire la concentration en MES de 5 %. Cependant, l'effet de cette conception d'entrée sur la distribution de l'effluent reste incertain, et le filtre a été gravement colmaté après 52 jours [101]. Le tuyau de distribution est également utilisé pour l'injection des eaux usées dans le filtre. Penn et al. [251] ont utilisé un lit de scories alimenté par le bas via un tuyau de distribution perforé, permettant ainsi aux eaux de drainage d'entrer dans le lit de scories à partir de différents points pour l'élimination du phosphore. Le niveau de charge de pression de référence a augmenté progressivement au cours de l'expérience, indiquant un colmatage dans le média de scories. Les auteurs ont noté un manque de flux uniforme à travers le média de scories, comme observé lors de la surveillance [251]. Ces articles publiés ont discuté des facteurs opérationnels potentiels qui pourraient réduire la possibilité d'échec, cependant, il n'existe pas d'études sur la conception des entrées et son effet sur la performance hydraulique des filtres réactifs (FR). De plus, une autre méthode de conception des entrées est l'injection en vrac. Dans une étude menée par Dunet et al., deux colonnes de filtres verticaux ont été utilisées, composées de mélanges de béton/sable et de scories de four à oxygène basique/sable [241]. Un volume vide a été maintenu au-dessus du média filtrant dans la colonne grâce à une alimentation intermittente. Après chaque cycle d'injection, la surface supérieure était soudainement remplie d'eaux usées, qui passaient ensuite à travers le média filtrant. Malgré le colmatage du média de scories, deux espaces vides étaient présents avant et après les matériaux filtrants à l'intérieur de la colonne pour introduire et collecter l'eau, respectivement, entraînant une perte de volume du filtre [241]. En fin de compte, il n'existe pas de données comparatives sur l'effet de la distribution de l'eau dans le filtre, ou plus précisément, de la conception des entrées, sur les performances hydrauliques et de traitement.

Ainsi, l'objectif de cet article est de comparer la performance hydraulique de filtres réactifs (FR) avec trois conceptions d'entrée différentes lors du traitement des effluents domestiques secondaires. Trois filtres identiques à scories de four à arc électrique (EAF) à écoulement ascendant ont été mis en place pour l'élimination du phosphore à partir d'effluents domestiques secondaires simulés. La montée en pression, le pH, l'alcalinité, ainsi que les concentrations d'anions et de cations ont été mesurés et comparés entre les colonnes.

6.2 Matériaux

6.2.1 Les Scories

Les scories de four à arc électrique (Harsco Minerals, situées à Contrecoeur) ont été fournies par l'entreprise partenaire, Bionest. Les scories ont une taille de particules allant de 0 à 12 mm, la majorité se situant entre 3 et 7 mm.

6.2.2 La préparation des eaux usées

La caractérisation complète des eaux usées synthétiques utilisées est présentée dans une étude précédente [176]. Les eaux usées synthétiques ont été préparées en ajoutant du KH_2PO_4, du K_2HPO_4, du $NaNO_3$, du NH_4Cl et une solution tampon d'acide acétique/acétate de sodium à de l'eau du robinet. L'alcalinité mesurée était d'environ 100 mg $CaCO_3$/L. Deux types de solides non solubles, de kaolin (70 % en poids) et de billes de verre fines (30 % en poids), de taille 100 microns, ont été utilisés comme solides en suspension. Il convient de noter que, pour atteindre le colmatage dans un délai plus court, la concentration des solides en suspension a été fixée à 100 mg/L. Des billes de verre grossières de 1 à 2 mm ont également été ajoutées (50 % de kaolin/30 % de billes de verre fines/20 % de billes de verre grossières) pour augmenter le colmatage dans les colonnes 1 et 2, au cours des 4 dernières semaines de l'expérience. Lors de la préparation d'un lot d'influent, tous les composants ont été ajoutés dans un baril de 200 L et mélangés en continu avec un mélangeur mécanique, sauf pour les solides en suspension. Au moment de l'injection des solides en suspension, le système a été arrêté, après quoi le tuyau d'entrée a été déconnecté et les solides en suspension ont été ajoutés manuellement au tube avant d'être reconnectés à la colonne.

6.2.3 Tests de colonne

Trois colonnes identiques d'un diamètre de 25 cm et d'une hauteur de 50 cm ont été remplies de scories de four à arc électrique. Trois points d'échantillonnage ont été connectés à des piézomètres,

du bas vers le haut des colonnes, à des hauteurs de 10, 25 et 40 cm, respectivement. Les points d'injection étaient : 1) injection par le point bas, 2) injection par le tuyau de distribution, et 3) injection interne, comme montré dans la Figure 6.1.

Le tuyau d'injection dans la colonne 1 était un tuyau rigide en PVC de 1,9 cm de diamètre. Il a été inséré dans la colonne 1 par le côté, s'étendant de 5 cm au-dessus du fond. Le côté supérieur du tuyau présente un trou et est recouvert d'un capuchon pour empêcher les scories de pénétrer dans l'ouverture du tuyau, avec un diamètre plus grand pour permettre à l'eau de s'écouler par le capuchon après l'avoir frappé.

Dans la colonne 2, l'injection était directement en connectant un tuyau de 1,9 cm au milieu de la surface inférieure.

Pour la colonne 3, le tuyau de 1,9 cm a été divisé en trois tuyaux à l'aide d'un connecteur en Y. L'injection par le bas a ensuite été effectuée à partir de trois points en ligne, espacés de 2 cm. Pour empêcher les particules de scories de tomber dans les tubes d'entrée, deux plaques en maille plastique avec une taille de grille de 2 mm ont été placées au fond des colonnes 2 et 3.

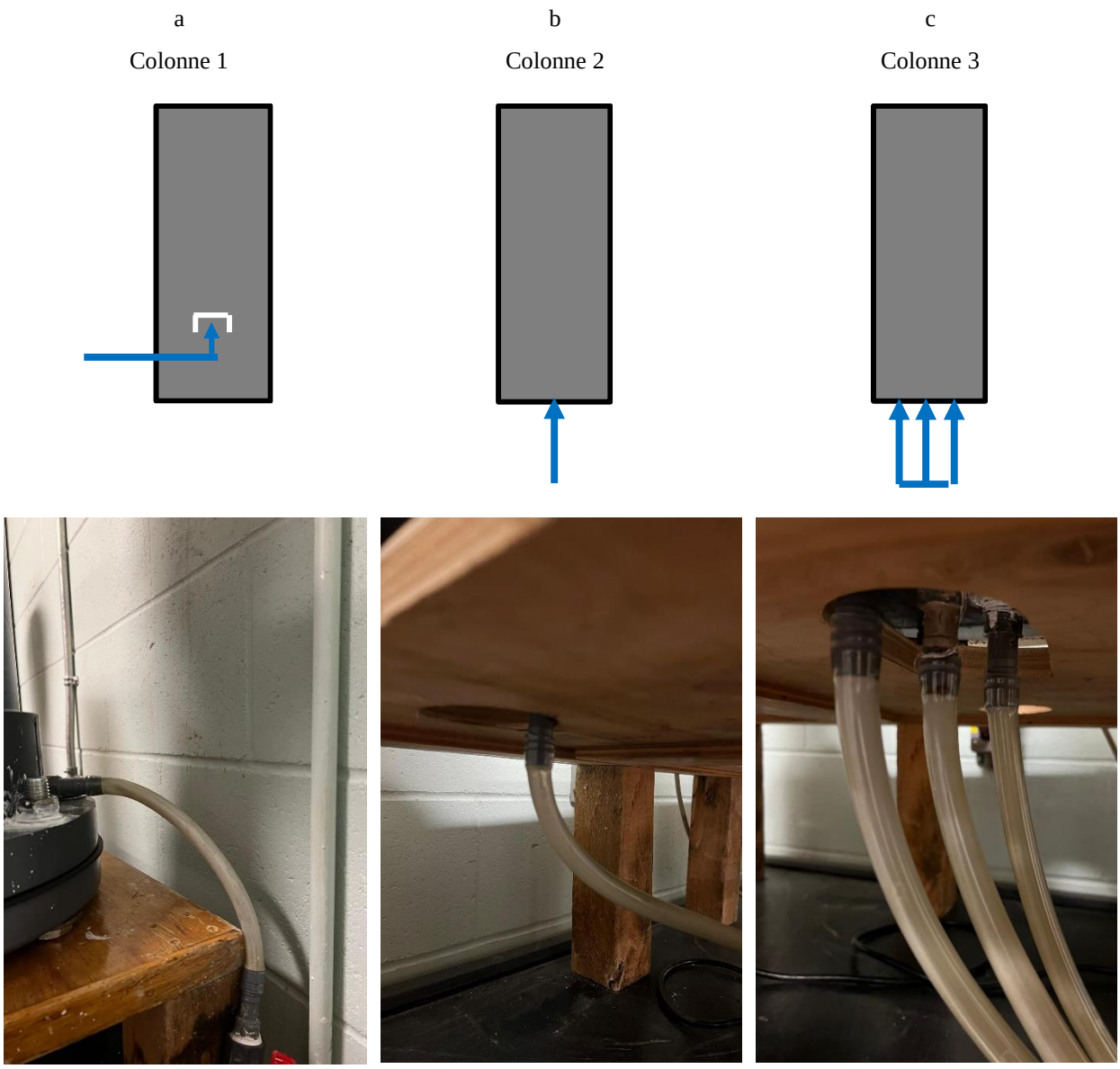


Figure 6.1 Les conceptions d'entrée pour la comparaison : a) injection interne - Colonne 1 b) injection par le point bas - Colonne 2 c) tuyau de distribution au fond - Colonne 3.

Un baril de 200 L était rempli chaque semaine en ajoutant la quantité nécessaire de produits chimiques à de l'eau du robinet. Le baril était vidé et lavé toutes les deux semaines. Trois pompes péristaltiques distinctes transportaient les eaux usées synthétiques vers les colonnes depuis le baril, qui était maintenu à 4 °C. Le temps de séjour hydraulique en vide était fixé à 24 h pour permettre des réactions suffisantes (débit d'environ 5,5 mL/min). Les solides en suspension étaient ajoutés directement dans les tubes d'entrée une fois par semaine, comme décrit ci-dessus, après quoi le débit était augmenté pendant 10 à 20 secondes pour garantir le transport des solides dans les filtres.

La durée totale de l'expérience depuis le jour de départ était de 15 semaines, sauf pour la colonne 3 qui a commencé une semaine plus tard. L'installation, y compris le baril d'alimentation, les trois colonnes avec les connexions et la table des piézomètres, est présentée dans la Figure 6.2.

Le pH et l'alcalinité étaient mesurés deux fois par semaine aux points 1, 2 et 3. Le pH et l'alcalinité des eaux usées synthétiques dans le baril étaient vérifiés une ou deux fois par semaine. La charge de pression sur le piézomètre était surveillée en continu chaque jour pour enregistrer tout changement.

6.2.4 Les analyses

Le pH et l'alcalinité ont été testés selon [138]. De l'acide sulfurique à 0,05 N a été utilisé comme titrant dans les analyses d'alcalinité. L'alcalinité a été calculée à travers Eq. 6.1:

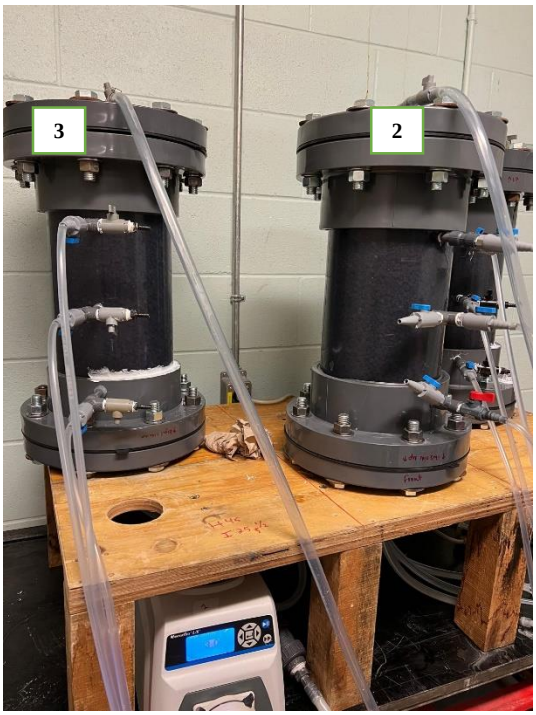
$$Alcalinit\acute{e}\left(mg\frac{CaCO3}{L}\right) = \frac{v * N * 50 * 1000}{V} \tag{6.1}$$

où v est le volume de titrage, N est la concentration de l'acide sulfurique, et V est le volume de l'échantillon. La charge de pression dans les colonnes a été mesurée à l'aide de la table des piézomètres pendant les 15 semaines de l'expérience.

a

b

c



d

Figure 6.2 L'installation complète avec a) le baril d'injection, b et c) les colonnes 1 à 3, d) la table des piézomètres.

6.3 Résultats et discussions

6.3.1 Accumulation de pression

L'accumulation de pression et le colmatage dans les filtres réactifs se produisent pour plusieurs raisons. Le premier aspect est la taille des matériaux filtrants. Les particules plus grossières permettent facilement à l'écoulement de passer à travers le filtre, cependant, l'élimination du phosphore est inférieure par rapport aux MSP fins qui possèdent généralement une capacité d'élimination du phosphore élevée [217], [269]. L'étude de Hatt et al. a comparé différents médias, y compris des sables fins et un mélange de sable/particules [304]. Les données de conductivité hydraulique de leur étude ont montré que les médias à mélange avec une conductivité hydraulique initiale plus élevée présentaient des taux de colmatage plus faibles par rapport aux médias en sable fin pur. La plage de taille de plusieurs matériaux de filtration de phosphore (PSM) utilisés dans plusieurs filtres pratiques d'élimination du phosphore est donnée dans le Tableau 6-1. Comme on peut le voir dans le Tableau 6-1. As can be seen in Tableau 6-1, la gamme de taille des MSP variait entre 0 et 10 mm. Cette gamme peut représenter la taille optimale pour la performance hydraulique et l'élimination du phosphore dans les filtres réactifs.

Les matériaux de filtration de phosphore (PSM) fins disponibles, en particulier les PSM naturels tels que la bauxite [61], la dolomite [65], la zéolite [67] et les sols [232] sont plus susceptibles au colmatage. Bien que ces particules, qui se situent principalement dans la plage de taille de 1 à 100 microns, montrent de bonnes performances d'élimination du phosphore, elles ont un fort potentiel de colmatage [307]. Une façon pratique de surmonter le colmatage est d'utiliser des médias mixtes [308]. Cela peut être réalisé en mélangeant différents MSP ou en combinant le MSP principal avec d'autres particules pour créer une plus grande porosité du média, ce qui réduit la probabilité de colmatage [211]. Cependant, il existe des études opposées mentionnant que le mélange de PSM influence négativement la conductivité hydraulique en raison de la dégradation des MSP [241] ou d'une cimentation sévère [309]. Par conséquent, la sélection des PSM pour le mélange de médias doit être effectuée avec soin.

Tableau 6-1 La gamme de taille des matériaux de filtration de phosphore utilisés dans plusieurs filtres d'élimination du phosphore par rapport à cette étude.

No.	MSP	Taille des MSP (mm)	Reférence
1	Filtralite-P™	0-4	**[250]**
2	AEF scories	5-10	**[305]**
3	Leca	4-10	**[306]**
4	Polonite	2-6	
5	AEF scories	3-7	This study

Un autre aspect de la perte hydraulique est la dégradation des MSP en particules plus petites, due à la stabilité mécanique ou à la nature des MSP après contact avec des polluants. Dans l'étude de Saaremäe et al., les granules d'oxyde de Ca-Fe ont perdu 20 % de leur masse lors des expériences en lot ; pendant les tests de filtration, les granules se sont écrasés ou déformés, ce qui a diminué la conductivité hydraulique [281]. Les colonnes de l'étude actuelle ont été démontées après 15 semaines de fonctionnement pour observer les scories ; aucune scorie écrasée n'a été observée, indiquant la stabilité mécanique des scories.

La conception de l'entrée est le troisième facteur qui reçoit peu d'attention. La conception de l'entrée fait référence à la manière dont les eaux usées sont introduites dans le filtre. Il existe plusieurs règles pratiques pour la conception de l'entrée afin d'inhiber le colmatage dans la zone d'entrée et d'améliorer la distribution des eaux usées dans les filtres. Comme mentionné précédemment, une méthode courante dans les zones humides construites (ZHC) consiste à utiliser des médias grossiers, où le point d'injection est dirigé vers la surface transversale, soit horizontalement, soit verticalement [303]. Anjab et al. ont utilisé quatre médias de scories horizontaux différents de tailles variées, à la fois seuls et mélangés avec du calcaire/sable de silice, dans la zone d'entrée d'un filtre de 70 cm avec une couche de gravier de 10 cm [273]. L'expérience du test de traçage a confirmé l'existence de courts-circuits et de zones mortes dans les filtres. Cependant, il n'est pas clair dans quelle zone cela s'est produit et si la couche de gravier a aidé à la distribution des eaux usées ou à prévenir le colmatage [273]. La construction d'une couche grossière dans la zone d'entrée a également été appliquée dans des filtres verticaux. Par exemple, Postila et al. ont placé une couche de 3 cm de sable de quartz au fond d'une couche de 31 cm de média de scories pour garantir une distribution uniforme de l'eau. Cependant, en raison des valeurs de pH et de PO_4 rapportées dans

les flux d'entrée et de sortie, cette affirmation n'a pas été vérifiée de manière définitive, en particulier de l'entrée jusqu'au milieu de la colonne [263]. L'étude de la conductivité hydraulique sur l'ensemble de la colonne a également montré une tendance à l'augmentation, attribuée à un écoulement préférentiel à l'intérieur du filtre [263]. Dans l'étude actuelle, sans média grossier dans la zone d'entrée et en utilisant la même gamme de scories dans la colonne 1, aucun développement de la charge de pression n'a été observé. Cependant, une accumulation de pression a été enregistrée dans les colonnes 2 et 3. Cette différence a été attribuée à la conception de l'injection d'entrée dans la colonne 1.

Ce sujet, la conception de l'entrée dans les filtres réactifs, est similaire à l'irrigation goutte à goutte par injection d'eau à travers des émetteurs goutte à goutte dans le sol [310]. Les émetteurs qui peuvent fonctionner dans les deux modes, sous pression ou non pressurisés (alimentation par gravité), font généralement passer l'eau initialement par un tuyau d'entrée, puis par un chemin d'écoulement et enfin par une sortie [311]. Tout comme dans les filtres réactifs (FR), le principal problème des systèmes d'irrigation goutte à goutte est le colmatage, qui peut être d'origine physique, chimique ou biologique [312]. Les solides en suspension, la précipitation chimique et la formation de biofilm peuvent bloquer chaque partie — l'entrée, le chemin d'écoulement ou la sortie — pendant le temps d'injection [313]. Les études sur le colmatage des émetteurs rapportent principalement un colmatage dans le chemin d'écoulement dû au dépôt de solides en suspension, à la précipitation chimique résultant de l'injection chimique, et dans une certaine mesure, aux biofilms [310], [311].

Dans cette étude, le filtre de scories de four à arc électrique (EAF) fonctionne de manière similaire aux émetteurs non pressurisés en raison du faible débit continu. Les eaux usées passent par un tuyau d'entrée puis par une surface en maille pour la distribution dans les colonnes 2 et 3. La colonne 1 a une configuration différente, où la ligne est insérée horizontalement par le côté et injecte ensuite les eaux usées à l'intérieur du filtre, avec un capuchon de protection sur le côté supérieur du tuyau (Figure 6.1a). La charge de pression mesurée rapportée dans le Tableau 6-2 a montré la différence de pression entre les colonnes.

Il est concevable que la colonne 2, avec injection par le point bas, ait atteint une accumulation de pression plus élevée en raison d'une plus grande accumulation au point d'injection. La colonne 3, avec injection par tuyau de distribution, est similaire à l'injection par point avec une charge de

pression moindre, car les particules peuvent se disperser davantage au fond de la colonne. Il n'y avait pas de charge de pression visible pour la colonne 1 avec injection interne pendant les expériences, probablement en raison de la méthode d'injection. Les eaux usées avec des solides en suspension, après distribution, pourraient se déplacer vers le bas de la colonne ; peut-être même que l'accumulation au fond n'influence pas la performance hydraulique.

Tableau 6-2 La différence de charge de pression mesurée dans les colonnes 1) injection interne 2) injection par le point bas 3) tuyau de distribution au fond après 4 mois de fonctionnement.

Colonne 1 (injection interne)	Colonne 2 (injection par le point bas)	Colonne 3 (tuyau de distribution au fond)
0	10 mm	3 mm

Il convient de noter que pour l'injection de solides en suspension à un débit élevé, les particules pourraient migrer vers les sections supérieures. Cela pourrait diminuer la possibilité de charge de pression.

Il y a plusieurs points d'accumulation potentielle menant à une accumulation de pression : 1) Les tuyaux utilisés pour le transfert des eaux usées, comme on peut le voir dans la Figure 6.1. Les tubes en plastique d'entrée au point d'injection des solides en suspension sont recouverts d'une fine couche de kaolin fixée à l'intérieur. Il n'est pas concevable qu'ils aient influencé l'accumulation de pression en raison du grand diamètre des tuyaux. Cependant, cela pourrait être important dans une opération à long terme, car cette accumulation pourrait rétrécir le chemin d'écoulement. 2) De manière similaire aux émetteurs, les grilles de la surface en maille dans les colonnes 2 et 3 se sont remplies dans une certaine mesure d'une couche de kaolin jaunâtre bloquant le chemin de l'eau (Figure 6.3).

Figure 6.3 La surface en maille au fond de la colonne 2. Le point central est libre, car un débit élevé intermittent a ouvert les vides.

La surface des scories était recouverte d'une fine couche blanche, principalement au fond. L'eau du robinet utilisée dans cette expérience avait une alcalinité d'environ 100 mg $CaCO_3$/L, ce qui a facilité la formation de calcite (CAL) dans le filtre. De plus, la présence de P inorganique sous forme d'ions phosphate a intensifié la précipitation d'hydroxyapatite (HAP). Par conséquent, cette précipitation blanche est très probablement de l'HAP et de la CAL, comme rapporté dans des études précédentes [82], [139]. La précipitation blanche a également été observée dans une certaine mesure du milieu vers le haut des colonnes. Comme mentionné dans les tests de colonne, un débit élevé a été utilisé pour injecter des solides en suspension dans les colonnes. En conséquence, les eaux usées se déplaçaient plus rapidement vers les sections supérieures et réagissaient avec les scories à cet endroit [223]. De plus, les précipitations blanches attachées à l'intérieur du capuchon supérieur des colonnes pourraient indiquer que le débit élevé a déplacé les précipitations d'hydroxyapatite (HAP) du bas vers le haut, ou que les précipitations se sont formées directement là.

Une épaisse couche jaunâtre recouvrait les scories de manière différente au point 1 et au fond de chaque colonne. Cela correspondait à la teneur en kaolin des solides en suspension. La section inférieure de chaque colonne est montrée dans la Figure 6.4. Les eaux usées dans la colonne 1 se répandent à l'intérieur du filtre après avoir frappé le capuchon au sommet du tuyau d'injection. Comme le tuyau d'injection est situé à 5 cm du fond, les solides en suspension s'accumulent au bas de la colonne. Comme on peut le voir dans la figure 6.4a, les solides en suspension sont

principalement concentrés autour du point d'alimentation dans la colonne 1. Dans la colonne 2, toute la surface est recouverte d'une couche jaunâtre et les scories sont enchevêtrées avec du kaolin collant. Le schéma de recouvrement des scories est différent dans la colonne 3, qui est alignée avec les trois points d'injection.

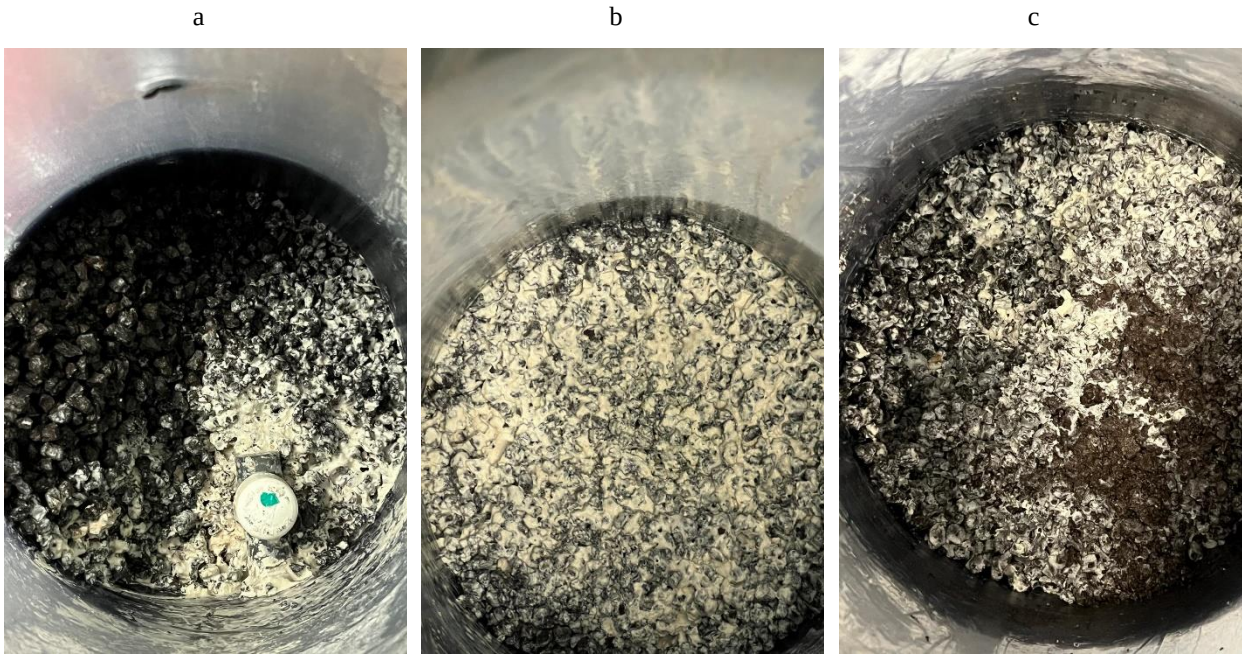


Figure 6.4 La section inférieure des colonnes : a) injection interne b) injection par le point bas c) tuyau de distribution au fond. Le capuchon blanc marqué d'un point vert dans l'injection interne empêche les scories de tomber dans l'ouverture du tuyau sur le dessus.

Pendant environ 15 semaines, un total de 88 grammes de solides en suspension ont été injectés dans chaque colonne (à l'exception de la colonne 3, qui a reçu 82,5 g), tandis que seulement 4 grammes de phosphate se sont accumulés dans le filtre EAF par précipitation. L'élimination du P par précipitation est un processus progressif qui diminue avec l'épuisement des scories en raison de la réduction du pH [139]. D'autre part, l'alcalinité des eaux usées a également formé de la calcite dans les filtres. La comparaison de l'élimination de l'alcalinité, représentant la précipitation de calcite dans les trois colonnes, est présentée dans le Tableau 6-3.

Comme mentionné ci-dessus, en raison de la méthode d'injection des eaux usées, la colonne 1 n'a pas subi de chute de pression bien qu'elle ait reçu la même quantité de solides en suspension que les autres colonnes. Dans les colonnes 2 et 3, la majorité des solides en suspension se sont

accumulés au fond près du point d'injection, ce qui est probablement la principale raison de la chute de pression.

Tableau 6-3 L'élimination totale de l'alcalinité dans la colonne 1, la colonne 2 et la colonne 3 après 15 semaines.

No.	Masss (g)		élimination (%)
	Injectée	Capturée	
Column-1 (injection interne)	86.5	63.8	73.8
Column-2 (injection par le point bas)	88.9	52.2	58.7
Column-3 (tuyau de distribution au fond)	83.5*	47.2	56.5
* La durée du test était d'une semaine de moins que celle des colonnes 1 et 2.			

L'influence des solides en suspension sur l'accumulation de pression était plus significative que celle de la précipitation d'HAP/CAL. L'étude de Claveau-Mallet et Comeau utilisant une colonne de scories de four à arc électrique (EAF) alimentée par de l'eau du robinet et une solution de phosphate a démontré que la taille cristalline de la calcite ou de l'HAP est de 0,1 µm et atteint 30 µm après 586 jours [142]. Cette taille est un tiers de celle du kaolin et des billes de verre, qui sont de 100 microns (et négligeable par rapport aux billes de verre de 1 à 2 mm). Par conséquent, le développement de la pression mesuré est très probablement dû aux solides en suspension, qui sont continuellement injectés à une concentration fixe dans les colonnes. Ces solides restent principalement dans la section inférieure, avec une précipitation d'HAP/CAL se produisant le long de la longueur des colonnes. Dans l'étude de Banihashem et al., des solides en suspension plus gros ont provoqué une chute de pression intensifiée dans la colonne de filtre à sol [232].

Lors de la comparaison des solides en suspension, les poudres de kaolin et les billes de verre se comportent différemment dans l'eau. Les poudres de kaolin sont collantes lorsqu'elles sont mélangées à de l'eau et peuvent s'attacher aux surfaces, tandis que les billes de verre sont des particules solides qui comblent les vides [232], [254]. Par conséquent, en plus de la taille des solides en suspension, qui sont de 100 microns pour le kaolin et de 1 à 2 mm pour les billes de verre, les deux bloquent les chemins d'écoulement. Le kaolin se comporte de manière similaire aux

biofilms visqueux dans les zones humides construites. Le kaolin mélangé non seulement recouvre la surface des scories, rétrécissant potentiellement les vides, mais s'attache également à d'autres particules, telles que les billes de verre, comme montré dans la Figure 6.5.

Figure 6.5 Les billes de verre se sont attachées aux particules de scories.

6.3.2 pH and Alcalinité

Comme il a été précédemment mentionné, le processus d'élimination du phosphore dans la plupart des matériaux de sorption de phosphore, y compris les scories de four à arc électrique, implique la précipitation des phosphates suite à la libération de calcium et d'hydroxyde provenant des scories alcalines [82], [114], [305]. Le pH élevé au-dessus de 10 est caractéristique des PSM alcalins, en raison de la libération de CaO dans l'eau, et permet la précipitation des phosphates dans la solution aqueuse. De nombreuses études passées sur les MSP alcalins ont mesuré le pH uniquement dans les eaux usées d'alimentation et l'effluent de sortie pour évaluer la performance du filtre réactif [81], [83], [108], [217], [221], [227], [314]. Cependant, l'élimination du P dans les filtres réactifs est un processus de front mobile de l'entrée à la sortie. Autrement dit, la précipitation de Ca-P s'initie dans une section inférieure de la colonne et s'étend vers le haut jusqu'aux scories supérieures intactes [176]. Par conséquent, un filtre réactif efficace doit montrer une élimination stable du P tout au long du filtre, ce qui est indiqué par un pH élevé du haut vers le bas du filtre.

Les valeurs de pH à différents niveaux de chaque colonne indiquent l'effet de la conception de l'entrée, en commençant par un pH initial de 11. La colonne 1, avec injection interne, a montré des valeurs autour de 11 à tous les points pendant les 15 semaines. Cela confirme que la colonne 1 a utilisé sa pleine capacité pour l'élimination du P. Cependant, ce phénomène n'est pas observé au point 1 de la colonne 2 et de la colonne 3 avec des injections par le bas, où le pH a diminué à des valeurs inférieures à 11, indiquant un échec en mode d'injection par point. Cela suggère que les

scories EAF n'ont pas pu libérer suffisamment de contenus alcalins dans les eaux usées dans ces colonnes. Cela pourrait être dû à des différences dans la distribution des eaux usées (nécessitant un test de traçage) et au colmatage des vides/surfaces. Cette observation est en accord avec les images provenant du fond des colonnes (Figure 6.4): la colonne 1, avec plus de scories non couvertes par des solides en suspension pour la libération de contenu alcalin, montre un pH plus élevé par rapport aux colonnes 2 et 3, qui sont complètement et partiellement couvertes par des solides en suspension, respectivement.

Les résultats d'alcalinité correspondent également à la figure du pH, montrant une tendance douce de remplacement des bicarbonates dans la colonne 1, et une tendance plus marquée dans les colonnes 3 et 2, respectivement. Les niveaux de pH ont également montré leur effet sur l'élimination de l'alcalinité en tant que formation de calcite, en fonction des résultats d'élimination dans le Tableau 6-3. La condition idéale pour la formation de calcite par les scories est similaire à la précipitation d'hydroxyapatite en présence de Ca et de pH élevé [223]. Par conséquent, l'élimination de l'alcalinité est plus élevée dans la colonne 1 par rapport aux autres colonnes.

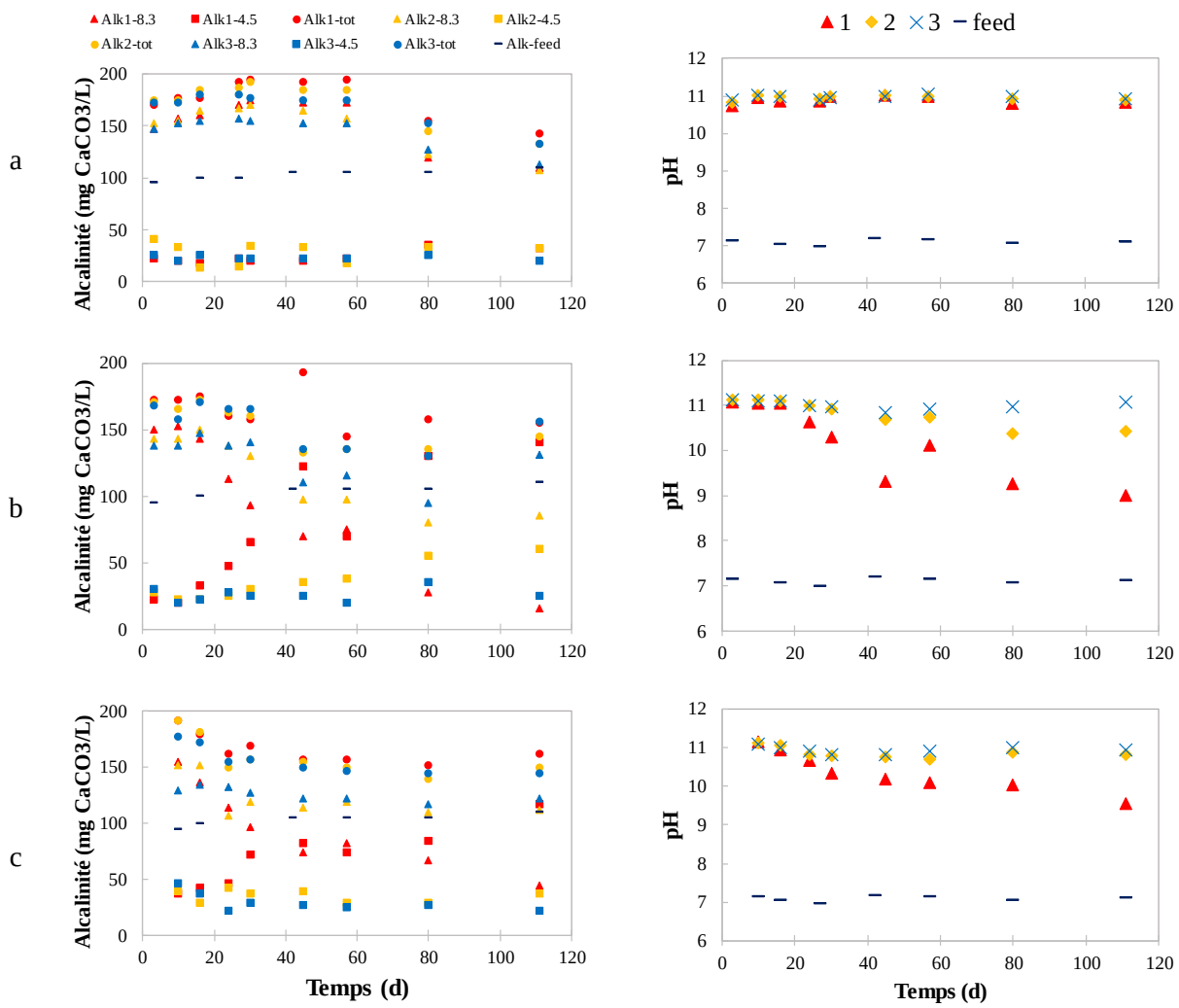


Figure 6.6 La variation du pH et de l'alcalinité dans a) injection interne b) injection par le point bas c) tuyau de distribution au fond au point 1 ▲ (10 cm), point 2 ♦ (25 cm) et point 3 X (40 cm) depuis le bas.

6.4 Conclusions

L'étude des conceptions d'entrée dans les filtres réactifs a souligné leur rôle crucial. Une analyse comparative de trois conceptions — injection interne, injection par le point bas et tuyau de distribution au fond — a révélé une performance hydraulique supérieure avec l'injection interne, qui n'a montré aucune accumulation de pression, suivie du tuyau de distribution au fond et de l'injection par le point bas, avec des augmentations de pression de 3 mm et 10 mm, respectivement. L'impact des solides en suspension sur la chute de pression est plus significatif que celui de la précipitation de Ca-phosphate et de calcite. De plus, le type de solide en suspension affecte la

performance des filtres réactifs ; les solides collants, par exemple, peuvent piéger d'autres particules, non seulement en colmatant ou en rétrécissant les vides, mais aussi en recouvrant les surfaces des matériaux adsorbants. Ces surfaces doivent rester dégagées pour permettre la libération des contenus alcalins dans l'eau. Les résultats soulignent que l'injection interne pourrait faire avancer de manière significative les filtres réactifs pratiques en améliorant la distribution des eaux usées, en maintenant un pH plus élevé pendant de plus longues périodes, en réduisant le colmatage et en prolongeant la longévité opérationnelle sans nécessiter de remplacements fréquents. De plus, cette méthode permet d'avoir une plus grande quantité de matériaux réactifs dans le même volume de réacteur par rapport à d'autres conceptions telles que la pulvérisation ou les couches de distribution grossières.

6.5 Remerciements

Ce projet a été financé par la Chaire de recherche du Canada sur le traitement de l'eau décentralisé et à petite échelle (numéro de dossier 950-232871). Amin Tabatabaeefar souhaite remercier Fayolle Canada pour l'attribution de la bourse et remercie la Fondation et les Anciens de Polytechnique Montréal ainsi que Polytechnique Montréal pour leur soutien. Nous remercions également Bionest, l'entreprise partenaire, qui a fourni les scories EAF pour le projet.

CHAPITRE 7 DISCUSION GÉNÉRALE

7.1 Sélection des scories par rapport aux autres matériaux réactifs

Comme décrit dans le chapitre 2 - Revue de la littérature, les biofiltres ont émergé comme une solution commerciale récente utilisée par diverses entreprises pour répondre à ce problème. Selon la législation en vigueur au Québec, les concentrations maximales autorisées pour PT, la DBO_5 et les SS sont respectivement de 1 mg/L, 15 mg/L et 15 mg/L (Tableau 2-1). Bien que les technologies mentionnées ci-dessus aient démontré de bonnes performances dans l'élimination de la DBO_5 et des solides en suspension, l'élimination du P reste un problème, avec des concentrations dépassant souvent les spécifications des effluents (Tableau 2-3). Ainsi, il est nécessaire d'ajouter une unité de traitement du P après les biofiltres. Bien que la réglementation au Québec n'ait pas encore fixé de limite spécifique pour le rejet d'azote dans les habitations isolées, il est important de considérer que l'excès d'azote peut causer ses propres problèmes. Il est probable que de nouvelles réglementations concernant l'azote seront établies à l'avenir.

Les filtres réactifs sont composés de matériaux réactifs qui éliminent les contaminants ciblés par adsorption, réactions chimiques et précipitation. Deux facteurs sont importants dans la sélection des matériau absorbant le phosphore : i) la performance d'élimination et ii) la performance hydraulique. Un résumé des matériau absorbant le phosphore étudiés est présenté dans le Tableau 7-1. Comme on peut le voir dans le Tableau 7-1, chaque matériau absorbant le phosphore a ses avantages et ses inconvénients. En tenant compte des deux facteurs importants, la performance hydraulique et la performance d'élimination, ainsi que du coût et de la disponibilité, les sous-produits industriels sont privilégiés comme matériau absorbant le phosphore pour les filtres réactifs. Même en ignorant le facteur coût, il y a peu d'informations sur l'élimination de l'azote (N) lorsqu'on considère les matériau absorbant le phosphore fabriqués. Selon les objectifs du projet, la scorie de four à arc électrique (EAF) sélectionnée pour le filtre réactif, indépendamment des paramètres de coût et de disponibilité, a démontré une haute performance d'élimination du phosphore lorsqu'elle est alimentée avec des eaux usées fortement alcalines. Cette performance d'élimination est alignée avec une élimination totale approximative de 24 % de l'azote. De plus, l'expérience à long terme a confirmé que la performance hydraulique du filtre à scories EAF fonctionnait sans colmatage. Cette performance, hydraulique et d'élimination, n'a pas été observée avec d'autres matériau absorbant le phosphore. Bien que le filtre à scories EAF ait démontré un potentiel pour l'élimination simultanée

de l'azote et du phosphore, il nécessite des conditions opérationnelles spécifiques telles que le contrôle du pH, des niveaux d'alcalinité appropriés et un rapport N/P équilibré dans l'environnement aqueux.

Tableau 7-1 Comparaison des matériau absorbant le phosphore étudiés dans le Chapitre 2.

PSM	Coût	Taille des particules	Conductivité hydraulique	Mécanisme d'élimination	Élimination de P	Élimination de N	Condition d'opération
Bauxite	Faible	Fine	Faible	Adsorption	Élevé	-	• pH control
Dolomite	Faible	Fine	Faible	Adsorption	Élevé	-	• pH control • Faible alc..
Zeolite	Faible	Fine	Faible	Échange d'ions/ précipitation	Élevé	De faible à moyen	• pH control • rapport N/P.
Calcaire	Faible	moyen	De faible à élevé	Adsorption	Élevé	-	• pH control
Cendres de charbon volantes	Faible	moyen	De faible à élevé	adsorption/ précipitation	De moyen à élevé	De faible à moyen	• Condition de contrôle pour la formation de struvite
Résidus de bauxite	Faible	moyen	De faible à élevé	adsorption/ précipitation	Élevé	De moyen à élevé	• Libération de Fe
Scories	Faible	De moyen à élevé	De moyen à élevé	adsorption/ précipitation	Élevé	De faible à moyen	-
Filtra P	Élevé	moyen	De faible à élevé	Précipitation	Élevé	-	-
Filtralite P™	Élevé	moyen	De faible à élevé	Précipitation	De moyen à élevé	-	-
Polonite	Élevé	moyen	De faible à élevé	Précipitation	Élevé	Faible	-

* Les particules fines sont définies comme ayant une taille inférieure à 1 mm.

** Les particules moyennes sont définies comme ayant une taille comprise entre 1 mm et 10 mm.

*** Les particules grossières sont définies comme ayant une taille supérieure à 10 mm.

7.2 La performance des scories d'ACF pour l'élimination des nutriments

7.2.1 Comment surmonter l'épuisement de l'alcalinité ?

Le filtre à scories d'EAF a montré qu'il n'avait pas besoin de conditions de contrôle telles que le pH dans le milieu, le rapport N/P ou la formation de struvite, etc. Selon les tests utilisant des scories d'EAF avec une taille comprise entre 3 et 8 mm, le filtre à scories d'EAF a démontré une promesse de retrait du phosphore des effluents secondaires alcalins. Basé sur les résultats des chapitres 3 et 4, les scories d'EAF ont efficacement éliminé le phosphate de la solution aqueuse même en présence de 300 mg $CaCO_3$/L d'alcalinité. La plupart du phosphate et du carbone ont été éliminés dans les sections inférieures des filtres à scories, près du point d'alimentation. Le mécanisme principal d'élimination du phosphore était la précipitation du Ca-P sous forme d'hydroxyapatite, ainsi que la re-précipitation de l'HAP sur les calcites formées. Les filtres à scories d'EAF ont maintenu une efficacité d'élimination du phosphore après 170 jours, avec une concentration de phosphate de 0,48 mg P/L au point 3 dans la colonne. Le phosphate total accumulé dans le filtre a montré plus de 99 % du phosphate injecté à la fin de l'expérience à long terme. Les résultats ont souligné l'importance de l'élimination de l'alcalinité des eaux usées, car une alcalinité élevée diminue le potentiel d'élimination du phosphate en raison de l'épuisement des scories. Une solution pratique pour l'élimination de l'alcalinité est l'utilisation de scories d'EAF en série. Des études antérieures ont montré que l'utilisation de lits sacrificiels avec des étapes initiales contenant des médias grossiers d'EAF peut résoudre le problème [114]. Cette configuration initiale peut être mélangée avec de la tourbe ou d'autres matériaux économiques qui réagissent bien avec les carbonates pour améliorer la portée des lits sacrificiels [274]. Cette approche permet d'atteindre deux résultats clés : 1) l'élimination des solides en suspension, et 2) la réduction de l'alcalinité, ainsi qu'une élimination partielle du phosphore.

7.2.2 Quel est le système optimisé pour l'élimination de l'azote?

Comparé à d'autres matériaux sorbants de phosphore mentionnés dans la revue de littérature, les scories d'EAF ont également démontré un potentiel pour l'élimination de l'azote des eaux usées. L'élimination de l'azote par le filtre à scories d'EAF a été calculée à environ 24 % au total, plaçant le média dans la plage basse à moyenne pour l'élimination de l'azote (Chapitres 3 et 4). La concentration en oxygène dissous principalement entre 1 et 2 mg/L et le potentiel d'oxydoréduction variant de valeurs négatives à des valeurs positives stables de 100 à 200 mV ont indiqué des

conditions anoxiques à faiblement oxygénées, fournissant un environnement propice aux processus de nitrification et de dénitrification (Chapitre 4). Une hypothèse est que la présence de carbone biodégradable soluble dans l'influent a créé des conditions favorables à la croissance d'un biofilm contenant des bactéries hétérotrophes. Ce biofilm aurait pu protéger les bactéries autotrophes des conditions de pH élevé dans la colonne (pH entre 9 et 9,5). La formation de ce biofilm soutient l'élimination de l'azote par les processus de nitrification-dénitrification. Une autre hypothèse est le possible développement de bactéries nitrifiantes hétérotrophes dans les filtres à scories, qui peuvent aider à l'élimination de l'azote en convertissant l'ammoniac en nitrate, puis en azote gazeux dans des conditions appropriées. Ainsi, dans les filtres à scories alcalines, la disponibilité des sources de carbone labiles influence fortement l'établissement d'un biofilm et, par conséquent, l'établissement de microorganismes nitrifiants. Une étude microbiologique est nécessaire pour mieux comprendre ce phénomène.

La conversion de l'ammonium en NO_x était d'environ 20 %, se produisant principalement au fond de la colonne (Chapitres 3 et 4). Cette nitrification partielle peut être attribuée à deux facteurs principaux : premièrement, les conditions faiblement oxygénées, qui réduisent la probabilité de nitrification complète, et deuxièmement, la faible concentration d'ammonium, qui, combinée aux conditions faiblement oxygénées, rend la nitrification encore plus difficile. Cela indique que l'injection d'air dans le milieu filtrant est insuffisante. Il convient de noter que bien que les systèmes aient fonctionné selon une méthode d'alimentation par gravité, une alimentation continue lente a toujours été maintenue sur le filtre à scories d'EAF pendant les tests effectués. Cependant, dans des situations réelles, une alimentation intermittente à débit élevé est plus probable dans le processus de traitement. Ce débit élevé intermittent peut aider à l'injection d'air à l'intérieur du filtre, améliorant ainsi la nitrification et réduisant les niveaux d'ammonium. D'autre part, le maintien d'une concentration élevée en oxygène dissous non seulement diminue la concentration d'ammonium mais augmente également la concentration en NO_x, dont la libération peut être préjudiciable aux organismes vivants. Il convient également de noter que la présence d'air peut augmenter la probabilité de formation de calcite, entraînant une épuisement plus rapide du filtre.

Le contrôle des conditions du filtre, qu'il s'agisse d'oxique ou d'anoxique, est crucial pour gérer les réactions internes et assurer les résultats de traitement souhaités, en fonction des spécifications de l'effluent et des exigences du client. Une approche efficace implique d'atteindre à la fois la nitrification complète et la dénitrification, similaire aux systèmes de traitement centralisés. En

concevant des réacteurs en série, il est possible d'atteindre à la fois des conditions oxiques et anoxiques.

Dans la phase initiale, l'injection intermittente à débit élevé dans les premiers filtres favorise la nitrification. Ce processus convertit l'ammoniac en nitrate en présence d'oxygène, ce qui est crucial pour l'élimination de l'azote. Assurer des conditions oxiques à cette étape améliore l'efficacité de la nitrification, améliorant ainsi le processus global d'élimination de l'azote.

Ensuite, les filtres suivants avec une alimentation continuent lente facilitent des conditions anoxiques, essentielles pour la dénitrification. Pendant la dénitrification, le nitrate est converti en azote gazeux en l'absence d'oxygène, complétant ainsi le processus d'élimination de l'azote. Cette approche par étapes optimise non seulement l'élimination de l'azote mais améliore également l'efficacité globale du traitement.

De plus, l'intégration de conditions oxiques et anoxiques dans des réacteurs en série permet un meilleur contrôle du processus de traitement. Cela garantit que l'effluent satisfait aux normes requises pour divers paramètres, y compris les niveaux d'azote et de phosphore. Cette méthode offre également une flexibilité pour ajuster les conditions de traitement en fonction des exigences spécifiques du client et des variations des caractéristiques des eaux usées.

7.3 La performance hydraulique du filtre à scories d’EAF

7.3.1 Pourquoi l'obstruction n'a-t-elle pas été observée dans l'étude actuelle ?

L'obstruction des filtres réactifs, comme discuté dans le chapitre 6, peut être attribuée à plusieurs facteurs. La gamme de taille choisie pour les scories d'EAF, entre 3 et 8 mm, a donné une porosité de 50 à 52 %, ce qui est idéal pour les filtres réactifs. Cette porosité a assuré une bonne conductivité hydraulique, comme en témoigne l'absence d'accumulation de pression dans les tests en colonne. Cependant, cela ne garantit pas que le filtre réactif continuera de fonctionner sans problème.

Dans une étude menée à Polytechnique pour mesurer l'obstruction en utilisant quatre barils de scories d'EAF, des eaux usées synthétiques contenant 15 mg de SS par litre ont été utilisées [315]. Les scories variaient en taille de 3 à 7 mm, 5 à 10 mm et 10 à 20 mm, et les barils étaient superposés avec des combinaisons de ces tailles, plaçant toujours les particules les plus grossières au fond (5-10 mm ou 10-20 mm). Après 18 jours de fonctionnement, une hauteur de pression comprise entre 5 et 100 cm a été observée, surtout dans les barils contenant des scories de 5 à 10 mm au fond.

Alors, qu'est-ce qui différencie l'étude actuelle de la précédente, étant donné qu'elles ont utilisé la même gamme de scories d'EAF ? Dans l'expérience à long terme (chapitre 4), les filtres ont été soumis à une moyenne de 21,5 g de matières en suspension et 1,9 g de précipitation d'hydroxyapatite sur 24 semaines. Par contre, l'étude précédente a injecté une moyenne de 25 g de matières en suspension sur 18 jours. La différence clé réside dans le type de matières en suspension utilisé l'étude menée par [315] a utilisé du papier toilette mélangé, qui gonfle et s'emmêle avec les scories lorsqu'il est mélangé à l'eau. De plus, la méthode d'injection par le bas a fait que la plupart du papier toilette est resté près du point d'alimentation, ce qui rend plus difficile le bon fonctionnement des filtres avec des scories fines au fond. Ainsi, le type de matières en suspension et la méthode de leur introduction ont un impact significatif sur la performance hydraulique des filtres réactifs. Il convient également d'ajouter que, parce que les auteurs voulaient atteindre l'obstruction plus rapidement, la charge était élevée.

7.3.2 Quelle est la meilleure méthode d'injection ?

Dans la phase finale de ce projet, l'importance de la conception de l'entrée dans les filtres réactifs a été abordée. Trois colonnes identiques contenant des scories d'EAF ont été utilisées avec différentes méthodes d'injection : l'alimentation par point bas, le tuyau de distribution bas et l'injection interne. La mesure de la hauteur de pression dans ces colonnes a confirmé l'impact de la conception de l'entrée sur la performance hydraulique des filtres réactifs. La méthode d'alimentation par point bas introduit les eaux usées à un seul point au bas du filtre, puis les répartit dans le filtre. Cette alimentation ascendante peut entraîner une distribution inégale et un colmatage localisé près du point d'injection. La méthode du tuyau de distribution bas vise à éliminer le problème de l'injection à partir de plusieurs points. Cette méthode a amélioré la situation mais pas complètement par rapport à l'injection interne. Par contre, la méthode d'injection interne, qui injecte directement les eaux usées au centre du milieu filtrant, s'est avérée la plus efficace. Cette méthode a démontré que l'ensemble du milieu filtrant est utilisé selon les données de pH.

Différentes méthodes d'injection ont été appliquées auparavant, y compris la pulvérisation, l'injection en vrac et l'utilisation de médias grossiers dans la zone d'entrée. Jusqu'à présent, il n'y a pas de données enregistrées pour évaluer leur performance, hydraulique et d'élimination. Même en acceptant leur performance telle qu'elle est, une partie du milieu filtrant, par exemple jusqu'à 10 % du volume du réacteur, était sous-utilisée ou seulement partiellement utilisable. Ce volume

inutilisable est un inconvénient car il réduit le volume efficace disponible pour le traitement. Cela souligne que la conception du système d'entrée joue un rôle important dans la performance et l'efficacité globale des filtres réactifs. De plus, la nature compacte de la méthode d'injection interne rend les filtres réactifs plus faisables pour une utilisation dans les zones avec un espace limité disponible.

CHAPITRE 8 CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

8.1 Conclusions

L'étude souligne le rôle crucial du contrôle de l'alcalinité dans les filtres réactifs (FRs) pour assurer une élimination efficace du phosphore dans le traitement des eaux usées domestique. Les FRs sont passés un épuisement à cause de la précipitation de $CaCO_3$ dans tout le filtre, comme en témoignent les valeurs de l'indice de saturation proches de zéro et l'accumulation de précipité sur les surfaces des scories. Les principales réactions incluaient la formation de $CaCO_3$ (3,1-3,3 g), la libération d'OH pour augmenter le pH (1,7-2,4 g) et la formation de $Ca_5(PO_4)_3OH$ (0,82-0,94 g), mettant en évidence le rôle significatif du $CaCO_3$ dans l'épuisement du média. Malgré la nature à court terme de l'expérience, une alcalinité élevée a conduit à un épuisement significatif du filtre. Cependant, aucune accumulation de pression ni obstruction majeure ne s'est produite en raison de la répartition uniforme des minéraux. La précipitation chimique n'a pas causé d'obstruction, bien que l'obstruction physique et biologique reste une situation progressive.

Dans l'expérience à long terme, les résultats ont démontré une élimination efficace des phosphates, avec des concentrations en sortie ne dépassant jamais 1 mg $P\text{-}PO_4$/L dans des conditions difficiles pendant six mois, malgré l'épuisement survenant près de l'entrée et du milieu de la colonne. Le pH près du milieu est descendu en dessous de 10 alors que les concentrations de P augmentaient, tandis que les valeurs de pH en sortie sont restées au-dessus de 10, essentiel pour l'élimination du P. Les comparaisons ont confirmé la haute affinité des scories pour le P par rapport aux carbonates. L'épuisement des scories a été observé dans les deux colonnes, plus intensément dans la colonne 2-R sans phosphate. L'activité biologique dans le RF suggère un potentiel pour l'élimination de l'azote. La matière organique biodégradable soutient l'activité des micro-organismes et la formation de biofilm, avec 30% d'élimination de NH_4^+ observée dans la zone d'entrée des eaux usées avec du carbone organique biodégradable, même à pH élevé. Une nitrification incomplète s'est produite à pH 8,75-9,5.

La conception de l'entrée du réacteur est importante, avec une injection intérieure ne montrant aucune accumulation de pression et une performance hydraulique supérieure. Les solides en suspension impactent davantage la chute de pression que la précipitation de Ca-phosphate. L'injection intérieure améliore la distribution des eaux usées, maintient un pH plus élevé plus

longtemps, réduit l'obstruction et prolonge la durée de vie opérationnelle sans remplacements fréquents, permettant plus de matériaux réactifs dans le même volume de réacteur.

En conclusion, les RF utilisant des scories de EAF peuvent éliminer efficacement le phosphore des eaux usées à haute alcalinité. La mise en œuvre de lits sacrificiels et l'optimisation de la conception de l'entrée peuvent gérer l'obstruction et améliorer l'efficacité et la longévité du filtre.

8.2 Recommendations

Basé sur les résultats et les conclusions obtenus dans le cadre de ce projet, d'autres idées sont proposées pour les recherches futures :

- **Utilisation de filtres à scories alimentés par des effluents secondaires réels :** Mettre en œuvre des filtres en utilisant des effluents secondaires réels provenant d'utilisateurs d'eau souterraine pour évaluer les performances et l'efficacité pratiques.
- **Études microbiologiques sur les filtres des scories :** Mener des études microbiologiques pour découvrir le mécanisme de nitrification au sein des filtres des scories, améliorant ainsi la compréhension des processus biologiques. L'utilisation de différentes sources de carbone est importante pour mieux comprendre les performances de nitrification dans le filtre réactif.
- **Augmentation du potentiel d'élimination de l'azote :** Explorer des méthodes pour augmenter le potentiel d'élimination de l'azote, améliorant ainsi les performances globales du filtre.
- **Comparaison de la direction du flux et des conceptions d'entrée :** Étudier les effets du schéma de flux (injection continue ou intermittente), de la direction du flux (verticale ou horizontale) et de diverses designs d'entrée telles que la hauteur d'injection interne,. la pulvérisation, la plaque de maille, l'injection en vrac ou même des injections de formes différentes telles que l'injection circulaire ou triangulaire, sur les performances du filtre réactif pour optimiser le fonctionnement car il n'existe pas de données enregistrées pour comparer toutes les situations.
- **Modélisation du système :** Développer des modèles basés sur la conductivité hydraulique et l'accumulation de la pression pour prédire les niveaux de contaminants à la sortie et la longévité du filtre, aidant ainsi à la conception et à la gestion du système.

- **Échelle pilote :** Augmenter l'échelle du filtre des scories de EAF avec la nouvelle configuration et conception d'entrée pour une application réelle dans une maison isolée utilisant de l'eau souterraine. Mesurer les performances et la longévité du filtre.

RÉFÉRENCES

[1] "Wastewater Treatment Water Use," *USGS science for a changing world*. [Online]. Available: https://www.usgs.gov/special-topic/water-science-school/science/wastewater-treatment-water-use?qt-science_center_objects=0#qt-science_center_objects.

[2] "Why Waste Water Treatment is So Important," *Carlow Concrete Tanks*, 2015. [Online]. Available: https://www.carlowtanks.ie/why-waste-water-treatment-is-so-important/.

[3] T. W. Seow *et al.*, "Review on Wastewater Treatment Technologies," *Int. J. Appl. Environ. Sci.*, vol. 1, pp. 111–126, 2016.

[4] C. S. Lee, J. Robinson, and M. F. Chong, "A Review on Application of Flocculants in Wastewater Treatment," *Process Saf. Environ. Prot.*, vol. 92, no. 6, pp. 489–508, 2014.

[5] G. Tchobanoglous, F. L. Burton, and H. D. Stensel, *Wastewater Engineering: Treatment and Reuse, Metcalf&Eddy Inc.*, Fourth. McGrawHill, 2003.

[6] M. B. Pescod, *Wastewater Treatment and Use in Agriculture - FAO Irrigation and Drainage*, vol. 47. FOOD AND AGRICULTURE ORGANIZATION OF THE UNITED NATIONS, 1992.

[7] N. S. Topare, S. J. Attar, and M. M. Manfe, "Sewage/Wastewater Treatment Technologies: A Review," *Sci. Rev. Chem. Commun.*, vol. 1, no. 1, pp. 18–24, 2011.

[8] J. T. Bunce, E. Ndam, I. D. Ofiteru, A. Moore, and D. W. Graham, "A Review of Phosphorus Removal Technologies and Their Applicability to Small-Scale Domestic Wastewater Treatment Systems," *Front. Environ. Sci.*, vol. 6, pp. 1–15, 2018.

[9] "Municipal Wastewater Treatment," *Government of Canada*, 2017. [Online]. Available: https://www.canada.ca/en/environment-climate-change/services/environmental-indicators/municipal-wastewater-treatment.html.

[10] W. Carson, "Water/Septic Issues ... in Rural/Micro-Communities," 2015. [Online]. Available: http://www.waynecarson.ca/issues/rural-micro-communities-waterseptic-issue/.

[11] P. Laaksonen, A. Sinkkonen, G. Zaitsev, E. Mäkinen, T. Grönroos, and M. Romantschuk, "Treatment of Municipal Wastewater in Full-Scale On-site Sand Filter Reduces BOD Efficiently but Does Not Reach Requirements for Nitrogen and Phosphorus Removal,"

Environ. Sci. Pollut. Res., vol. 24, no. 12, pp. 11446–11458, 2017.

[12] B. E. Abbassi, R. Abuharb, B. Ammary, N. Almanaseer, and C. Kinsley, "Modified Septic Tank: Innovative Onsite Wastewater Treatment System," *Water (Switzerland)*, vol. 10, no. 578, pp. 1–11, 2018.

[13] S. Richards, E. Paterson, P. J. A. Withers, and M. Stutter, "Septic Tank Discharges as Multi-Pollutant Hotspots in Catchments," *Sci. Total Environ.*, vol. 542, pp. 854–863, 2016.

[14] M. Liira, M. Kõiv, Ü. Mander, R. Mõtlep, C. Vohla, and K. Kirsimäe, "Active filtration of phosphorus on Ca-rich hydrated oil shale ash: Does longer retention time improve the process?," *Environ. Sci. Technol.*, vol. 43, no. 10, pp. 3809–3814, 2009.

[15] F. A. Nasr and B. Mikhaeil, "Treatment of Domestic Wastewater Using Modified Septic Tank," *Desalin. Water Treat.*, vol. 56, no. 8, pp. 2073–2081, 2015.

[16] P. J. A. Withers, P. Jordan, L. May, H. P. Jarvie, and N. E. Deal, "Do Septic Tank Systems Pose a Hidden Threat to Water Quality?," *Front. Ecol. Environ.*, vol. 12, no. 2, pp. 123–130, 2014.

[17] M. G. Lusk, G. S. Toor, Y. Y. Yang, S. Mechtensimer, M. De, and T. A. Obreza, "A Review of The Fate and Transport of Nitrogen, Phosphorus, Pathogens, and Trace Organic Chemicals in Septic Systems," *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.*, vol. 47, no. 7, pp. 455–541, 2017.

[18] S. Dey, N. Haripavan, S. R. Basha, and G. V. Babu, "Removal of ammonia and nitrates from contaminated water by using solid waste bio-adsorbents," *Curr. Res. Chem. Biol.*, vol. 1, p. 100005, 2021.

[19] M. Lürling and E. J. Faassen, "Controlling Toxic Cyanobacteria: Effects of Dredging and Phosphorus-Binding Clay on Cyanobacteria and Microcystins," *Water Res.*, vol. 46, no. 5, pp. 1447–1459, 2012.

[20] G. Tjandraatmadja, C. Pollard, C. Sheedy, and Y. Gozukara, "Sources of Contaminants in Domestic Wastewater : Nutrients and Additional Elements from Household Products," 2010.

[21] W. D. Robertson, D. R. Van Stempvoort, and S. L. Schiff, "Review of Phosphorus

Attenuation in Groundwater Plumes from 24 Septic Systems," *Sci. Total Environ.*, vol. 692, pp. 640–652, 2019.

[22] "Regulation Respecting Wastwater Disposal Systems for Isolated Dwellings, Q-2, r. 22," *Quebec Government , Department of Environment*, 2023. [Online]. Available: http://legisquebec.gouv.qc.ca/en/showdoc/cr/q-2, r. 22.

[23] P. Bove, D. Claveau-Mallet, É. Boutet, F. Lida, and Y. Comeau, "Development and modelling of a steel slag filter effluent neutralization process with CO2-enriched air from an upstream bioprocess," *Water Res.*, vol. 129, pp. 11–19, 2018.

[24] S. M. Ashekuzzaman and J.-Q. Jiang, "Improving the removal of phosphate in secondary effluent of domestic wastewater treatment plant," in *Conference on Environmental Science and Technology (CEST2017)*, 2017.

[25] X. Hu *et al.*, "More is better? Constructed wetlands filled with different amount of Fe oxides showed opposite phosphorus removal performance," *J. Clean. Prod.*, vol. 329, no. June, p. 129749, 2021.

[26] L. Bai, C. Wang, C. Huang, L. He, and Y. Pei, "Reuse of drinking water treatment residuals as a substrate in constructed wetlands for sewage tertiary treatment," *Ecol. Eng.*, vol. 70, pp. 295–303, 2014.

[27] K. Abe, M. Komada, A. Ookuma, S. Itahashi, and K. Banzai, "Purification performance of a shallow free-water-surface constructed wetland receiving secondary effluent for about 5 years," *Ecol. Eng.*, vol. 69, pp. 126–133, 2014.

[28] F. Gao, Y. Y. Peng, C. Li, W. Cui, Z. H. Yang, and G. M. Zeng, "Coupled nutrient removal from secondary effluent and algal biomass production in membrane photobioreactor (MPBR): Effect of HRT and long-term operation," *Chem. Eng. J.*, vol. 335, no. August 2017, pp. 169–175, 2018.

[29] "Nitrates and nitrites," *Gouvernement du Québec*, 2016. [Online]. Available: https://www.quebec.ca/en/agriculture-environment-and-natural-resources/drinking-water/contaminants-in-drinking-water-wells/contaminants-water-well/nitrates-and-nitrites.

[30] N. M. Piatak and V. Ettler, "Introduction: Metallurgical Slags – Environmental Liability or Valuable Resource?," in *Metallurgical Slags: Environmental Geochemistry and Resource*

Potential, no. 2, The Royal Society of Chemistry, 2021, pp. 1–13.

[31] J. Manchisi *et al.*, "Ironmaking and Steelmaking Slags As Sustainable Adsorbents For Industrial Effluents And Wastewater Treatment: A Critical Review of Properties, Performance, Challenges and Opportunities," *Sustain.*, vol. 12, no. 5, pp. 1–47, 2020.

[32] D. Claveau-Mallet, "Phosphorus Treatment by Steel Slag Filters Modelling of Removal Mechanisms and Application for Phosphorous Removal from Septic Tank Effluents," Polytechnique Montreal, 2017.

[33] M. Kube, B. Jefferson, L. Fan, and F. Roddick, "The impact of wastewater characteristics, algal species selection and immobilisation on simultaneous nitrogen and phosphorus removal," *Algal Res.*, vol. 31, no. December 2017, pp. 478–488, 2018.

[34] P. I. Omwene, M. Kobya, and O. T. Can, "Phosphorus removal from domestic wastewater in electrocoagulation reactor using aluminium and iron plate hybrid anodes," *Ecol. Eng.*, vol. 123, no. August, pp. 65–73, 2018.

[35] EPA, "Harmful Algal Blooms (HABs) in Water Bodies," 2024. [Online]. Available: https://www.epa.gov/habs#:~:text=Adapting to Climate Change,-Warming water%2C droughts&text=Certain environmental conditions in water,Harmful Algal Blooms (HABs).

[36] Metcalf & Eddy, *Wastewater Engineering: Treatment and Resource Recovery*, 5th ed. New York: McGrawHill Education, 2014.

[37] "Wastewater Treatment Works... The Basics," no. May. EPA, 1998.

[38] "House Image." [Online]. Available: https://pixabay.com/vectors/home-house-building-architecture-158089/.

[39] "Septic Tank Image." [Online]. Available: https://www.istockphoto.com/photo/a-black-septic-tank-halfway-buried-in-dirt-outside-gm183060723- 14234876.

[40] "Drainfield Image." [Online]. Available: https://www.google.com/search?q=septic+system+diagram&rlz=1C1GCEA_enQA838IR838&hl=en&sxsrf=ALeKk01cKFlIYerEdemK9yjlvHjcxquL3A:1612965878953&source=lnms&tbm=isch&sa=X&ved=2ahUKEwidwP-Rvt_uAhWFB80KHfIJBu4Q_AUoAXoECA8QAw&biw=1600&bih=700#imgrc=u_pLsr

NT8u2w9M.

[41] J. Fisher and M. C. Acreman, “Wetland nutrient removal: A review of the evidence,” *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, vol. 8, no. 4, pp. 673–685, 2004.

[42] K. N. Yogalakshmi, A. Sharma, and S. Mittal, *Biofiltration in wastewater treatment plants: An overview*, First Edit. Elsevier Ltd., 2021.

[43] R. Pachaiappan, L. Cornejo-Ponce, R. Rajendran, K. Manavalan, V. Femilaa Rajan, and F. Awad, “A review on biofiltration techniques: recent advancements in the removal of volatile organic compounds and heavy metals in the treatment of polluted water,” *Bioengineered*, vol. 13, no. 4, pp. 8432–8477, 2022.

[44] Bionest Technologies inc., “Nouvelles technologies de traitement des eaux usées d’origine domestique-BIONEST,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Shawinigan, 2012.

[45] Bionest Technologies inc., “Chaine de traitement KAMAK avec réacteur biologique à culture fixée,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Shawinigan, 2017.

[46] Premier Tech Aqua, “Nouvelles technologies de traitement des eaux usées d’origine domestique-RotoFix,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Rivière-du-Loup, 2010.

[47] Premier Tech Aqua, “Équipement De Procédé-Segflo,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Rivière-du-Loup, 2011.

[48] Premier Tech Aqua, “Nouvelles technologies de traitement des eaux usées d’origine domestique-Ecoprocess Filtre Coco,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Rivière-du-Loup, 2009.

[49] DBO Expert inc., “Technologie système Enviro-Septic,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Sherbrooke, 2018.

[50] DBO Expert inc., “Nouvelles technologies de traitement des eaux usées d’origine domestique-Biosor 300-HR,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Sherbrooke, 2014.

[51] Enviro-Step Technologies inc., “Technologie Eljen GSF-A42,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Québec, 2019.

[52] Mabarex inc., “Équipement de procédé-Réacteur biologique à support fluidisé SMBR avec garnissage Peenox,” Quebec Ministry of the Environment and the Fight Against Climate Change, Montréal, 2012.

[53] S. Moran, “Dirty water unit operation design,” in *An Applied Guide to Water and Effluent Treatment Plant Design*, Elsevier, 2018, pp. 171–202.

[54] P. R. Rout *et al.*, “Nutrient removal from domestic wastewater: A comprehensive review on conventional and advanced technologies,” *J. Environ. Manage.*, vol. 296, no. February, p. 113246, 2021.

[55] A. Bus, A. Karczmarczyk, and A. Baryła, “Permeable reactive barriers for preventing water bodies from a phosphorus-polluted agricultural runoff-column experiment,” *Water (Switzerland)*, vol. 11, no. 3, pp. 1–13, 2019.

[56] J. A. da C. Castellar *et al.*, “Crushed autoclaved aerated concrete (CAAC), A potential reactive filter medium for enhancing phosphorus removal in nature-based solutions-preliminary batch studies,” *Water (Switzerland)*, vol. 11, no. 7, 2019.

[57] C. J. Penn, R. B. Bryant, P. J. A. Kleinman, and A. L. Allen, “Removing dissolved phosphorus from drainage ditch water with phosphorus sorbing materials,” *J. Soil Water Conserv.*, vol. 62, no. 4, pp. 269–276, 2007.

[58] E. Kholoma, G. Renman, and A. Renman, “Phosphorus removal from wastewater by field-scale fortified filter beds during a one-year study,” *Environ. Technol. (United Kingdom)*, vol. 37, no. 23, pp. 2953–2963, 2016.

[59] S. Gubernat, A. Masłoń, J. Czarnota, and P. Koszelnik, “Reactive materials in the removal of phosphorus compounds from wastewater-A review,” *Materials (Basel).*, vol. 13, no. 15, pp. 1–26, 2020.

[60] A. Drizo, C. A. Frost, J. Grace, and K. A. Smith, “Physico-chemical screening of phosphate-removing substrates for use in constructed wetland systems,” *Water Res.*, vol. 33, no. 17, pp. 3595–3602, 1999.

[61] H. S. Altundogan and F. Tumen, "Removal of phosphates from aqueous solutions by using bauxite. I: Effect of pH on the adsorption of various phosphates," *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, vol. 77, pp. 77–85, 2001.

[62] M. W. Kamiyango, S. M. I. Sajidu, and W. R. L. Masamba, "Removal of phosphate ions from aqueous solutions using bauxite obtained from Mulanje, Malawi," *African J. Biotechnol.*, vol. 10, no. 56, pp. 11972–11982, 2011.

[63] C. Mangwandi, A. B. Albadarin, Y. Glocheux, and G. M. Walker, "Removal of ortho-phosphate from aqueous solution by adsorption onto dolomite," *J. Environ. Chem. Eng.*, vol. 2, no. 2, pp. 1123–1130, 2014.

[64] F. M. Hamoodi, M. I. Mohammed, R. S. Alwash, and P. Kot, "Phosphate removal from water using low-cost dolomite filters," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 1058, no. 1, p. 012017, 2021.

[65] G. M. Ayoub, H. Kalinian, and R. Zayyat, "Efficient phosphate removal from contaminated water using functional raw dolomite powder," *SN Appl. Sci.*, vol. 1, no. 7, pp. 1–15, 2019.

[66] L. F. De Magalhães, G. R. Da Silva, and A. E. C. Peres, "Zeolite Application in Wastewater Treatment," *Adsorpt. Sci. Technol.*, vol. 2022, 2022.

[67] N. Karapinar, "Application of natural zeolite for phosphorus and ammonium removal from aqueous solutions," *Journal of Hazardous Materials*, vol. 170, no. 2–3. pp. 1186–1191, 2009.

[68] L. Lin, C. Wan, D. J. Lee, Z. Lei, and X. Liu, "Ammonium assists orthophosphate removal from high-strength wastewaters by natural zeolite," *Sep. Purif. Technol.*, vol. 133, pp. 351–356, 2014.

[69] K. Lamont, E. Pensini, P. Daguppati, R. Rudra, J. van de Vegte, and J. Levangie, "Natural reusable calcium-rich adsorbent for the removal of phosphorus from water: proof of concept of a circular economy," *Can. J. Civ. Eng.*, vol. 46, no. 5, pp. 458–461, 2019.

[70] L. Li, H. Zhang, and D. Wang, "Influencing factors of limestone sorption and its usage in advanced wastewater treatment for phosphorus removal," *Int. J. Nanosci.*, vol. 11, no. 6, pp. 1–6, 2012.

[71] M. Y. Can and E. Yildiz, “Phosphate removal from water by fly ash: Factorial experimental design,” *J. Hazard. Mater.*, vol. 135, no. 1–3, pp. 165–170, 2006.

[72] S. M. Ragheb, “Phosphate removal from aqueous solution using slag and fly ash,” *HBRC J.*, vol. 9, no. 3, pp. 270–275, 2013.

[73] S. G. Lu, S. Q. Bai, L. Zhu, and H. D. Shan, “Removal mechanism of phosphate from aqueous solution by fly ash,” *J. Hazard. Mater.*, vol. 161, no. 1, pp. 95–101, 2009.

[74] P. Myllymäki, J. Pesonen, H. Romar, T. Hu, P. Tynjälä, and U. Lassi, “The use of Ca-and Mg-rich fly ash as a chemical precipitant in the simultaneous removal of nitrogen and phosphorus—recycling and reuse,” *Recycling*, vol. 4, no. 2, 2019.

[75] P. B. Cusack, O. Callery, R. Courtney, É. Ujaczki, L. M. T. O’Donoghue, and M. G. Healy, “The use of rapid, small-scale column tests to determine the efficiency of bauxite residue as a low-cost adsorbent in the removal of dissolved reactive phosphorus from agricultural waters,” *J. Environ. Manage.*, vol. 241, no. April, pp. 273–283, 2019.

[76] C. Barca, D. Scanu, N. Podda, H. Miche, L. Poizat, and P. Hennebert, “Phosphorus removal from wastewater by carbonated bauxite residue under aerobic and anoxic conditions,” *J. Water Process Eng.*, vol. 39, no. July 2020, pp. 1–10, 2021.

[77] J. H. Park, J. J. Wang, and D. C. Seo, “Sorption characteristics of phosphate by bauxite residue in aqueous solution,” *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 618, no. January, p. 126465, 2021.

[78] A. Jonidi Jafari and M. Moslemzadeh, “Investigation of Phosphorus Removal Using Steel Slag from Aqueous Solutions: a Systematic Review Study,” *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, pp. 1–13, 2020.

[79] C. Han, Z. Wang, H. Yang, and X. Xue, “Removal kinetics of phosphorus from synthetic wastewater using basic oxygen furnace slag,” *J. Environ. Sci. (China)*, vol. 30, pp. 21–29, 2015.

[80] C. Han, Z. Wang, W. Yang, Q. Wu, H. Yang, and X. Xue, “Effects of pH on phosphorus removal capacities of basic oxygen furnace slag,” *Ecol. Eng.*, vol. 89, pp. 1–6, 2016.

[81] L. J. Westholm, “The Use of blast furnace slag for removal of phosphorus from wastewater

in sweden-a review," *Water (Switzerland)*, vol. 2, no. 4, pp. 826–837, 2010.

[82] C. Barca, C. Gérente, D. Meyer, F. Chazarenc, and Y. Andrès, "Phosphate removal from synthetic and real wastewater using steel slags produced in Europe," *Water Res.*, vol. 46, no. 7, pp. 2376–2384, 2012.

[83] J. P. Gustafsson, A. Renman, G. Renman, and K. Poll, "Phosphate removal by mineral-based sorbents used in filters for small-scale wastewater treatment," *Water Res.*, vol. 42, no. 1–2, pp. 189–197, 2008.

[84] I. Herrmann, A. Jourak, T. S. Lundström, A. Hedstrm, and M. Viklander, "Phosphorus binding to Filtra P in batch tests," *Environ. Technol.*, vol. 33, no. 9, pp. 1013–1019, 2012.

[85] C. Vohla, M. Kõiv, H. J. Bavor, F. Chazarenc, and Ü. Mander, "Filter materials for phosphorus removal from wastewater in treatment wetlands-a review," *Ecol. Eng.*, vol. 37, no. 1, pp. 70–89, 2011.

[86] K. Ádám, T. Krogstad, L. Vråle, A. K. Søvik, and P. D. Jenssen, "Phosphorus retention in the filter materials shellsand and Filtralite P®-Batch and column experiment with synthetic P solution and secondary wastewater," *Ecol. Eng.*, vol. 29, no. 2, pp. 200–208, 2007.

[87] A. Renman, L. D. Hylander, and G. Renman, "Transformation and removal of nitrogen in reactive bed filter materials designed for on-site wastewater treatment," *Ecol. Eng.*, vol. 34, no. 3, pp. 207–214, 2008.

[88] S. Poikane *et al.*, "Nutrient criteria for surface waters under the European Water Framework Directive: Current state-of-the-art, challenges and future outlook," *Sci. Total Environ.*, vol. 695, p. 133888, 2019.

[89] "Chapter NR 217: effluent standards and limitations for phosphorus," Environmental Protection Agency, 2013.

[90] R. Bashar, K. Gungor, K. G. Karthikeyan, and P. Barak, "Cost effectiveness of phosphorus removal processes in municipal wastewater treatment," *Chemosphere*, vol. 197, pp. 280–290, 2018.

[91] J. T. Bunce, E. Ndam, I. D. Ofiteru, A. Moore, and D. W. Graham, "A Review of Phosphorus Removal Technologies and Their Applicability to Small-Scale Domestic Wastewater

Treatment Systems," *Front. Environ. Sci.*, vol. 6, no. FEB, pp. 1–15, 2018.

[92] R. hong Li, X. mao Wang, and X. yan Li, "A membrane bioreactor with iron dosing and acidogenic co-fermentation for enhanced phosphorus removal and recovery in wastewater treatment," *Water Res.*, vol. 129, pp. 402–412, 2018.

[93] J. Torit and D. Phihusut, "Phosphorus removal from wastewater using eggshell ash," *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 26, no. 33, pp. 34101–34109, 2019.

[94] D. Mahardika, H. S. Park, and K. H. Choo, "Ferrihydrite-impregnated granular activated carbon (FH@GAC) for efficient phosphorus removal from wastewater secondary effluent," *Chemosphere*, vol. 207, pp. 527–533, 2018.

[95] M. Kasprzyk and M. Gajewska, "Phosphorus removal by application of natural and semi-natural materials for possible recovery according to assumptions of circular economy and closed circuit of P," *Sci. Total Environ.*, vol. 650, pp. 249–256, 2019.

[96] Y. Deng and A. Wheatley, "Mechanisms of phosphorus removal by recycled crushed concrete," *Int. J. Environ. Res. Public Health*, vol. 15, no. 2, 2018.

[97] M. Zuo, G. Renman, J. P. Gustafsson, and W. Klysubun, "Dual slag filters for enhanced phosphorus removal from domestic waste water: performance and mechanisms," *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 25, no. 8, pp. 7391–7400, 2018.

[98] B. Vidal, A. Hedström, and I. Herrmann, "Phosphorus reduction in filters for on-site wastewater treatment," *J. Water Process Eng.*, vol. 22, no. December 2017, pp. 210–217, 2018.

[99] A. Klimeski, W. J. Chardon, E. Turtola, and R. Uusitalo, "Potential and limitations of phosphate retention media in water protection: A process-based review of laboratory and field-scale tests," *Agric. Food Sci.*, vol. 21, no. 3, pp. 206–223, 2012.

[100] K. Jóźwiakowski *et al.*, "Influence of the particle size of carbonate-siliceous rock on the efficiency of phosphorous removal from domestic wastewater," *Ecol. Eng.*, vol. 98, pp. 290–296, 2017.

[101] S. C. Bird and A. Drizo, "EAF steel slag filters for phosphorus removal from milk parlor effluent: The effects of solids loading, alternate feeding regimes and in-series design," *Water*

(Switzerland), vol. 2, no. 3, pp. 484–499, 2010.

[102] C. Penn and J. M. Bowen, "Phosphorus sorption materials (PSMs): The heart of the phosphorus removal structure," in *Design and Construction of Phosphorus Removal Structures for Improving Water Quality*, Springer, 2017, pp. 67–104.

[103] S. C. Bird and A. Drizo, "Investigations on phosphorus recovery and reuse as soil amendment from electric arc furnace slag filters," *J. Environ. Sci. Heal. - Part A Toxic/Hazardous Subst. Environ. Eng.*, vol. 44, no. 13, pp. 1476–1483, 2009.

[104] L. D. Hylander and G. Simán, "Plant availability of phosphorus sorbed to potential wastewater treatment materials," *Biol. Fertil. Soils*, vol. 34, no. 1, pp. 42–48, 2001.

[105] B. M. Mercado-Borrayo, J. L. González-Chávez, R. M. Ramírez-Zamora, and R. Schouwenaars, "Valorization of Metallurgical Slag for the Treatment of Water Pollution: An Emerging Technology for Resource Conservation and Re-utilization," *J. Sustain. Metall.*, vol. 4, no. 1, pp. 50–67, 2018.

[106] D. Claveau-Mallet, S. Wallace, and Y. Comeau, "Removal of phosphorus, fluoride and metals from a gypsum mining leachate using steel slag filters," *Water Res.*, vol. 47, no. 4, pp. 1512–1520, 2013.

[107] I. Blanco, P. Molle, L. E. Sáenz de Miera, and G. Ansola, "Basic Oxygen Furnace Steel Slag Aggregates for Phosphorus Treatment: Evaluation of Its Potential Use as a Substrate in Constructed Wetlands," *Water Res.*, vol. 89, pp. 355–365, 2016.

[108] C. Barca *et al.*, "Steel Slag Filters to Upgrade Phosphorus Removal in Small Wastewater Treatment Plants: Removal Mechanisms and Performance," *Ecol. Eng.*, vol. 68, pp. 214–222, 2014.

[109] "pH," *United States Environmental Protection (EPA)*, 2023. [Online]. Available: https://www.epa.gov/caddis/ph#low.

[110] "Regulation respecting municipal wastewater treatment works, Q-2, r. 34.1," *Quebec Government , Department of Environment*, 2023. [Online]. Available: https://www.legisquebec.gouv.qc.ca/en/document/cr/q-2, r. 34.1.

[111] A. K. Maharjan, T. Kamei, K. Mori, K. Nishida, and T. Toyama, "Ammonium Removal

from Alkaline Groundwater Using A Dropping Nitrification Unit with Sponge or Biofringe Material," *J. Water Environ. Technol.*, vol. 19, no. 6, pp. 302–315, 2021.

[112] M. Loncnar, A. Mladenovic, V. Z. Serjun, M. Zupancic, and H. A. van der Sloot, "Leaching and geochemical modelling of an electric arc furnace (EAF) and ladle slag heap," *Toxic*, vol. 10, pp. 1–10, 2022.

[113] N. Montcoudiol, J. Molson, and J. M. Lemieux, "Hydrogeochemical characterization of groundwater in the Outaouais region (Québec , Canada) – A regional scale study," in *GeoMontreal2013 Proceedings*, 2013.

[114] D. Claveau-Mallet, É. Boutet, and Y. Comeau, "Steel slag filter design criteria for phosphorus removal from wastewater in decentralized applications," *Water Res.*, vol. 143, pp. 28–37, 2018.

[115] M. W. Letshwenyo and T. V. Sima, "Phosphorus removal from secondary wastewater effluent using copper smelter slag," *Heliyon*, vol. 6, no. 6, 2020.

[116] Y. H. Wu, J. Yang, H. Y. Hu, and Y. Yu, "Lipid-rich microalgal biomass production and nutrient removal by Haematococcus pluvialis in domestic secondary effluent," *Ecol. Eng.*, vol. 60, pp. 155–159, 2013.

[117] Y. H. Wu, X. Li, Y. Yu, H. Y. Hu, T. Y. Zhang, and F. M. Li, "An integrated microalgal growth model and its application to optimize the biomass production of Scenedesmus sp. LX1 in open pond under the nutrient level of domestic secondary effluent," *Bioresour. Technol.*, vol. 144, pp. 445–451, 2013.

[118] S. Wang, J. Ma, B. Liu, Y. Jiang, and H. Zhang, "Degradation characteristics of secondary effluent of domestic wastewater by combined process of ozonation and biofiltration," *J. Hazard. Mater.*, vol. 150, no. 1, pp. 109–114, 2008.

[119] H. Sunahara, W. M. Xie, X. C. Zhang, and T. Kitaide, "Phosphate removal by column packed blast furnace slag - ii. Practical application of secondary effluent," *Environ. Technol. Lett.*, vol. 8, no. 1–12, pp. 599–608, 1987.

[120] J. J. Qin *et al.*, "Pilot study for reclamation of secondary treated sewage effluent," *Desalination*, vol. 171, no. 3, pp. 299–305, 2005.

[121] A. Mažeikienė and J. Šarko, “On-site wastewater treatment using reactive filter media,” *Water Environ. Journa*, vol. 35, pp. 252–258, 2021.

[122] P. Jin, X. Jin, X. C. Wang, and X. Shi, “An analysis of the chemical safety of secondary effluent for reuse purposes and the requirement for advanced treatment,” *Chemosphere*, vol. 91, no. 4, pp. 558–562, 2013.

[123] E. Hapeshi, I. Fotiou, and D. Fatta-Kassinos, “Sonophotocatalytic treatment of ofloxacin in secondary treated effluent and elucidation of its transformation products,” *Chem. Eng. J.*, vol. 224, no. 1, pp. 96–105, 2013.

[124] S. Giannakis, F. A. Gamarra Vives, D. Grandjean, A. Magnet, L. F. De Alencastro, and C. Pulgarin, “Effect of advanced oxidation processes on the micropollutants and the effluent organic matter contained in municipal wastewater previously treated by three different secondary methods,” *Water Res.*, vol. 84, pp. 295–306, 2015.

[125] F. Gao *et al.*, “Removal of nutrients, organic matter, and metal from domestic secondary effluent through microalgae cultivation in a membrane photobioreactor,” *J. Chem. Technol. Biotechnol.*, vol. 91, no. 10, pp. 2713–2719, 2016.

[126] F. Gao, W. Cui, J. P. Xu, C. Li, W. H. Jin, and H. L. Yang, “Lipid accumulation properties of Chlorella vulgaris and Scenedesmus obliquus in membrane photobioreactor (MPBR) fed with secondary effluent from municipal wastewater treatment plant,” *Renew. Energy*, vol. 136, pp. 671–676, 2019.

[127] K. H. Choo and S. K. Kang, “Removal of residual organic matter from secondary effluent by iron oxides adsorption,” *Desalination*, vol. 154, no. 2, pp. 139–146, 2003.

[128] A. Chan, H. Salsali, and E. McBean, “Heavy metal removal (copper and zinc) in secondary effluent from wastewater treatment plants by microalgae,” *ACS Sustain. Chem. Eng.*, vol. 2, no. 2, pp. 130–137, 2014.

[129] L. Barton *et al.*, “Land Application of Domestic Effluent onto Four Soil Types: Plant Uptake and Nutrient Leaching,” *J. Environ. Qual.*, vol. 34, no. 2, pp. 635–643, 2005.

[130] R. J. Banu, K. U. Do, and I. T. Yeom, “Phosphorus removal in low alkalinity secondary effluent using alum,” *Int. J. Environ. Sci. Technol.*, vol. 5, no. 1, pp. 93–98, 2008.

[131] F. A. AlMomani and B. Örmeci, "Performance Of Chlorella Vulgaris, Neochloris Oleoabundans, and mixed indigenous microalgae for treatment of primary effluent, secondary effluent and centrate," *Ecol. Eng.*, vol. 95, pp. 280–289, 2016.

[132] MELCC, "Guide Technique-Traitement des eaux usées des résidences isolées," Centre d'information du ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques, Montreal, Canada, 2015.

[133] Y. Zheng *et al.*, "Reclaiming phosphorus from secondary treated municipal wastewater with engineered biochar," *Chem. Eng. J.*, vol. 362, no. December 2018, pp. 460–468, 2019.

[134] X. J. Yang, Y. M. Tong, Y. Song, W. K. Qi, Y. Y. Li, and Y. L. Guo, "Domestic sewage and secondary effluent treatment using vertical submerged biological filter," *IOP Conf. Ser. Earth Environ. Sci.*, vol. 82, no. 1, 2017.

[135] J. Yang, X. Li, H. Hu, X. Zhang, Y. Yu, and Y. Chen, "Growth and lipid accumulation properties of a freshwater microalga, Chlorella ellipsoidea YJ1, in domestic secondary effluents," *Appl. Energy*, vol. 88, no. 10, pp. 3295–3299, 2011.

[136] L. Xin, H. Hong-ying, and Y. Jia, "Lipid accumulation and nutrient removal properties of a newly isolated freshwater microalga, Scenedesmus sp. LX1, growing in secondary effluent," *N. Biotechnol.*, vol. 27, no. 1, pp. 59–63, 2010.

[137] Y. H. Wu, S. F. Zhu, Y. Yu, X. J. Shi, G. X. Wu, and H. Y. Hu, "Mixed cultivation as an effective approach to enhance microalgal biomass and triacylglycerol production in domestic secondary effluent," *Chem. Eng. J.*, vol. 328, pp. 665–672, 2017.

[138] R. B. Baird, A. D. Eaton, and E. W. Rice, "2320. Alkalinity," in *Standard Method For the examination for Water and Wastewater*, 23rd ed., American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation, 2017, pp. 5–17.

[139] D. Claveau-Mallet, B. Courcelles, and Y. Comeau, "Phosphorus Removal by Steel Slag Filters: Modeling Dissolution and Precipitation Kinetics to Predict Longevity," *Environ. Sci. Technol.*, vol. 48, no. 13, pp. 7486–7493, 2014.

[140] D. Claveau-Mallet, B. Courcelles, P. Pasquier, and Y. Comeau, "Numerical simulations with the P-Hydroslag model to predict phosphorus removal by steel slag filters," *Water Res.*, vol. 126, pp. 421–432, 2017.

[141] L. Wang, C. Penn, C. H. Huang, S. Livingston, and J. Yan, "Using steel slag for dissolved phosphorus removal: Insights from a designed flow-through laboratory experimental structure," *Water (Switzerland)*, vol. 12, no. 5, 2020.

[142] D. Claveau-Mallet and Y. Comeau, "Chemical clogging and evolution of head losses in steel slag filters used for phosphorus removal," *Water (Switzerland)*, vol. 12, no. 6, 2020.

[143] S. N. Maarup *et al.*, "Steel Slag and Limestone as a Rock Filter for Eliminating Phosphorus from Domestic Wastewater: A Pilot Study in a Warm Climate," *Water (Switzerland)*, vol. 15, no. 4, 2023.

[144] R. Qiu, F. Cheng, X. Wang, J. Li, and R. Gao, "Adsorption kinetics and isotherms of ammonia-nitrogen on steel slag," *Desalin. Water Treat.*, vol. 55, no. 1, pp. 142–150, 2015.

[145] Y. Liyun, X. Ping, Y. Maomao, and B. Hao, "The characteristics of steel slag and the effect of its application as a soil additive on the removal of nitrate from aqueous solution," *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 24, no. 5, pp. 4882–4893, 2017.

[146] J. Wei *et al.*, "Insight into biofilm formation of wastewater treatment processes: Nitrogen removal performance and biological mechanisms," *Sci. Total Environ.*, vol. 903, no. July, p. 166550, 2023.

[147] R. Keluskar, A. Nerurkar, and A. Desai, "Mutualism between autotrophic ammonia-oxidizing bacteria (AOB) and heterotrophs present in an ammonia-oxidizing colony," *Arch. Microbiol.*, vol. 195, no. 10–11, pp. 737–747, 2013.

[148] W. Fu *et al.*, "Advances in Research Into and Applications of Heterotrophic Nitrifying and Aerobic Denitrifying Microorganisms," *Front. Environ. Sci.*, vol. 10, no. July, pp. 1–16, 2022.

[149] Q. Zhang *et al.*, "Enhanced ammonia removal in tidal flow constructed wetland by incorporating steel slag: Performance, microbial community, and heavy metal release," *Sci. Total Environ.*, vol. 922, no. February, 2024.

[150] Y. Liu, X. Sheng, Y. Dong, and Y. Ma, "Removal of high-concentration phosphate by calcite: Effect of sulfate and pH," *Desalination*, vol. 289, pp. 66–71, 2012.

[151] E. Valsami-Jones, "Mineralogical controls on phosphorus recovery from wastewaters,"

Mineral. Mag., vol. 65, no. 5, pp. 611–620, 2001.

[152] C. Liu, Z. Dai, and H. Sun, "Potential of duckweed (Lemna minor) for removal of nitrogen and phosphorus from water under salt stress," *J. Environ. Manage.*, vol. 187, pp. 497–503, 2017.

[153] D. Bhalla and S. S. Mukhopadhyay, "Eutrophication : Can nanophosphorous control this menace ?," *Nat. Preced.*, 2009.

[154] B. Liu, L. Liu, and W. Li, "Effective removal of phosphorus from eutrophic water by using cement," *Environ. Res.*, vol. 183, no. February, p. 109218, 2020.

[155] M. S. Akindolie and H. J. Choi, "Fe12LaO19 fabricated biochar for removal of phosphorus in water and exploration of its adsorption mechanism," *J. Environ. Manage.*, vol. 329, no. December, p. 117053, 2023.

[156] Q. Zhou, H. Sun, L. Jia, W. Wu, and J. Wang, "Simultaneous biological removal of nitrogen and phosphorus from secondary effluent of wastewater treatment plants by advanced treatment: A review," *Chemosphere*, vol. 296, no. February, 2022.

[157] L. Antonio, J. Cardinali-rezende, W. Alves, D. S. Júdice, M. Bixilia, and W. Luiz, "Total phosphorus contents currently found in the raw wastewater – Problems and technical solutions for its removal in full-scale wastewater treatment plants," *Resour. Conserv. Recycl.*, vol. 196, no. May, 2023.

[158] A. A. A. M. Guerra *et al.*, "Efficient uptake of phosphorus from water by core@shell bimagnetic nanoadsorbents," *J. Environ. Chem. Eng.*, vol. 8, no. 4, p. 103888, 2020.

[159] S. Hei *et al.*, "Redox environment inducing strategy for enhancing biological phosphorus removal in a full-scale municipal wastewater treatment plant," *J. Clean. Prod.*, vol. 376, no. September, p. 134237, 2022.

[160] J. Ren, N. Li, H. Wei, A. Li, and H. Yang, "Efficient removal of phosphorus from turbid water using chemical sedimentation by FeCl3 in conjunction with a starch-based flocculant," *Water Res.*, vol. 170, 2020.

[161] W. Wu *et al.*, "Electrified nanohybrid filter for enhanced phosphorus removal from water," *Chemosphere*, vol. 303, no. P3, p. 135226, 2022.

[162] Y. Ren, W. Zheng, X. Duan, N. Goswami, and Y. Liu, "Recent advances in electrochemical removal and recovery of phosphorus from water: A review," *Environ. Funct. Mater.*, vol. 1, no. 1, pp. 10–20, 2022.

[163] H. Lu *et al.*, "The application of steel slag in a multistage pond constructed wetland to purify low-phosphorus polluted river water," *J. Environ. Manage.*, vol. 292, no. May, p. 112578, 2021.

[164] J. I. Lee, J. S. Oh, S. C. Yoo, E. H. Jho, C. G. Lee, and S. J. Park, "Removal of phosphorus from water using calcium-rich organic waste and its potential as a fertilizer for rice growth," *J. Environ. Chem. Eng.*, vol. 10, no. 2, p. 107367, 2022.

[165] P. Vijuksungsith *et al.*, "Removal and reuse of phosphorus from aquaculture water using activated carbon-based CaO2 nanoparticles," *Environ. Technol. Innov.*, vol. 29, 2023.

[166] A. Renman and G. Renman, "Removal of Phosphorus from Hypolimnetic Lake Water by Reactive Filter Material in a Recirculating System—Laboratory Trial," *Water (Switzerland)*, vol. 14, no. 5, 2022.

[167] H. Zhou, R. Bhattarai, Y. Li, S. Li, and Y. Fan, "Utilization of coal fly and bottom ash pellet for phosphorus adsorption: Sustainable management and evaluation," *Resour. Conserv. Recycl.*, vol. 149, no. June, pp. 372–380, 2019.

[168] C. Jiang, L. Jia, B. Zhang, Y. He, and G. Kirumba, "Comparison of quartz sand, anthracite, shale and biological ceramsite for adsorptive removal of phosphorus from aqueous solution," *J. Environ. Sci. (China)*, vol. 26, no. 2, pp. 466–477, 2014.

[169] M. Kõiv, M. Liira, Ü. Mander, R. Mõtlep, C. Vohla, and K. Kirsimäe, "Phosphorus removal using Ca-rich hydrated oil shale ash as filter material - The effect of different phosphorus loadings and wastewater compositions," *Water Res.*, vol. 44, no. 18, pp. 5232–5239, 2010.

[170] M. W. Letshwenyo and T. V. Sima, "Phosphorus removal from secondary wastewater effluent using copper smelter slag," *Heliyon*, vol. 6, no. 6, p. e04134, 2020.

[171] N. A. N. Mohd Arshad, R. Hamdan, W. Rimin, and E. E. Yaftha, "Aerated and unaerated steel slag filter systems as polishing unit for phosphorus removal from textile industrial effluent," *Mater. Today Proc.*, vol. 31, pp. 372–377, 2020.

[172] M. T. Vu *et al.*, "Phosphorus removal from aqueous solution by steel making slag – Mechanisms and performance optimisation," *J. Clean. Prod.*, vol. 284, p. 124753, 2021.

[173] E. Oguz, "Removal of phosphate from aqueous solution with blast furnace slag," *J. Hazard. Mater.*, vol. 114, no. 1–3, pp. 131–137, 2004.

[174] X. Liu, S. Yang, S. Liu, and Y. Yang, "Performance and mechanism of phosphorus removal by slag ceramsite filler," *Process Saf. Environ. Prot.*, vol. 148, pp. 858–866, 2021.

[175] M. Edgar, N. Hamdan, D. Morales, and T. H. Boyer, "Phosphorus removal by steel slag from tile drainage water: Lab and field evaluations," *Chemosphere*, vol. 307, no. P3, p. 135850, 2022.

[176] A. Tabatabaeefar, C. Penn, and D. Claveau-mallet, "Nitrogen and phosphorus removal by reactive filter as a tertiary treatment unit for isolated houses with high alkalinity groundwater source," *J. Water Process Eng.*, vol. 62, no. 105319, pp. 1–12, 2024.

[177] N. Murayama, S. Yoshida, Y. Takami, H. Yamamoto, and J. Shibata, "Simulataneous removal of NH4 and PO4 in aqueous solution and its mechanism by using zeolite synthesized from coal fly ash," *Sep. Sci. Technol.*, vol. 38, pp. 113–130, 2007.

[178] R. B. Baird, A. D. Eaton, and E. W. Rice, "5220. Chemical Oxygen Demand," in *Standard Method For the examination for Water and Wastewater*, 23rd ed., American Public Health Association, American Water Works Association, Water Environment Federation, 2017, pp. 5–24.

[179] C. A. J. Appelo and D. Postma, *Geochemistry, Groundwater and Pollution*, 2nd ed. CRC Press, 2004.

[180] A. Copeland and D. A. Lytle, "Measuring the oxidation-reduction potential of important oxidants in drinking water," *J. Am. Water Works Assoc.*, vol. 106, no. 1, pp. E10–E20, 2014.

[181] P. Higgins, "ORP Management in Wastewater as an Indicator of Process Efficiency," *YSI Environmental Inc.*, 2013. [Online]. Available: https://www.ysi.com/ysi-blog/water-blogged-blog/2013/08/orp-management-in-wastewater-as-an-indicator-of-process-efficiency.

[182] N. M. Montaño, F. García-Oliva, and V. J. Jaramillo, "Dissolved organic carbon affects soil

microbial activity and nitrogen dynamics in a Mexican tropical deciduous forest," *Plant Soil*, vol. 295, no. 1–2, pp. 265–277, 2007.

[183] M. Liu, X. Liu, W. Wang, and J. Guo, "Phosphorus removal from wastewater using electric arc furnace slag aggregate," *Environ. Technol. (United Kingdom)*, vol. 43, no. 1, pp. 34–41, 2022.

[184] J. F. Holland, J. F. Martin, T. Granata, V. Bouchard, M. Quigley, and L. Brown, "Effects of wetland depth and flow rate on residence time distribution characteristics," *Ecol. Eng.*, vol. 23, no. 3, pp. 189–203, 2004.

[185] O. Levenspiel, *Tracer Technology: Modeling the Flow of Fluids*, First. New York: Springer, 2011.

[186] M. Ayoub, "Using a compact unit for nitrification and denitrification processes followed by activated carbon filtration to remove total nitrogen from ammonium-contaminated groundwater," *Water Pract. Technol.*, vol. 18, no. 6, pp. 1389–1403, 2023.

[187] G. Lyngsie, K. Katika, I. L. Fabricius, H. C. B. Hansen, and O. K. Borggaard, "Phosphate removal by iron oxide-coated diatomite: Laboratory test of a new method for cleaning drainage water," *Chemosphere*, vol. 222, pp. 884–890, 2019.

[188] V. Cucarella and G. Renman, "Phosphorus sorption capacity of filter materials used for on-site wastewater treatment determined in batch experiments-a comparative study," *J. Environ. Qual.*, vol. 38, no. 2, pp. 381–392, 2009.

[189] W. D. Robertson, D. R. Van Stempvoort, and S. L. Schiff, "Review of phosphorus attenuation in groundwater plumes from 24 septic systems," *Sci. Total Environ.*, vol. 692, pp. 640–652, 2019.

[190] C. D. Beal, E. A. Gardner, and N. W. Menzies, "Process, performance, and pollution potential: A review of septic tank-soil absorption systems," *Aust. J. Soil Res.*, vol. 43, no. 7, pp. 781–802, 2005.

[191] K. S. Hart, B. D. Lee, P. J. Schoeneberger, D. P. Franzmeier, P. R. Owens, and D. R. Smith, "Comparison of field measured soil absorption field loading rates and loading rates estimated from soil morphologic properties," *J. Hydrol. Eng.*, vol. 13, no. 8, pp. 665–670, 2008.

[192] M. Bali and M. Gueddari, “Removal of phosphorus from secondary effluents using infiltration–percolation process,” *Appl. Water Sci.*, vol. 9, no. 3, pp. 1–8, 2019.

[193] H. Ilyas and I. Masih, “The effects of different aeration strategies on the performance of constructed wetlands for phosphorus removal,” *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 25, no. 6, pp. 5318–5335, 2018.

[194] J. Vymazal, “Removal of nutrients in various types of constructed wetlands,” *Sci. Total Environ.*, vol. 380, no. 1–3, pp. 48–65, 2007.

[195] Z. Zhou *et al.*, “Preparation and characterization of clay-oyster shell composite adsorption material and its application in phosphorus removal from wastewater,” *Sustain. Chem. Pharm.*, vol. 32, no. January, p. 101023, 2023.

[196] V. Cucarella, R. Mazurek, T. Zaleski, M. Kopeć, and G. Renman, “Effect of Polonite used for phosphorus removal from wastewater on soil properties and fertility of a mountain meadow,” *Environ. Pollut.*, vol. 157, no. 7, pp. 2147–2152, 2009.

[197] V. Cucarella, T. Zaleski, R. Mazurek, and G. Renman, “Effect of reactive substrates used for the removal of phosphorus from wastewater on the fertility of acid soils,” *Bioresour. Technol.*, vol. 99, no. 10, pp. 4308–4314, 2008.

[198] A. Hedström, “Reactive filter systems for small scale wastewater treatment a literature review,” *Vatten*, vol. 62, pp. 253–263, 2006.

[199] D. Claveau-Mallet, H. Seltani, and Y. Comeau, “Phosphorus removal and carbon dioxide capture in a pilot conventional septic system upgraded with a sidestream steel slag filter,” *Water (Switzerland)*, vol. 12, no. 1, 2020.

[200] W. M. Xie, X. C. Zhang, T. Kitaide, and H. Sunahara, “Phosphate removal by column packed blast furnace slag - ii. Practical application of secondary effluent,” *Environ. Technol. Lett.*, vol. 8, pp. 599–608, 1987.

[201] H. Wang, W. Dong, T. Li, and T. Liu, “A modified BAF System configuring synergistic denitrification and chemical phosphorus precipitation: Examination on pollutants removal and clogging development,” *Bioresour. Technol.*, vol. 189, pp. 44–52, 2015.

[202] S. N. Maarup *et al.*, “Steel slag and limestone as a rock filter for eliminating phosphorus

from domestic wastewater: A pilot study in a warm climate," *Water (Switzerland)*, vol. 15, no. 4, 2023.

[203] A. Karczmarczyk and A. Bus, "Testing of reactive materials for phosphorus removal from water and wastewater – comparative study," *Ann. Warsaw Univ. Life Sci. - SGGW. L. Reclam.*, vol. 46, no. 1, pp. 57–67, 2014.

[204] C. Penn, I. Chagas, A. Klimeski, and G. Lyngsie, "A Review of phosphorus removal structures: How to assess and compare their performance," *Water (Switzerland)*, vol. 9, no. 8, pp. 1–22, 2017.

[205] G. Lyngsie, C. J. Penn, H. C. B. Hansen, and O. K. Borggaard, "Phosphate sorption by three potential filter materials as assessed by isothermal titration calorimetry," *J. Environ. Manage.*, vol. 143, pp. 26–33, 2014.

[206] I. S. P. C. Scott and C. J. Penn, "Estimating the variability of steel slag properties and their influence in phosphorus removal ability," *Chemosphere*, vol. 276, p. 130205, 2021.

[207] D. J. Ballantine and C. C. Tanner, "Substrate and filter materials to enhance phosphorus removal in constructed wetlands treating diffuse farm runoff: A review," *New Zeal. J. Agric. Res.*, vol. 53, no. 1, pp. 71–95, 2010.

[208] L. Johansson Westholm, "Substrates for phosphorus removal - Potential benefits for on-site wastewater treatment?," *Water Res.*, vol. 40, no. 1, pp. 23–36, 2006.

[209] R. Hamisi, A. Renman, G. Renman, A. Wörman, and R. Thunvik, "Long-term phosphorus sorption and leaching in sand filters for onsite treatment systems," *Sci. Total Environ.*, vol. 833, no. March, 2022.

[210] M. J. Baker, D. W. Blowes, and C. J. Ptacek, "Laboratory development of permeable reactive mixtures for the removal of phosphorus from onsite wastewater disposal systems," *Environ. Sci. Technol.*, vol. 32, no. 15, pp. 2308–2316, 1998.

[211] H. Zhong, N. Hu, Q. Wang, Y. Chen, and L. Huang, "How to select substrate for alleviating clogging in the subsurface flow constructed wetland?," *Sci. Total Environ.*, vol. 828, p. 154529, 2022.

[212] H. Wang, L. Sheng, and J. Xu, "Clogging mechanisms of constructed wetlands: A critical

review," *J. Clean. Prod.*, vol. 295, p. 126455, 2021.

[213] M. P. de Matos, M. von Sperling, and A. T. de Matos, "Clogging in horizontal subsurface flow constructed wetlands: influencing factors, research methods and remediation techniques," *Rev. Environ. Sci. Biotechnol.*, vol. 17, no. 1, pp. 87–107, 2018.

[214] K. H. Suhaib and P. Bhunia, "Dynamics of clogging in subsurface flow constructed wetlands," *J. Hazardous, Toxic, Radioact. Waste*, vol. 26, no. 1, 2022.

[215] Y. Fang *et al.*, "Fifteen-year analysis of constructed wetland clogging: A critical review," *J. Clean. Prod.*, vol. 365, no. April, p. 132755, 2022.

[216] A. Pedescoll, P. R. Knowles, P. Davies, J. García, and J. Puigagut, "A Comparison of in situ constant and falling head permeameter tests to assess the distribution of clogging within horizontal subsurface flow constructed wetlands," *Water. Air. Soil Pollut.*, vol. 223, no. 5, pp. 2263–2275, 2012.

[217] A. Hedström and L. Rastas, "Methodological aspects of using blast furnace slag for wastewater phosphorus removal," *J. Environ. Eng.*, vol. 132, no. 11, pp. 1431–1438, 2006.

[218] J. Nivala and D. P. L. Rousseau, "Reversing clogging in subsurface-flow constructed wetlands by hydrogen peroxide treatment: Two case studies," *Water Sci. Technol.*, vol. 59, no. 10, pp. 2037–2046, 2009.

[219] R. H. Kadlec and S. D. Wallace, *Treatment Wetlands*, 2nd ed. Boca Raton: CRC Press, 2008.

[220] J. Vymazal, "Does clogging affect long-term removal of organics and suspended solids in gravel-based horizontal subsurface flow constructed wetlands?," *Chem. Eng. J.*, vol. 331, no. July 2017, pp. 663–674, 2018.

[221] B. Vidal, A. Hedström, and I. Herrmann, "Phosphorus reduction in filters for on-site wastewater treatment," *J. Water Process Eng.*, vol. 22, no. December 2017, pp. 210–217, 2018.

[222] C. B. Zhang, W. L. Liu, J. Wang, Y. Ge, B. H. Gu, and J. Chang, "Effects of plant diversity and hydraulic retention time on pollutant removals in vertical flow constructed wetland mesocosms," *Ecol. Eng.*, vol. 49, pp. 244–248, 2012.

[223] D. Claveau-Mallet, S. Wallace, and Y. Comeau, "Model of phosphorus precipitation and

crystal formation in electric arc furnace steel slag filters," *Environ. Sci. Technol.*, vol. 46, no. 3, pp. 1465–1470, 2012.

[224] I. Herrmann, A. Jourak, A. Hedström, T. S. Lundström, and M. Viklander, "The effect of hydraulic loading rate and influent source on the binding capacity of phosphorus filters," *PLoS One*, vol. 8, no. 8, 2013.

[225] A. Caselles-Osorio *et al.*, "Solids accumulation in six full-scale subsurface flow constructed wetlands," *Water Res.*, vol. 41, no. 6, pp. 1388–1398, 2007.

[226] G. R. Vasconcellos, M. von Sperling, and R. S. Ocampos, "From start-up to heavy clogging: Performance evaluation of horizontal subsurface flow constructed wetlands during 10 years of operation," *Water Sci. Technol.*, vol. 79, no. 7, pp. 1231–1240, 2019.

[227] D. Weber, A. Drizo, E. Twohig, S. Bird, and D. Ross, "Upgrading constructed wetlands phosphorus reduction from a dairy effluent using electric arc furnace steel slag filters," *Water Sci. Technol.*, vol. 56, no. 3, pp. 135–143, 2007.

[228] C. Nilsson, G. Renman, L. Johansson Westholm, A. Renman, and A. Drizo, "Effect of organic load on phosphorus and bacteria removal from wastewater using alkaline filter materials," *Water Res.*, vol. 47, no. 16, pp. 6289–6297, 2013.

[229] M. S. Anjali, S. Shrihari, and B. M. Sunil, "Experimental studies of slag filter for drinking water treatment," *Environ. Technol. Innov.*, vol. 15, p. 100418, 2019.

[230] A. Tabatabaeefar, C. J. Penn, and D. Claveau-Mallet, "Performance study of inlet design in reactive filters as tertiary treatment unit for decentralized wastewater systems," in *International Water Association (IWA)*, 2024.

[231] A. Tabatabaeefar, C. Penn, and D. Claveau-Mallet, "Nitrogen and phosphorus removal by reactive filter as a tertiary treatment unit for isolated houses with high alkalinity groundwater source," *J. Water Process Eng.*, vol. 62, no. January, p. 105319, 2024.

[232] S. Banihashem and M. Karrabi, "Investigation of suspended particle size effects on clogging of soil filters under laminar flow," *Eur. J. Environ. Civ. Eng.*, vol. 0, no. 0, pp. 1–10, 2020.

[233] A. Caselles-Osorio and J. García, "Performance of experimental horizontal subsurface flow constructed wetlands fed with dissolved or particulate organic matter," *Water Res.*, vol. 40,

no. 19, pp. 3603–3611, 2006.

[234] Z. Lianfang, Z. Wei, and T. Wei, “Clogging processes caused by biofilm growth and organic particle accumulation in lab-scale vertical flow constructed wetlands,” *J. Environ. Sci.*, vol. 21, no. 6, pp. 750–757, 2009.

[235] A. Drizo, C. Forget, R. P. Chapuis, and Y. Comeau, “Phosphorus removal by electric arc furnace steel slag and serpentinite,” *Water Res.*, vol. 40, no. 8, pp. 1547–1554, 2006.

[236] X. Ye *et al.*, “Mechanism of suspended Kaolinite particle clogging in porous media during managed aquifer recharge,” *Groundwater*, vol. 57, no. 5, pp. 764–771, 2019.

[237] H. Brix, C. A. Arias, and M. Del Bubba, “Media selection for sustainable phosphorus removal in subsurface flow constructed wetlands,” *Water Sci. Technol.*, vol. 44, no. 11–12, pp. 47–54, 2001.

[238] A. Pedescoll, E. Uggetti, E. Llorens, F. Granés, D. García, and J. García, “Practical method based on saturated hydraulic conductivity used to assess clogging in subsurface flow constructed wetlands,” *Ecol. Eng.*, vol. 35, no. 8, pp. 1216–1224, 2009.

[239] H. S. Kandra, D. Mccarthy, A. Deletic, and D. Tim, “assessment of clogging phenomena in granular filter media used for stormwater treatment,” *Novatech*, pp. 1–10, 2010.

[240] M. P. Matos, M. von Sperling, A. T. Matos, S. T. Miranda, T. D. Souza, and L. M. Costa, “Key factors in the clogging process of horizontal subsurface flow constructed wetlands receiving anaerobically treated sewage,” *Ecol. Eng.*, vol. 106, pp. 588–596, 2017.

[241] C. S. Dunets, Y. Zheng, and M. Dixon, “Use of phosphorus-sorbing materials to remove phosphate from greenhouse wastewater,” *Environ. Technol. (United Kingdom)*, vol. 36, no. 14, pp. 1759–1770, 2015.

[242] E. Q. Segismundo, B.-S. Lee, L.-H. Kim, and B.-H. Koo, “Evaluation of the impact of filter media depth on filtration performance and clogging formation of a stormwater sand filter,” *J. Korean Soc. Water Environ.*, vol. 32, no. 1, pp. 36–45, 2016.

[243] J. Manchisi *et al.*, “Ironmaking and steelmaking slags as sustainable adsorbents for industrial effluents and wastewater treatment: A critical review of properties, performance, challenges and opportunities,” *Sustain.*, vol. 12, no. 5, pp. 1–47, 2020.

[244] M. T. Vu *et al.*, “Phosphorus removal from aqueous solution by steel making slag – mechanisms and performance optimisation,” *J. Clean. Prod.*, vol. 284, 2021.

[245] Y.-C. Chen, “Phosphorus and nitrogen removal from water using steel slag in soil-based low-impact development systems,” *J. Water Process Eng.*, vol. 44, no. October, p. 102385, 2021.

[246] L. Johansson and J. P. Gustafsson, “Phosphate removal using blast furnace slags and opoka-mechanisms,” *Water Res.*, vol. 34, no. 1, pp. 259–265, 2000.

[247] Z. Ji, W. Tang, and Y. Pei, “Constructed wetland Substrates: A review on development, function mechanisms, and application in contaminants removal,” *Chemosphere*, vol. 286, no. 19, 2022.

[248] A. Wakene, F. Zewge, Y. Chebude, M. Tesfaye, and A. Mekonnen, “Phosphate abatement using calcium silicate hydrate synthesized from alum factory solid waste residue,” *Sep. Sci. Technol.*, vol. 00, no. 00, pp. 1–19, 2021.

[249] T. H. Ha, N. N. N. Mahasti, M. C. Lu, and Y. H. Huang, “Ammonium-nitrogen recovery as struvite from swine wastewater using various magnesium sources,” *Sep. Purif. Technol.*, vol. 308, no. December 2022, p. 122870, 2023.

[250] K. Ádám, A. Kristine Søvik, and T. Krogstad, “Sorption of phosphorous to Filtralite-P^{TM} - The effect of different scales,” *Water Res.*, vol. 40, no. 6, pp. 1143–1154, 2006.

[251] C. Penn, S. Livingston, V. Shedekar, K. King, and M. Williams, “Performance of field-scale phosphorus removal structures utilizing steel slag for treatment of subsurface drainage,” *Water (Switzerland)*, vol. 12, no. 2, 2020.

[252] J. Ye, H. Li, C. Zhang, C. Ye, and W. Han, “Classification and extraction methods of the clog components of constructed wetland,” *Ecol. Eng.*, vol. 70, pp. 327–331, 2014.

[253] D. S. Kim and H. S. Fogler, “Biomass evolution in porous media and its effects on permeability under starvation conditions,” *Biotechnol. Bioeng.*, vol. 69, no. 1, pp. 47–56, 2000.

[254] M. Thullner, J. Zeyer, and W. Kinzelbach, “Influence of microbial growth on hydraulic properties of pore networks,” *Transp. Porous Media*, vol. 49, no. 1, pp. 99–122, 2002.

[255] M. Rodgers, J. Mulqueen, and M. G. Healy, “Surface clogging in an intermittent stratified sand filter,” *Soil Sci. Soc. Am. J.*, vol. 68, no. 6, pp. 1827–1832, 2004.

[256] C. Ménoret, C. Boutin, A. Liénard, and F. Brissaud, “Use of recycling through medium size granular filters to treat small food processing industry effluents,” *Water Sci. Technol.*, vol. 45, no. 12, pp. 225–232, 2002.

[257] R. Al-Saedi, K. Smettem, and K. H. M. Siddique, “The impact of biodegradable carbon sources on microbial clogging of vertical up-flow sand filters treating inorganic nitrogen wastewater,” *Sci. Total Environ.*, vol. 691, pp. 360–366, 2019.

[258] F. Suliman, H. K. French, L. E. Haugen, and A. K. Søvik, “Change in flow and transport patterns in horizontal subsurface flow constructed wetlands as a result of biological growth,” *Ecol. Eng.*, vol. 27, no. 2, pp. 124–133, 2006.

[259] D. Seifert and P. Engesgaard, “Use of tracer tests to investigate changes in flow and transport properties due to bioclogging of porous media,” *J. Contam. Hydrol.*, vol. 93, no. 1–4, pp. 58–71, 2007.

[260] M. W. Letshwenyo and L. Lebogang, “Assessment of roughing and slow sand filter modified with slag and clinker ash for removal of microorganisms from secondary effluent,” *Environ. Technol. (United Kingdom)*, vol. 41, no. 23, pp. 3004–3015, 2020.

[261] Y. Zhou, S. Luo, B. Yu, T. Zhang, J. Li, and Y. Zhang, “A comparative analysis for the development and recovery processes of different types of clogging in lab-scale vertical flow constructed wetlands,” *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 25, no. 24, pp. 24073–24083, 2018.

[262] S. Egemose, “Removal of particulate matter and phosphorus in sand filters treating stormwater and drainage runoff: a case study,” *Urban Water J.*, vol. 15, no. 4, pp. 388–391, 2018.

[263] H. Postila, S. M. Karjalainen, and B. Kløve, “Can limestone, steel slag or man-made sorption materials be used to enhance phosphate-phosphorus retention in treatment wetland for peat extraction runoff with low phosphorous concentration?,” *Ecol. Eng.*, vol. 98, pp. 403–409, 2017.

[264] J. Persson, N. L. G. Somes, and T. H. F. Wong, “Hydraulics efficiency of constructed wetlands and ponds,” *Water Sci. Technol.*, vol. 40, no. 3, pp. 291–300, 1999.

[265] J. García, J. Chiva, P. Aguirre, E. Álvarez, J. P. Sierra, and R. Mujeriego, "Hydraulic behaviour of horizontal subsurface flow constructed wetlands with different aspect ratio and granular medium size," *Ecol. Eng.*, vol. 23, no. 3, pp. 177–187, 2004.

[266] C. Barca, N. Roche, S. Troesch, Y. Andrès, and F. Chazarenc, "Modelling hydrodynamics of horizontal flow steel slag filters designed to upgrade phosphorus removal in small wastewater treatment plants," *J. Environ. Manage.*, vol. 206, pp. 349–356, 2018.

[267] M. F. Dahab and R. Y. Surampalli, "Subsurface-flow constructed wetlands treatment in the plains: Five years of experience," *Water Sci. Technol.*, vol. 44, no. 11–12, pp. 375–380, 2001.

[268] T. Kirkkala, A. M. Ventelä, and M. Tarvainen, "Fosfilt filters in an agricultural catchment: A long-term field-scale experiment," *Agric. Food Sci.*, vol. 21, no. 3, pp. 237–246, 2012.

[269] P. A. Domenico and F. W. Schwartz, *Physical and Chemical Hydrogeology*, 2nd ed., vol. 79, no. 4. Wiley, 1997.

[270] C. A. Arias, M. Del Bubba, and H. Brix, "Phosphorus removal by sands for use as media in subsurface flow constructed reed beds," *Water Res.*, vol. 35, no. 5, pp. 1159–1168, 2001.

[271] K. Mancl and D. Rector, "Sand bioreactors for wastewater treatment for Ohio communities." Ohio State University, pp. 876–899, 1999.

[272] L. Rolland, P. Molle, A. Liénard, F. Bouteldja, and A. Grasmick, "Influence of the physical and mechanical characteristics of sands on the hydraulic and biological behaviors of sand filters," *Desalination*, vol. 248, no. 1–3, pp. 998–1007, 2009.

[273] Z. A. Anjab, "Déveleoppement d'un Lit de Scories D'aciéries Pour la Déphosphatation des Eaux Usées," Université de Montréeal, 2009.

[274] A. Renman and G. Renman, "Long-term phosphate removal by the calcium-silicate material Polonite in wastewater filtration systems," *Chemosphere*, vol. 79, no. 6, pp. 659–664, 2010.

[275] R. P. Chapuis, "Filtration des sols pulvérulents et des sols fins: Critères et exemples," *Vecteur Environ.*, vol. 28, no. 4, pp. 19–29, 1995.

[276] A. K. Maharjan, T. Kamei, K. Mori, K. Nishida, and T. Toyama, "Ammonium removal from alkaline groundwater using a dropping nitrification unit with sponge or biofringe material,"

J. Water Environ. Technol., vol. 19, no. 6, pp. 302–315, 2021.

[277] C. Barca, S. Troesch, D. Meyer, P. Drissen, Y. Andreìs, and F. Chazarenc, "Steel slag filters to upgrade phosphorus removal in constructed wetlands: Two years of field experiments," *Environ. Sci. Technol.*, vol. 47, no. 1, pp. 549–556, 2013.

[278] S. I. Hussain, D. W. Blowes, C. J. Ptacek, and D. Olding, "Phosphorus removal from lake water using basic oxygen furnace slag: System performance and characterization of reaction products," *Environ. Eng. Sci.*, vol. 31, no. 11, pp. 631–642, 2014.

[279] M. Kõiv, K. Mahadeo, S. Brient, D. Claveau-Mallet, and Y. Comeau, "Treatment of fish farm sludge supernatant by aerated filter beds and steel slag filters-effect of organic loading rate," *Ecol. Eng.*, vol. 94, pp. 190–199, 2016.

[280] D. Cooper, P. Griffin, and P. Cooper, "Factors affecting the longevity of subsurface horizontal flow systems operating as tertiary treatment for sewage Effluent," in *Wastewater Treatment, Plant Dynamics and Management in Constructed and Natural Wetlands*, 1st ed., J. Vymazal, Ed. Springer, 2008, pp. 191–198.

[281] E. Saaremäe, M. Liira, M. Poolakese, and T. Tamm, "Removing phosphorus with Ca-Fe oxide granules - A possible wetlands filter material," *Hydrol. Res.*, vol. 45, no. 3, pp. 368–378, 2014.

[282] E. Canga, B. V. Iversen, and C. Kjaergaard, "A simplified transfer function for estimating saturated hydraulic conductivity of porous drainage filters," *Water. Air. Soil Pollut.*, vol. 225, no. 1, 2014.

[283] M. Mohsenipour and S. Shahid, "Estimation of saturated hydraulic conductivity: review," in *knowledge on selection of appropriate method for estimation of hydraulicconductivity*, UniversitiTeknologi Malaysia (UTM), 2016, pp. 1–25.

[284] Q. Luo, M. Liu, T. Wang, and P. Wu, "Correction method for hydraulic conductivity measurements made using a fixed wall permeameter," *Math. Probl. Eng.*, vol. 2020, 2020.

[285] G. F. B. Sandoval, I. Galobardes, R. S. Teixeira, and B. M. Toralles, "Comparison between the falling head and the constant head permeability tests to assess the permeability coefficient of sustainable Pervious Concretes," *Case Stud. Constr. Mater.*, vol. 7, no. May, pp. 317–328, 2017.

[286] J. Andrén, “An overview of state-of-the-art hydraulic conductivity measurements in coarse grained materials-En översikt över toppmoderna mätmetoder för hydraulisk konduktivitet i grovkorniga material,” Uppsala Universitet, 2021.

[287] K. Eryürük, S. Yang, D. Suzuki, I. Sakaguchi, and A. Katayama, “Effects of bentonite and yeast extract as nutrient on decrease in hydraulic conductivity of porous media due to CaCO3 precipitation induced by Sporosarcina pasteurii,” *J. Biosci. Bioeng.*, vol. 120, no. 4, pp. 411–418, 2015.

[288] O. Levenspeil, *Tracer Technology: Modeling the flow of fluids*, 1st ed. New York: Springer, 2012.

[289] T. R. Headley and R. H. Kadlec, “Conducting hydraulic tracer studies of constructed wetlands: A practical guide,” *Ecohydrol. Hydrobiol.*, vol. 7, no. 3–4, pp. 269–282, 2007.

[290] S. Bilardi, P. S. Calabrò, R. Greco, and N. Moraci, “Selective removal of heavy metals from landfill leachate by reactive granular filters,” *Sci. Total Environ.*, vol. 644, pp. 335–341, 2018.

[291] A. V. Suhogusoff *et al.*, “Field performance of two on-site wastewater treatment systems using reactive media layers for nutrient and pathogen removal,” *J. Water Process Eng.*, vol. 32, no. March, 2019.

[292] T. Selkälä *et al.*, “Surface Modification of Cured Inorganic Foams with Cationic Cellulose Nanocrystals and Their Use as Reactive Filter Media for Anionic Dye Removal,” *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 12, no. 24, pp. 27745–27757, 2020.

[293] Z. Qin, A. L. Shober, K. G. Scheckel, C. J. Penn, and K. C. Turner, “Mechanisms of Phosphorus Removal by Phosphorus Sorbing Materials,” *J. Environ. Qual.*, vol. 47, no. 5, pp. 1232–1241, 2018.

[294] C. Penn, I. Chagas, A. Klimeski, and G. Lyngsie, “A review of phosphorus removal structures: How to assess and compare their performance,” *Water (Switzerland)*, vol. 9, no. 8, pp. 1–22, 2017.

[295] A. A. H. Faisal, S. F. A. Al-Wakel, H. A. Assi, L. A. Naji, and M. Naushad, “Waterworks sludge-filter sand permeable reactive barrier for removal of toxic lead ions from contaminated groundwater,” *J. Water Process Eng.*, vol. 33, no. November 2019, p. 101112,

2020.

[296] M. Escolà Casas and K. Bester, “Can those organic micro-pollutants that are recalcitrant in activated sludge treatment be removed from wastewater by biofilm reactors (slow sand filters)?,” *Sci. Total Environ.*, vol. 506–507, pp. 315–322, 2015.

[297] S. Bao, J. Duan, and Y. Zhang, “Recovery of V(V) from complex vanadium solution using capacitive deionization (CDI) with resin/carbon composite electrode,” *Chemosphere*, vol. 208, pp. 14–20, 2018.

[298] H. Ejhed *et al.*, “The effect of hydraulic retention time in onsite wastewater treatment and removal of pharmaceuticals, hormones and phenolic utility substances,” *Sci. Total Environ.*, vol. 618, pp. 250–261, 2018.

[299] Y. Tang *et al.*, “Experiment research on physical clogging mechanism in the porous media and its impact on permeability,” *Granul. Matter*, vol. 22, no. 2, pp. 1–14, 2020.

[300] Y. Wang, M. Huo, Q. Li, W. Fan, J. Yang, and X. Cui, “Comparison of clogging induced by organic and inorganic suspended particles in a porous medium: implications for choosing physical clogging indicators,” *J. Soils Sediments*, vol. 18, no. 9, pp. 2980–2994, 2018.

[301] C. L. Gaol, L. Ganzer, S. Mukherjee, and H. Alkan, “Investigation of clogging in porous media induced by microorganisms using a microfluidic application,” *Environ. Sci. Water Res. Technol.*, vol. 7, no. 2, pp. 441–454, 2021.

[302] R. Aiello, V. Bagarello, S. Barbagallo, M. Iovino, A. Marzo, and A. Toscano, “Evaluation of clogging in full-scale subsurface flow constructed wetlands,” *Ecol. Eng.*, vol. 95, pp. 505–513, 2016.

[303] V. Patyal, D. Jaspal, and K. Khare, “Evaluation of composite matrix in constructed wetland for phosphorus removal Vandana,” *Bioresour. Technol. Reports*, p. 109403, 2024.

[304] B. E. Hatt, T. D. Fletcher, and A. Deletic, “Hydraulic and pollutant removal performance of fine media stormwater filtration systems,” *Environ. Sci. Technol.*, vol. 42, no. 7, pp. 2535–2541, 2008.

[305] S. C. Bird and A. Drizo, “EAF Steel Slag Filters for Phosphorus Removal from Milk Parlor Effluent: The Effects of Solids Loading, Alternate Feeding Regimes and In-series Design,”

Water (Switzerland), vol. 2, no. 3, pp. 484–499, 2010.

[306] A. Karczmarczyk, K. Woja, P. Bliska, and A. Baryła, "The efficiency of filtration materials supporting phosphorus removal in on site treatment systems with wastewater infiltration," *Infrastruct. Ecol. Rural Areas*, vol. 1, no. IV, pp. 1401–1413, 2017.

[307] M. A. Grace, M. G. Healy, and E. Clifford, "Performance and surface clogging in intermittently loaded and slow sand filters containing novel media," *J. Environ. Manage.*, vol. 180, pp. 102–110, 2016.

[308] T. A. H. Nguyen *et al.*, "Hybrid use of coal slag and calcined ferralsol as wetland substrate for improving phosphorus removal from wastewater," *Chem. Eng. J.*, vol. 428, no. June 2021, 2022.

[309] S. G. Agrawal, K. W. King, E. N. Fischer, and D. N. Woner, "PO43- removal by and permeability of industrial byproducts and minerals: Granulated blast furnace slag, cement kiln dust, coconut shell activated carbon, silica sand, and zeolite," *Water. Air. Soil Pollut.*, vol. 219, no. 1–4, pp. 91–101, 2011.

[310] S. Gamri, A. Soric, S. Tomas, B. Molle, and N. Roche, "Biofilm development in micro-irrigation emitters for wastewater reuse," *Irrig. Sci.*, vol. 32, no. 1, pp. 77–85, 2014.

[311] K. Shi, T. Lu, W. Zheng, X. Zhang, and L. Zhangzhong, "A Review of the Category, Mechanism, and Controlling Methods of Chemical Clogging in Drip Irrigation System," *Agric.*, vol. 12, no. 2, pp. 1–20, 2022.

[312] M. R. Goyal, "Clogging and Maintenance of Micro Irrigation Systems," in *Research Advances in Sustainable Micro Irrigation-Management, Performance, and Applications of Micro Irrigation Systems*, First., Taylor and Francis Inc., 2015, pp. 84–97.

[313] D. C. Cararo, T. A. Botrel, D. J. Hills, and H. L. Leverenz, "Analysis of clogging in drip emitters during wastewater irrigation," *Appl. Eng. Agric.*, vol. 22, no. 2, pp. 251–257, 2005.

[314] D. Claveau-Mallet, S. Wallace, and Y. Comeau, "Removal of Phosphorus, Fluoride and Metals from a Gypsum Mining Leachate Using Steel Slag Filters," *Water Res.*, vol. 47, no. 4, pp. 1512–1520, 2013.

[315] A. Nicolas, D. Claveau-Mallet, and Y. Comeau, "Attenuation of clogging in alkaline

granular filters by optimization of media stratification and inlet design," Polytechnique Montreal, 2020.

ANNEXE A INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR LE CHAPITRE 3

Figure A1 The photo of column.

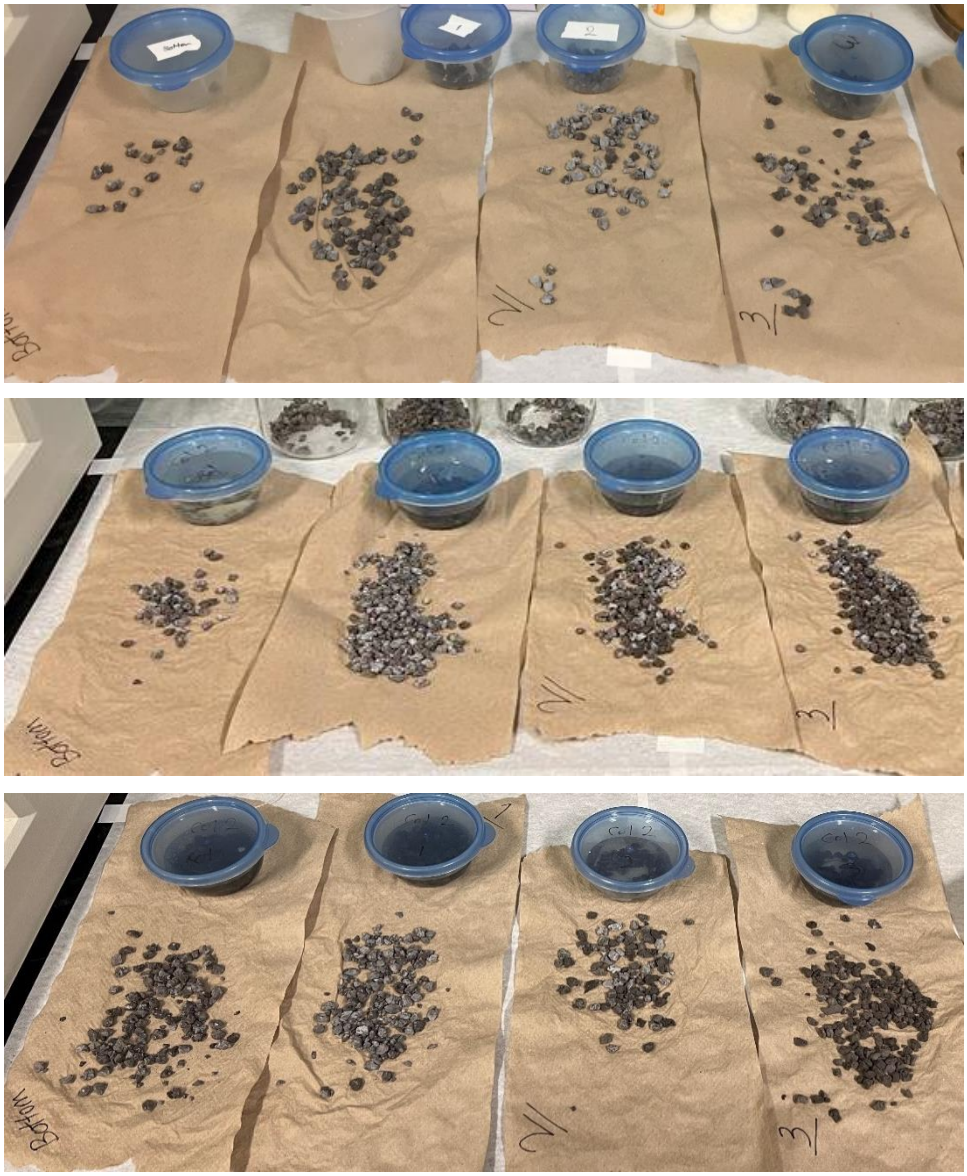


Figure A2 Slags after dismantling a) Column 1 b) Column 2 c) Column 3; section 1: 8 cm, section 2: 20 cm, section 3: 37 cm all from the bottom.

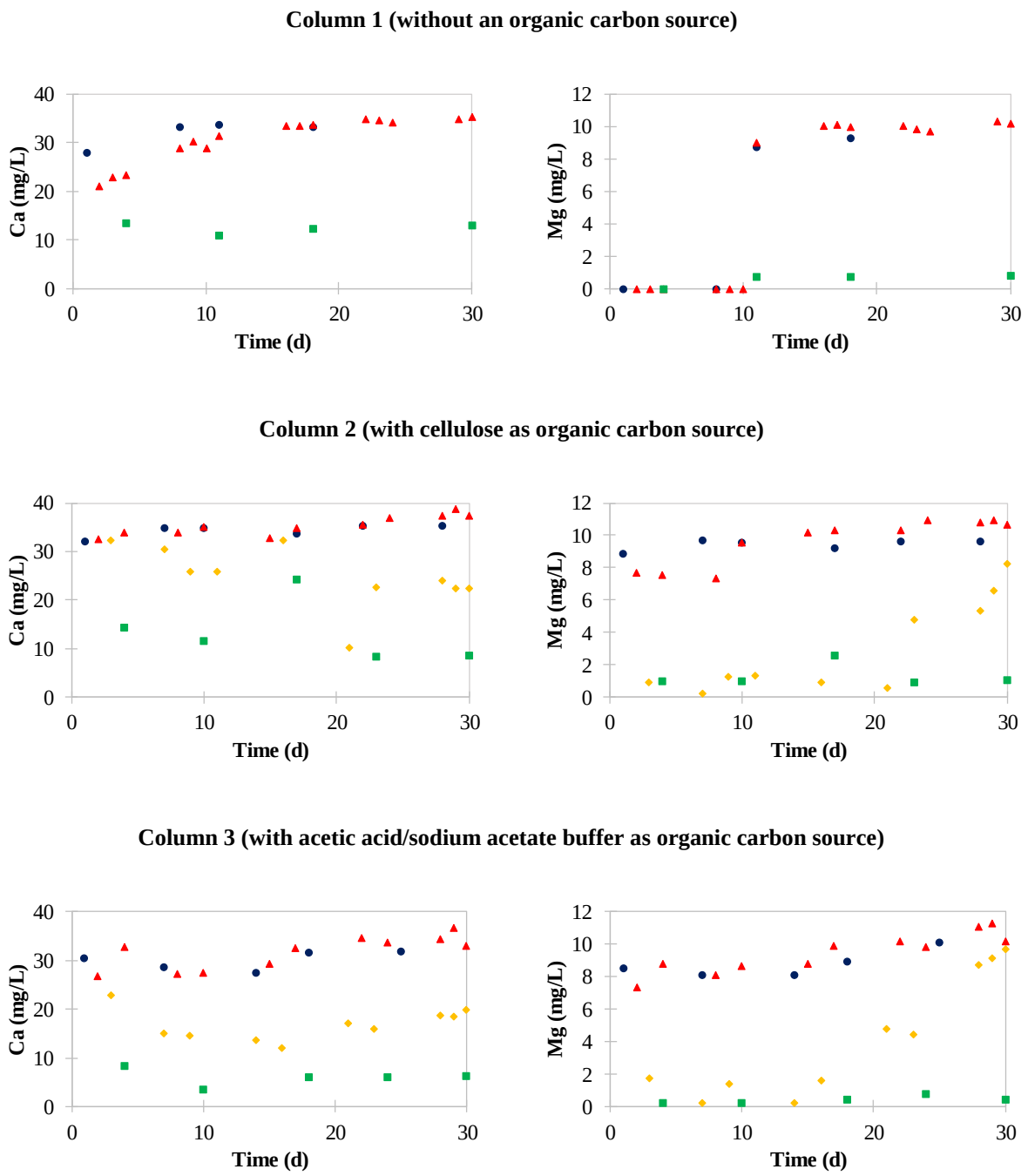


Figure A3 Changes in Ca^{2+} and Mg^{2+} concentrations in Columns 1 to 3 at four sampling points (feedstock ●, 1 ▲, 2 ♦ and 4 ■). Each column represents a different feedstock solution described in Table 3-3.

Potential risk of metal leaching was assessed during the column experiments. The analysis was performed during the loading of Column 1-C for 31 target metals: Aluminium (Al), Antimony (Sb), Arsenic (As), Barium (Ba), Beryllium (Be), Boron (B), Cadmium (Cd), Calcium (Ca), Chrome (Cr), Cobalt (Co), Copper (Cu), Iron (Fe), Lead (Pb), Lithium (Li), Magnesium (Mg), Manganese (Mn), Molybdenum (Mo), Nickel (Ni), Niobium (Nb), Scandium (Sc), Selenium (Se), Silicon (Si), Silver (Ag), Strontium (Sr), Thallium (Th), Titanium (Ti), Uranium (U), Vanadium (V), Yttrium (Y), Zinc (Zn) and Zirconium (Zr). In total, 11 samples were gathered over two periods: 1) six samples in the first hour at a flowrate of 150 mL/min 2) five samples during the experiments at a flowrate of 2.25 mL/min. The amounts are under the designated values by Quebec Ministry for leached metals to surface and groundwater media (https://www.environnement.gouv.qc.ca/eau/criteres_eau/index.asp).

Table A1 The metal leaching result in two periods of time: a) 6 samples in the first 1 hour with the flowrate of 150 mL/min b) 5 samples during the experiments with the average flowrate of 2.25 mL/min.

	element	**Be**	**B**	**Al**	**V**	**Cr**	**Fe**	**Mn**	**Co**
Date	**Time (min)**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**
13-Sep	1	0.0388	211.00	393.17	413.59	12.58	427.74	51.68	0.43
	3	<DL	181.92	94.80	361.34	6.71	71.37	14.96	0.18
	10	<DL	105.71	65.91	219.78	3.29	45.63	8.08	0.11
	20	<DL	127.30	56.09	277.64	3.56	62.38	9.81	0.09
	40	<DL	114.18	42.95	265.95	3.10	66.89	6.94	0.32
	60	<DL	102.53	39.16	229.91	2.61	56.52	4.90	0.09
	ave	0.0388	140.44	115.35	294.70	5.31	121.75	16.06	0.20
13-Sep		<DL	363.27	30.89	1270.48	9.74	132.60	12.62	0.18
14-Sep		<DL	90.92	12.40	420.45	3.87	4.62	0.15	0.04
29-Sep		<DL	72.66	8.65	312.92	3.15	3.35	0.12	0.04
6-Oct		<DL	81.66	21.38	385.24	3.69	5.57	0.24	0.04
12-Oct		<DL	90.40	15.49	447.72	3.96	0.74	0.11	0.03
	ave		139.78	17.76	567.36	4.88	29.38	2.65	0.07

Table A1. The metal leaching result in two periods of time: a) 6 samples in the first 1 hour with the flowrate of 150 mL/min b) 5 samples during the experiments with average flowrate of 2.25 mL/min (continued).

	element	**Ni**	**Cu**	**Zn**	**As**	**Se**	**Sr**	**Ag**	**Cd**
Date	**Time (min)**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**
13-Sep	1	5.04	297.22	23.01	0.75	1.83	142.49	0.0263	0.30538
	3	2.89	199.10	9.55	0.63	1.29	131.21	0.0129	0.01986
	10	2.51	181.76	6.03	0.51	0.87	131.31	0.0095	<DL
	20	2.07	133.51	3.84	0.49	0.91	121.10	0.0115	<DL
	40	2.11	150.50	4.07	0.49	0.83	118.47	0.0104	<DL
	60	2.04	144.04	3.73	0.50	0.70	118.55	0.0098	<DL
	ave	2.78	184.36	8.37	0.56	1.07	127.19	0.01	0.16
13-Sep		3.02	26.77	3.12	0.74	1.23	165.45	0.0096	<DL
14-Sep		1.58	14.07	0.67	0.69	0.51	60.51	0.0102	<DL
29-Sep		0.94	16.94	0.67	0.56	0.49	70.21	0.0123	<DL
6-Oct		0.89	26.59	2.07	0.69	0.46	46.32	0.0121	<DL
12-Oct		0.63	23.66	0.71	0.54	0.48	35.92	0.0129	<DL
	ave	1.41	21.61	1.45	0.65	0.63	75.68	0.01	

Table A1. The metal leaching result in two periods of time: a) 6 samples in the first 1 hour with the flowrate of 150 mL/min b) 5 samples during the experiments with average flowrate of 2.25 mL/min (continued).

	element	**Ba**	**Tl**	**Pb**	**U**	**Li**	**Mo**	**Sb**	**Ti**
Date	**Time (min)**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**
13-Sep	1	68.0267	<DL	4.40	0.16	3.15	11.16	0.57	35.78
	3	59.8199	<DL	0.94	0.12	2.47	7.25	0.46	2.94
	10	61.2414	<DL	0.67	0.14	2.06	3.63	0.36	1.29
	20	63.8406	<DL	0.54	0.12	2.09	3.94	0.36	1.20
	40	64.2662	<DL	0.59	0.11	2.05	3.61	0.35	1.02
	60	64.249	<DL	0.55	0.11	1.99	3.07	0.32	1.05
	ave	63.57		1.28	0.13	2.30	5.45	0.40	7.21
13-Sep		81.9051	<DL	0.20	0.00	2.61	7.59	0.47	4.06
14-Sep		34.7174	<DL	0.09	0.06	2.41	3.17	0.30	0.89
29-Sep		40.3402	<DL	0.12	0.07	2.38	2.79	0.29	0.78
6-Oct		33.5768	<DL	0.21	0.10	2.53	3.11	0.29	0.91
12-Oct		22.6729	<DL	0.09	0.06	2.36	3.44	0.30	0.84
	ave	42.64		0.14	0.06	2.46	4.02	0.33	1.49

Table A1. The metal leaching result in two periods of time: a) 6 samples in the first 1 hour with the flowrate of 150 mL/min b) 5 samples during the experiments with average flowrate of 2.25 mL/min (continued).

	element	**Zr**	**Nb**	**W**	**Sc**	**Y**	**Mg**	**Si**	**Ca**
Date	**Time (min)**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**µg/L**	**mg/L**		
13-Sep	1	1.79	0.33	13.51	13.33	0.440	4.95	15.32	37.86
	3	0.63	0.05	9.60	12.28	0.027	4.97	15.49	28.32
	10	0.58	0.03	4.95	10.36	0.008	6.16	12.40	24.40
	20	0.57	0.02	5.65	12.33	0.005	5.70	16.82	23.37
	40	0.57	0.03	4.97	12.51	0.005	5.75	16.66	25.51
	60	0.57	0.02	4.12	12.15	0.005	5.92	15.95	22.16
	ave	0.79	0.08	7.13	12.16	0.08	5.57	15.44	26.94
13-Sep		0.66	0.04	14.46	42.68	0.036	0.25	61.13	51.52
14-Sep		0.57	0.02	7.34	22.80	0.003	0.76	33.22	13.71
29-Sep		0.57	0.02	6.05	16.24	0.002	1.25	25.07	14.65
6-Oct		0.57	0.01	7.17	20.71	0.002	0.87	32.02	13.15
12-Oct		0.57	0.02	8.80	19.94	0.001	0.60	31.64	8.93
	ave	0.59	0.02	8.76	24.48	0.01	0.75	36.61	20.39

ANNEXE B INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR LE CHAPITRE 4

a

b

c

d

Figure B1 Colonne 1-S a) point 3 b) haut ; Colonne 2-R c) point 3 d) haut.

a

b

Figure B2 Les scories, après le démontage des colonnes, ont séché à température ambiante après 24 h a) Colonne 1-S b) Colonne 2-R. De droite à gauche : Bas, 1, 2, 3 et 4, respectivement.

a

b

Figure B3 L'injection interne a) avec capuchon b) sans capuchon

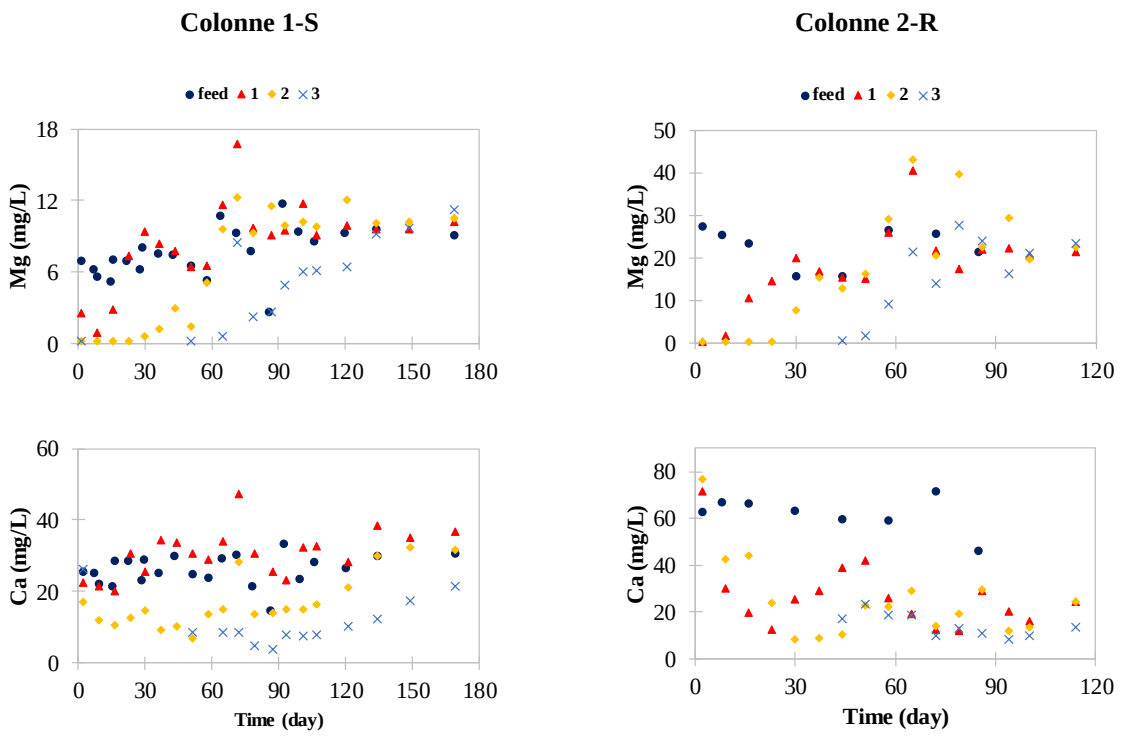


Figure B4 La concentration de Ca et de Mg aux points d'alimentation et 1 à 3 dans la colonne 1-S et la colonne 2-R.

ANNEXE C INFORMATION SUPPLÉMENTAIRE POUR LE CHAPITRE 5

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media.

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size (mm)	d10 mm	d60 (mm)	CU	Influent type	Presence of OM	HRT h	HRTv h	Flowrate (mL/d)	Volume (L)	Duration (months)
1	Anjab	2009	Box (small scale)	a big box with three sections in length: Gravel layer, RF, Gravel layer with injection from one point in the bottom side	Continuous	horizontal	side injection directly by pump	slag	20-40	---	---	---	3 types: tap water & synthetic & real	real step	24		37000	52.5-87.5	3 steps: 4 & 2.5 & 3
								slag (42 wt%) + limestone	5-15	---	---	---					19000		
								slag (33 wt%) + silica sand	0-1	---	---	---							
2	DCM	2020	Column	filled cylindrical column with injection from one point	Continuous	upward	direct injection from the bottom	EAF slag	5-10	---	---	---	synthetic	No		14.9 & 32.9	9936 & 4896	12.5	20.8
										---	---	---	synthetic	buffer AA + NaAc		15.9	9216		13.7

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
3	Dunets	2015	Column	Cylindrical column with open space from the top and bottom, with injection from one point.	Batch	downward	intermittent direct injection from the top	Concrete waste (40%)/ Sand		0.18	5.63	---	synthetic	No	24 & 3		equiv. 340 & 2720	not mentioned (ID of 7.62 cm)	250 pore volume
								BOF slag (40%)/ Sand		0.39	3.28	---							
4	Brix	2001	Column	1 liter bottles filled with materials and injection from one point from a tank with constant head	Continuous	downward	in-direct injection from the top	sands		0.21-1.4	0.6-3.7	---	synthetic	No	12-14		240	1	3
								artificial media		0.66-0.88	1.7-3.3	---							

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
5	Renman	2010	Column	filled Cylindrical column with injection from one point.	Continuous	downward	intermittent direct injection from the top	Polonite/peat(10%)	2-5.6	---	---	---	synthetic	No	4-15		4162.6	4.7	17
			Column			downward	intermittent direct injection from the top	Polonite		---	---	---	real	N.A	-		5421.6	35.3	16.75
			Tank	filled Cylindrical column, first with upward point feeding stopped due to high BOD in the outlet. Then downward feeding with upstream biofilm filter with distribution feeding on Polinite filter		upward & downward	continuous direct injection from the bottom and then from the top	Polonite/peat(10%)		---	---	---	real	N.A	1-72		96684.9	1204.5	4.5 & 18.5
6	Bird	2010	Tank	two Cylindrical columns in series, each divided into two sections filled with 18%/82% big/small EAF slags with point side feeding from the top. Also, a metal screen was placed at inlet to decrease the TSS loading.	Continuous	downward	continuous direct injection from the top side	EAF slag	5-10 (82%) & 10-20 (18%)	---	---	---	real	N.A	18		(2160 & 4320) *10^3	6912	1.73 & 3.9

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
7	Postila	2017	Column	two Cylindrical columns filled with slag and CFH for the height of 15 cm, supported by a paper filter and quartz sands in the upper and downer space for uniform water flow in RF	Continuous	upward	continuous direct injection from the bottom	Steel slag	3-10	---	---	---	real	N.A	1	———	2304-2736	0.32	2.77
								CFH-12		---	---	---							
				two Cylindrical columns filled with slag and Sachtofer for the height of 15 cm, supported by filter mesh with open space at top and bottom				Steel slag	10-20	---	---	---				———	7200-11520	1.3	
								Sachtofer PR		---	---	---							

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
8	Wang	2015	Column	a Cylindrical column with 2 m height of filters with open spaces at top and bottom. The air flow dispersed from the bottom. A sedimentation tank installed before for solids removal before the BAF filter.	Continuous	upward	continuous in-direct injection from the bottom	Sphere shaped expanded polystyrene	3-5	---	---	---	real	N.A	1 & 3 & 1.25		effective volume 28, 84 & 35 L	35.3	4
9	Segismundo	2016	Column	two Cylindrical columns with heights of 40 and 57.5 cm filled with sand with ponding at top and gravel media at the bottom for drainage.	Continuous	downward	continuous in-direct injection from the top	Sand	2-5	---	---	---	synthetic	No (using Sodium Hypochlorite (NaOCl) for inhibiting biological activity)	0.26		518400	5.6	9
															0.38			8.1	6

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
10	Hedström	2006	Tank	a box filled with slags (5 cm height), drainage gravel compartments at two ends with a rotating distributor after settling tank.	Continuous	horizontal	continuous in-direct injection from the top of box	BF slag	1-5.6 (weathered)	---	---	---	real	N.A	91.2		1300-3400 (3000)	11.8	3.2
11	Ménoret	2002	Column	a Cylindrical column with 60 cm filled material and free space at top. The distribution spray was used.	Continuous	downward	intermittent direct injection from the top	gravel	2-5	2.07	2.92		synthetic	milk & whey powder	0.72		2035752.04	61.1	8 & 18
			Column					pozzolana	3-7	1.51	3.80				1.19		1235992.31		

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
12	Penn	2020	Field	a big ditch including several perforated distribution pipes flow the water from the bottom to top and passing slag layer to septic chambers. The septic chambers help sedimentation and loss of precipitants/floc to treated water. An inflow distribution manifold was used after the pump to distribute the flow into perforated lines.	Continuous	upward	in-direct injection from the bottom	EAF slag	3-9.5	---	---	---	real	N.A			variable	24080	12
13	Weber	2007	Column	filled Cylindrical columns with point feeding from the bottom	Continuous	downward & upward	direct injection	EAF slag	5-14	---	---	---	real after CW	barnyard runoff and milking wastewater	12 & 24		------	not mentioned (ID of 25 cm)	8.6
						upward				---	---	---	real before CW				-------		6
14	DCM	2018	Barrel	set of barrels filled with slags and fed from the center point at the bottom of barrels.	Continuous	upward	direct injection from the bottom	EAF slag	5-10 & 3-5	---	---	---	real	house WW		15	-------	1100.00	12

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
15	Seifert	2007	Column	filled Cylindrical columns with point feeding from the bottom	Continuous	upward	direct injection from the bottom	sand (two inoculated with microbes and one pure)	0.4-0.8	---	---	---	synthetic	acetate	0.66		2400	0.066	4.9
16	Caselles -Osorio	2006	tank (gravel+plant)	a cubic container filled with gravels. The system is subsurface flow horizontal, however it is not clear how the feed introduced. At bottom of one side, there is a drainage pipe.	Continuous	horizontal	it is not clear	gravel		---	3.5	1.7	synthetic	starch & glucose	3 & 6		20000 & 10000	285.3	8

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
17	Suliman	2006	tank	a big container filled with reactive materials (75% of height). A sponge material installed at inlet along the width of container to evenly distribute the affluent. At bottom end of container, there is a drainage pipe.	Batch	horizontal	direct intermittent injection from the top side	LWA (Filtralite-P)	0.063-8	1.3		2.5	synthetic	Tryptic Soy Broth	234.8		69000	675	2
								Sand Shell (SS)	<0.063-4	0.5		2.0							

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
18	Caselles -Osorio	2007	real field (gravel+plant)		Continuous	horizontal		gravel	----	---	----	---	real	N.A			------	-----	------
19	Matos	2017	real field (gravel+plant&unplant)	an HSSF CW filled with slags (75% height). At first and end of the plant filled with gravels for better wastewater distribution, even for feeding and collection. There is a distribution box which flow the affluent to the field through one pipe (probably point feeding)	Continuous	horizontal	indirect continuous injection (probably from the middle)	BF slag	----	19.1		1.20	real	N.A	72		7500000	22500	

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
20	Vymazal	2018	real field (plant)		Continuous	horizontal		Crushed rock, GS-gravel and Gravel	Table 1 in article	---	----	---	real	N.A			Table 1 in article	-----	------
21	Vasconcellos	2019	real field (plant) real field (unplant)	a HSSF CW filled with slags (75% height). The inflow injection is not mentioned; however the effluent comes after preliminary treatment and also (upflow anaerobic sludge blanket) reactor for 50 inhabitants.	Continuous	horizontal	direct continuous injection (probably from the middle)	BF slag	-----	19.10	---	1.20	real	N.A	72		7500000	22500	47, 26, 45, 13
22	ARIAS	2001	Column	1 liter bottles filled with sands and injection from one point from a tank with constant head	Continuous	upward	indirect continuous injection from the top	sands	------	0.20-1.4	0.7-3.7	---	synthetic	No	12-14		240	1	3

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
23	Adam	2006	Box (smal scale)	point feeding from the top to the box filled with material and insulated from the top side	Continuous	downward	direct continuous injection from the top	Filtralite-P	0-4	---	---	2.6	synthetic	No	5 & 20		1250 and 5000	1.274	5 and 18
			Tank (meso scale)	a container filled with materials injected through a sponge on entire width for even distribution	Continuous	downward	direct continuous injection from the top								103		70690.9	652.5	18
			CW (large scale)	a SS CW with a septic tank and biofilter pre-treatment at upstream. The CW filled the first 11 m (also for pretreatment) and last 2 m with larger materials for better distribution. The injection to CW also was done by 10 spray nozzles.	Continuous	horizontal	direct continuous injection from the top						real	N.A	425		1600000	180000	36

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
24	Vidal	2018	real field		Variable	-----		sand/Polonite	-----	----	----	---	real	N.A			-----	-----	-----
25	Herman n	2013	column	a Cylindrical column with continuous upward flow filled with material. For even flow distribution, a layer of bigger glass beads was used. A funnel filled with glass beads for smooth outflow.	Continuous	upward	direct injection from the bottom	Filtralite-P	----	----	----	----	synthetic	No		0.77-9.4	420-5110	not mentioned (ID of 7.4 cm)	120-500 bed volumes
													real	N.A		0.85-9.6	410-4540		
26	Rolland	2009	pilot & column	For the column test, the column filled Above the geogrid, from the bottom to the top, column was filled by 2.5 cm of gravel (10/20 mm), 5 cm of pea gravel (4/10 mm) and 50 cm of tested sand. The inluent also sprayed by diffuser over the sand surface.	Batch & continuous	downward	direct injection from the top	sand (find and coarse)	----	0.33 & 0.8	0.85 & 2.4	---	synthetic	glycine, glyceril and glucose	5.5 for fine & 2.5 for coarse		12857.1	0.5	~ 3

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
27	Rodgers	2004	Column	a column with a configuration of big gravel and coarse sands as first and second layers, followed by two layers of fine sands and a final gravel layer. The feed was mixed and stay several hours in upstream anaerobic system for partial nutrient removal and distributed on sand surface in column by a spiral distribution manifold.	Continuous	downward	direct injection from the top	sand & gravel	see article	see article	see article	---	synthetic	Glucose, dried milk, yeast			see article	63.6	26.87
28	Kandra	2010	Column	columns with a constant head on top of the filter. The configuration of layers begins with big gravels for water distribution, sand layer and find sand layer at the bottom for improving drainage.	Batch	downward	direct intermittent injection from the top	gravel	2	----	----	---	synthetic	No			2 dose of 30L per day	5.1	not clear

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
29	Al-Saedi	2019	Column	column filled with coarse sand fed by a constant head tank. At the bottom of the column, plastic filters with gauze on top were installed for evenly percolation.	Batch	upward	in-direct intermittent injection from the bottom	sand	0.7	----	----	----	synthetic	tap water			not mentioned clearly	0.62	12.1
														inorganic WW					11.4-12.1
														ethanol					3.5-5.1
														sucrose					7.7-7.9
30	Pedescoll	2009	real field (gravel+plant)		Continuous	horizontal		gravel	----	------	-----	----	real	N.A			cross-sectional load of 170-470 g/m2.d	------	2
																	cross-sectional load of 700-3200 g/m2.d		

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
31	Gustafsson	2008	Column	column filled with materials fed from the top with point feeding. At the bottom of the column, gravels for better drainage.	Batch	downward	direct intermittent injection from the top side	Filtralite-P	2-13	----	----	----	synthetic	No			1.1-1.8 m3 during 68 weeks	3.93	8.75
								Polonite	2-5.6	----	----	----							
								water-cooled BF slag	0-4	----	----	---							17
								Wollastonite	1-3	----	----	----							
32	Banihashem	2020	Column	Cylindrical column filled with sands through point feeding from the bottom.	Continuous	upward	direct injection from the bottom	sand	3.55	----	----	---	synthetic	No	0.13		240000	1.28	0.6
33	Ye	2019	Column	Cylindrical column filled with sands through point feeding from the top.	Continuous	downward	direct injection from the top	sand	0.255	----	----	---	synthetic	No			6048	0.05	not clear

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
34	Nilsson	2013	Column	Cylindrical column filled with material through point feeding from the bottom. The filters installed after a septic tank and SBR process.	Batch	upward	direct intermittent injection from the bottom	Polonite	2-6	----	----	---	real	N.A	12.00		8000	4.00	7
								BF slag	0.5-4	----	----	---			19.20		5000		
35	Hussain	2014	Column	three Cylindrical columns in series fed by constant head tank filled with materials. It is point feeding. The outlet stream mixed with CO2 to control the pH.	Continuous	upward	direct injection from the bottom	BOF (A) slag(50%)/gravel (year 1)	0.5-4	----	----	----	real	N.A			530000-1510000	695	4
					Continuous			BOF (B) slag(50%)/gravel (year 2)									1500000-2300000		not clear

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
36	Zhou	2018	Column	a Cylindrical column filled with quartz sands with gravel layer at bottom. It is a point feeding from the top.	Continuous	downward	direct injection from the top	sand (planted)	1-2	----	----	----	synthetic	Glucose (Bio)	14.7		57608.96	35.34	3
													synthetic	starch (OP) + SS					
													synthetic	starch with antiseptic (IO) + SS					
													synthetic	glucose & starch (C) + SS					

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
37	Lira	2009	Column	a box filled with oil shale ash point feeding from the bottom. After the main box, the peat box was installed for pH neutralizing.	Continuous	horizontal	direct injection from the bottom side	hydrated oil shale ash	6-16	----	----	----	synthetic	No	6, 8 & 12		12000, 18000 and 24000	12.6	5
38	Anjali	2019	Column	a Cylindrical column filled with slags with head tank at top. A gravel layer at bottom for better water distribution and helping backwashing.	Continuous	downward	in-direct injection from the top	BF slag	not mentioned (UC=5.17)	----	----	----	synthetic	No	2, 4, 6 & 8		0.32, 0.64, 0.96 and 1.28 m3hr-1m-2	4.14	not clear
39	Egemose	2018	real field	a sand filter fed directly from overflow of an upstream wetland. At the bottom of the sand filter, there is a drainage pipe	Continuous	downward	direct injection from the top	sand	infiltration rate > 1000 L/m2.d	----	----	---	real	N.A			not mentioned	138000 & 210000	60 & 36

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
40	DCM	2012	Column	a Cylindrical column filled with slags with point feeding from the bottom.	Continuous	upward	direct injection from the bottom	EAF slag	5-10	----	----	---	synthetic	No		16.3, 3.8 & 1.5	5937, 20781 and 64465	3.00	52.5, 12.6 and 1
41	Dahab	2001	real field	a horizontal CW filled with two size gravels followed by a sand filter for TSS, ammonium removal. There is two pretreatment tanks before the process and the flow distributed uniformly in four CWs.	Continuous	horizontal	not mentioned clearly	gravels	15-40	----	----	----	real	N.A	150		120000000	750000	42
42	Drizo	2006	Column	Cylindrical columns filled with materials fed by point feeding from the top. Perforated plastic plates and geotextile used for evenly distribution of water in the columns.	Continuous	downward	in-direct injection from the top	EAF slag	2.5-10	----	----	----	synthetic	No		24	3024-4032	7.912	4
								Serpentinite	0.6-3.2	----	----	----							2

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
43	Lianfang	2009	Column	Cylindrical columns filled with sands with point feeding from the top side through a head tank. At bottom of the column there is a layer of big gravels for better distribution of effluent.	Continuous	downward	in-direct injection from the top	coarse sand	----	1	----	4.40	synthetic	starch and glucose	12.7		60082.96	31.81	3

Table C1 Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Date	Type	Filter Geometry	Type of Feeding	Direction	Injection type	PSM	Particle size	d10	d60	CU	Influent type	Presence of OM	HRT	HRTv	Flowrate	Volume	Duration
44	Kirkkala	2012	real field	a big box of horizontal flow sand filter with substrate fed from the bottom side after a distribution tank. Distribution pipes used to pass water from the bottom. There is also a gravel layer before sand layer for better water distribution. The second filter has similar purpose but with flow direction of downward and the substrates were not mixed with sands and the sand layers are top and down of substrate layer.	Continuous	upward and downward	in-direct injection from the side	sand + Fosfilt	sand < 8 & Fosfilt 0.125-0.5	----	----	----	real	N.A			11.7 & 13.8	240000 & 113000	12

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
1	Anjab		The clogging effect is expressed as hydraulic performance of media which reduced with finer media. The author suggested medium slag layer because of low possibility of clogging and at the same time, keeping high P removal. Also, the raising of loading rate resulted in P removal reduction; The author relates this event to not enough HRT.		
2	DCM	The author declared two patterns of normal and slow flow during sampling events which was related to void clogging in column 2 (with organic source). The author observed white precipitations as chemical clogging in column 1 and irregular cementations with red and black zones in column 2. The saturation pH test after dismantling of columns prove severe clogging in column 2 compared with column 1. The pH saturation of first cells of column 1 is one unit lower than fresh slag which confirms good dissolution of slag; however, the pH saturation of column 2 shows pH of 11 which means the slag keeps its reactivity due to clogging and less contact with water. The red cementation was attributed to dissolution and reprecipitation of some contents in slag, here iron species. For modelling section: The column 1 shows the same trend of void filling with model prediction due to chemical clogging without TSS in influent. But, the severe clogging existed in column 2 regarding biofilm growth either in harsh conditions of required nutrients, high pH and lack of oxygen.		The pressure head is reported below 2.5 cm for the column 1 during the project and mainly in cell 1. The pressure head was declined with decreasing the influent flow rate.	The SEM images were used to compare the surface morphological of slags in two columns. A compact void structure without biological formation were observed in column 1. In column 2, the spiderweb shape which can be extracellular polymeric substance, EPS, was seen. This structure declares despite of harsh condition of column 2 regarding high pH and lack of nutrients, the biofilm grows. The precipitations combined with biofilm structure greatly influence voids filling and in result, preventing water flow.

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
3	Dunets	The author reported clogging in slag system in high load rate resulted in discarding the slags. one reason for clogging in slag system was hydration of CaO resulted in slag expansion and collapsing to fine particles which block pores. The suggestion was mixing the PSM with other inerts or PSMs in media.			
4	Brix	There is no clogging report. The author just mentioned the EPA Denmark guidelines for grain effective size which for d10 between 0.3-2 mm and d60 between 0.5-8 mm and the d60/d10 < 4 for clogging minimizing.			
5	Renman	The author does not mention any clogging problem in the columns. The feed of Column A has no organic matter; however, the possibility of biofilm growth due to microbial activity is existed. the authors also used peat in the column A and the Tank for minimizing chemical clogging of CaCO3. The column A showed the highest removal and The Tank also performed without mechanical clogging causing overflow or hydraulic failure. Although the column B media which has not peat, it works without clogging problem.			

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
6	Bird	The first step clogged after 52 days due to high TSS loading rate. The author declared that the second step of experiments with lower TSS (the first step has 3.3 fold higher TSS than second step) has more lifespan. This result also observed by Weber et al (64). Also, the author confirms biofilm formation in the TSS concentration approximately 50 g/kg EAF.			
7	Postila		The author relates the lower amounts of hydraulic conductivity in small particles to easy clogging process in small particle media. They observed a sudden increasing of hydraulic conductivity in slag media (3-10 mm) which related to development of preferential flow path. Also, the authors mentioned possibility of clogging and dissolution of clogged materials in various media lead to variations in hydraulic conductivity.		

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
8	Wang			Wang et al. evaluated the loading effect in the biological aerated filter (BAF) in 3 phases as follow: (I) no chemicals added (II) adding FeSO4.7H2O (III) adding FeSO4.7H2O, PAM, and NaHCO3 to the pre-denitrification tank. The bottom hydraulic head loss curves obviously show the clogging effect. Introducing more suspended solids could clog the pores and reach higher head loss sooner until threshold line in 4.8, 6 and 9 days, respectively. Based on the Fig. S3 [73], the entrapped SS in phase I has high content of extracellular polymeric substances (EPS) compared with phases II and III. It means the sticky layer in the bottom of the BAF makes it difficult for SS migration in the length of the filter.	

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
9	Segismundo	there are two columns with different depths which influence on HRT when loading rate is constant. The authors observed the cake layer on the top of the substrate. The higher depth (more HRT) resulted in better removal, however, decrease the lifespan of the filter due to more clogging.		The pressure head measurement shows a relationship between the pressure at geotextile section (bottom) and the ponding at surface. When the water accumulates at the ponding section, the pressure at bottom decreases and vice-versa. This indicates the clogging effect due to filtration in inlet section.	The major accumulation of the large sediments at first 15% of filter layer is the main reason of clogging layer.
10	Hedström	The author just enumerated the clogging reasons. The author mentioned appearance of clogging at the entrance of filter due to particles. Also, the formation of biofilm on slags may cause clogging during filter operation.		There was not clogging problem and the headloss was approximately 1-2% in around 3 months operation.	
11	Ménoret	The authors used coarser materials (gravel and pozzolana) instead of sands with recycling process, because the fine sands have high risk of clogging. Based on the tracing test in the first step (8 months), the biofilm growth in the filters resulted in stagnant zone which makes the RTD curve with longer tail. During the second period, the columns clogged after 18 and 21 cycles for gravel and pozzolana, respectively. They declared due to lack of resting time, there was an increasing accumulation of stable OM in filters.			

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
12	Penn	The dye test after 11 month shows limited water flow via slag bed due to clogging and in result, most of flow passed from overflow line which means no contact between slag filter and wastewater. The authors reported the unwanted chemical precipitations influences phosphorus removal not only by void clogging, also with decreasing pH which is not favor for calcium phosphate precipitation and helps calcite formation in presence of CO2.		the pressure head figure shows the baseline level lifted over time which confirms slow clogging inside of slag bed and more required pressure head for flow.	
13	Weber	There is no report of clogging in the first 4 columns with influent after CW; however, the authors mentioned sever clogging after 180 days in the last 2 columns with influent before CW due to high concentration of TSS and BOD5.	—		
14	DCM	This investigation linked the CaCO3 formation to influent inorganic carbon. The higher influent inorganic carbon or in the other way, alkalinity resulted in lower lifetime caused by chemical clogging.			

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
15	Seifert		The severe clogging obtained withing the first 20 days in the inlet zone of two columns according to great reduction of hydraulic conductivity (up to four orders of magnitude). This phenomenon explained by microorganism activities due to presence of sufficient substrate and well degradation (Phase I). After the first phase, the hydraulic conductivity increased during 20 days. The water velocity increased because the severe bioclogging blocks the most of paths. Then, the high velocity resulted in the fast bypassing of substrate and decreases the biomass growth at inlet area (Phase II). The author also related less availability of phosphate either from sands or affluent. As continued to Phase III, the detachment of biomass during the 40 days increases slightly the hydraulic conductivity. In Phase IV, the substrate injection was stopped and during this period, a sudden sharp reduction was observed. The author had not certain answer for this behavior but related this phenomenon to severe clogging in filter media when the biomass detachments fills the upper sections.		

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
16	Caselles-Osorio		There is not clogging report between two horizontal subsurface flow constructed wetlands fed with one starch and one with glucose. The two influent flowrates influence COD and N removal (more removal with higher HRT). However, the author reported lower hydraulic conductivity at inlet zone for system fed with glucose. Because this substrate is readily biodegradable carbon source and formation of biofilm reduces the flowing path. However, due to the lack of developed biofilm near to outlet zone in both systems, the hydraulic conductivities are same.		

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity		Mineralogical studies
17	Suliman	From visually observations, there was a dark-gray area after two weeks in SS media, but not clearly in LWA medium maybe regarding to dark color of LWA particles. The second observation was water level rising close to the inlet section which indicates the possibility of pores clogging due to biological growth.	The article investigated drainable porosity and hydraulic conductivity in three sections of inlet, middle and outlet and three depths of top, middle and low layers. In general, the LWA has higher values of drainable porosity and hydraulic conductivity than SS before and after of the process. There are not a lot variation in drainable porosities among layers and sections in SS medium (max. 40%). The low values of hydraulic conductivity of SS at inlet section shows clogging phenomenon due to presence of high organic matter and biomass growth near the inlet.	The variation of drainable porosities at different layers in two sections of inlet and outlet of LWA medium indicates the local clogging. The middle layer of outlet section faced sudden reduction of hydraulic conductivity which can be related to the potential formation of inorganic gels from calcium leaching from medium and subsequent reactions in low redox conditions. At the end, the comparison of grain size distribution between two medium shows the LWA with d10 equal to 1.3 mm which is in the recommended range of 1-1.5 mm, has longer lifetime and less vulnerable to biomass growth according to hydraulic conductivity and drainable porosity.	

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
18	Caselles-Osorio	The article investigated 5 real horizontal subsurface flow constructed wetland in 5 cities. The results shows that the CWs with higher TSS loading rates face high solid accumulation at inlet zones. The authors mentioned ponding at surface indicating clogging in inlet zone which is consistent with hydraulic conductivity values from CWs. One factor contributes hydraulic conductivity reduction as inert solids in the system was reported the presence of fine particles, clay and silt from gravel media. The low values of VSS/TSS ratio shows the incoming effluent from the last treatment units remove most organic contents before reaching the CWs.			
19	Matos	Based on the analysis, more than 80% of the clogging material is inorganic content. However, it should be noted that the density of organic matter is smaller compared to inorganic part which means the organic material occupies more volume.			the mineralogical studies on collected samples from CW show the clogging materials originated from wear slag. The physical clogging (inorganic materials) was observed farther away the inlet zone. The VS/TS ratios were higher in the inlet zone that proves the presence of organic matter and biofilms.
20	Vymazal	The author related the clogging to surface ponding of CWs. The article remarks with TSS managing in the influent, the clogging phenomenon can be controlled. Based on the author conclusion, the clogging is result of overloading and by feeding control, the clogging is limited to inlet zone.			

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
21	Vasconcellos	The experiments performed in four phases based on the influent type and rate. There was not major clogging or surface flow in the first three phases with influent rate in the normal range of below 8 gBOD5/m2.d. However, in phase 4 which faced with higher rate of 16 gBOD5/m2.d, the clogging was observed sooner and reached overflow on the surface in few years..	The author compares the hydraulic conductivities in two sections of inlet and outlet of the media. They related the lower values of inlet hydraulic conductivity to clogging. Also, they mentioned the hydraulic conductivity is reduced during time in both sections due to pores obstruction.		
22	ARIAS	There is no report on clogging. The authors just mentioned the EPA guidelines for effective grain sizes of d10 and d60 in range of 0.3-2 mm and 0.5-8 mm, respectively. Also, they should be accompanied with uniformity coefficient of below 4 for ensuring good hydraulic conductivity and minimizing the clogging.			

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
		In the first 3 months of operation, they observed white precipitations at outlet section of boxes when the system has high pH. The amount of precipitation depends to P concentration in the influent and loading rate. Afterward, because the Mg and Ca were washed out from the media and the pH reduced to 8-9 range, the precipitation development decreased. The authors explained that the precipitated P with Ca or Mg was washed to the depth of boxes and accumulated.			The SEM analysis shows two patterns of Ca- and Mg- bonds with oxides/carbonates in the core of precipitates surrounded by Ca- and Mg- phosphates.
23	Adam		the adsorbed P in the middle section of inlet of tank is higher and became more concentrated near to walls with increasing the depth or distance from the top. This can be somehow explained the more clogging at that point and direct the flow to sides.		
					The SEM analysis shows a high peak of $CaCO_3$ from the outlet which is reaction of Ca^{2+} with CO_2 and O_2 available in outlet zone.

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
24	Vidal	The authors declared in sand filter B, they observed high content of TSS in outlet, high bacterial concentration, dark color and strong odor confirmed the filter clogging. Biological activities, TSS accumulation and chemical precipitations are enumerated as main reasons.			
25	Hermann	The author relates the effect of loading rate and influent source on P removal by filters. The higher loading rates decrease the P removal regarding wash-out of P precipitates and Ca2+ ions. Also, the higher loading rate might raise the possibility of preferential paths in column based on the tracing test results. The wastewater as influent source contains organic matters may have clogged the pores and increased the biofilm formation. The average pHs was 8.5 and 9 which is in the range for humic substance reaction with Ca and inhibits the Ca-P precipitation.			
26	Rolland	The authors mentioned that the clogging effect is more pronounced in fine sand filters due to particles accumulation and biofilm growth especially for compact sand configuration. They reported physical clogging as main part due to solids deposit.			

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
27	Rodgers	The biomass formation and secretion buildup in the upper section of the coarse layer reported as a main reason of clogging. The gel-like texture from biomass formation penetrates in depth and leads to filter clogging. The Loss of ignition reported more than double at inlet area compared to the virgin sand. This discrepancy gradually decreased as it reached to coarse sand layer which confirms the idea that clogging material diffuses in a coarse media.	The hydraulic conductivity of upper coarse layer below the surface shows low values compared with virgin sand indicating the clogging in this section.		The SEM analysis of surface layers obviously shows the biomass formation on sands surface and in the pores which confirms surface clogging in the filter.
28	Kandra		The complete clogging happened after 170 L and 315 L for Riversand and Scoria feeds, respectively. The infiltration rate reached to zero for both of them. The authors declared the void filling by sediments and deposition of particles lead the granular filter to clogging point. However, there are not important difference between the various filter media regarding shape of gravels. This research also relates the possible disintegration of granular media could raise the clogging effect.		

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
29	Al-Saedi	In this study, the authors used two steps OM feeding during experiments, started with C/N ratio of 2 and after 105 days, for increasing of clogging possibility in ethanol and sucrose columns, the second phase set on 4 for C/N ratio. The end point of clogging was considered when the outflow stream had effectively ceased. (The microbes can be existed in tap water and also in sand filter). The authors declared that because there was not any TSS in the tests and no excessive accumulation of inorganic sources, the clogging effect comes from biological activities.	The relative hydraulic conductivity (K/K0) of all columns decreased over whole period of process. K/K0 decreased during the first step for all columns. After increasing the organic source (step 2), the final clogging happened after 105-154, 231-238, 364-343 days for ethanol, sucrose and inorganic wastewater, respectively. The control column with tap water lost 40% of the K/K0 after 370 days. Despite of the previous studies regarding lower hydraulic conductivity in feeding section and higher in depth of column, the OM content, protein and polysaccharides produced by biofilm growth, were distributed uniformly in three layers (Lower, Middle and Upper) and there was no specific relationship between Ks and biomass accumulation.	—	There is no explanation for SEM images. The authors just gave the size of the entangled biomass at the inlet area for different columns.

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
30	Pedescoll	small ponds were seen in Verdu field at inlet zone. At Corbins, several flooding was observed.	The hydraulic conductivity of both SSH CW shows lower K at inlet and outlet zones with higher values (1-3 orders of magnitude) at middle zone except transect C. Presence of preferential flow can be reason for low value of transect C. The non-uniform distribution of wastewater resulted in different hydraulic conductivities at inlet zone. The low amount of hydraulic conductivity in most of length for Corbins wetland show severe clogging compared to Verdu wetland that is because of higher load rate in Corbins wetland. Despite of other studies which indicate low K at inlet and higher in depth of medium, the outlet zones also have low K values. This is due to presence of ponding and several floodings which lead the wastewater at surface from inlet zones to following zones and then infiltrate into media. So, the biofilm grows in this zone and decrease the K regarding clogging.		The mineral studies show the accumulated solids in both wetlands include fine particles similar to the granular medium composition (Quartz and Calcite).

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
31	Gustafsson	The Filtra-P was shut down after clogging at week 35. The authors reported Filtra-P disintegration due to observation of yellow-brown color in the effluent. They concluded the filter particles degradation occurred due to matrix dissolution and in result, precipitation of secondary phases.			
32	Banihashem		The pressure drop figures are align with the hydraulic conductivity curves which show lower values for feeds with bigger silica particles.	the first days of operation shows more intensive pressure drop in all feedings. The pressure drop has higher values for feeds with bigger particles. Also, the higher pressure drop curve for first layer of column indicate severe clogging in this zone.	The SEM images of sands in the first layer feeding with 4 and 40 µm completely shows the accumulation of suspended solids on the surface of sands. The comparison of these images with purified sand indicate more intensified aggregations for feed with bigger particles.
33	Ye	The surface photos of columns show surface clogging (superficial clogging). The large particles retained on the surface of sand filter. The mass of suspended solids in depth of columns indicate presence of particles inside of sand filter voids (inner Blocking).	The relative hydraulic conductivity (K/K0) of all columns decreased over time.		The authors related the part of suspended solids stick to sands as shown in SEM images even after filter washing (attachment).

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
34	Nilsson	The authors compared the results of high and low BOD rate in all of columns. They concluded the accumulation of organic matter influenced pH due to high load of BOD. The CO2 release raises the possibility of calcite precipitation. Also, accumulated organic matter lead clogging and preferential flow which in result decreases the filter performance.			
35	Hussain	keep it for article in SEM section	There wasn't any hydraulic conductivity figure or calculations. The author qualitatively expressed hydraulic conductivity reduction due to extensive secondary mineral precipitation close to top side of Column 1 during year 1.		The FESEM and EDX analyses showed the presence of C, O and Ca at the top layer of Column 1 which indicates the formation of CaCO3. The reason was CO2 entering from atmosphere and reaction with Ca. This phenomenon was prevented by sealing the columns in the year 2.

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
36	Zhou	A gel-like slime was observed on the surface of this bed. The clogging occurred after 48 days.	Based on K/K0, there was a gradual decreasing trend for bed 1 until clogging.	(not for pressure head) Based on the reported information, the major decline in porosity and hydraulic conductivity was related to the first layers (0-10 and 10-20 cm). The K reduction in bed 3 is lower compare with other beds which fed by inert organic wastewater.	The microscopic images of clogging matter show different pattern between bed 1 and 2. In bed 1, the gel-like layer containing polysaccharides and protein which are biofilm components. In bed 2, except the polyssacharides and protein, there are un-degraded starch particles. The SEM images of bed 2 and 3 are given in the article. The complicated network of starch particles entangled with biofilm which formed a dense gel-like membrane in bed 2. However in bed 3, in the lack of microbic activities (no biofilm) an aggregation of starch particles was observed which still has pores fro passing contents and that is why the bed 3 after gradual reduction of K, it reached a stable condition with no clogging. The authors concluded the biological activities is the main contributor of clogging compare with suspended solids. The biofilm growth on the surface of particles narrows the available paths until completely filling the space. The inert particles aggregate in media, however they can diffuse more in depth of media. (The figure 10 is very good)
		A gel-like slime with starch particles together was observed for bed 2 and 4 on the substrates surface which show severe clogging. The clogging occurred after 20 and 28 days in bed 2 and 4, respectively.	the hydraulic conductivities in bed 2 and 4 experienced rapid decline and became worser with further operation.		
		a blanket-like starch was formed on the surface of bed 3.	The K reduction of bed 3 was lower compare with other beds and finally, it reached to a steady state condition, not clogging.		
		A gel-like slime with starch particles together was observed for bed 2 and 4 on the substrates surface which show severe clogging. The clogging occurred after 20 and 28 days in bed 2 and 4, respectively.	the hydraulic conductivities in bed 2 and 4 experienced rapid decline and became worser with further operation.		

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
37	Lira	A white precipitation was observed on the surface of all filters.			The XRD analysis of white precipitation confirms hydroxyl-apetite. Also, FTIR analysis on thin layer covered the surface shows peaks of CaCO3 and Ca-phosphate. The SEM analysis clearly shows the different structures of PSM before and after experiments. The untreated ash has porous structure with a lot of needlelike ettringite which disappeared after column test. The more calcite formation was obtained in column with higher residence time (or low flowrate) which inhibited dissolution of Ca-bearing phases in ash. In the other word, the chemical clogging resulted in P removal reduction.
38	Anjali	The authors reported deposition of solids on the surface and inside of filter media.		The deposition of particles lead the columns to clog. However, it did not influence much on pollutant removal. The pressure head of column with lower loading rate was 65 mm after 35 days which with increasing the loading rate, it reached to 75 mm after 45 days of operation. The maximum head loss was 190 mm for 1.28 $m^3 h^{-1} m^{-2}$ filtration rate.	

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
39	Egemose	The upper side of both sand filters were dark and they became lighter in depth. The fine particles mostly are retained in the upper section of sand filters. These particles mainly consist of organic matter lead to bioclogging beside the particles sedimentation (physical clogging).			
40	DCM	the white crystals settled mainly at the bottom of the column with lower velocity (higher HRT or lower loading, 14 mm/h). For two other columns with higher velocities, the uniform distribution of white precipitations was observed along the length of the column.	Generally, the precipitations decreased the HRT or increased higher hydraulic conductivity values because of creation of confined cavity volumes inside of the filter and appearance of short-circuiting which means less contact between wastewater and slag.		
41	Dahab	The eruptions and pooling observed after two years and their occurrence increased by time due to clogging. Also, the stringent odor resulted in undesirable conditions. The authors mention the clogging reasons as influent TSS loading, biomass accumulation and presence of fine sands.			
42	Drizo		After raising the P concentration in the feed, the HRTv increased due to clogging. The authors reported due to chemical precipitations in the valves and diminished flow rate, the HRTv increased in the filters, especially in serpentinite media.		

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Mineralogical studies
43	Lianfang	Ponding was observed in the starch feeding columns.	The hydraulic conductivity values show reductions in all COD concentrations and more pronounced in starch feed. In starch feeding columns, ponding observed after 30 days which was not observed in glucose feeding columns after 60 days. Also, the infiltration rates decreased with higher organic loading concentration. This phenomenon is more intensified in starch feeding column which increasing the COD from 50 to 100 mg/L causes sooner ponding from 30 days to 24 days. The same reduction pattern was seen in effective porosity figure, however there was not major difference between the starch and glucose columns. The effective porosity figures based on the location shows higher reduction in the upper and middle and less in the bottom of the column for glucose feeding, but in starch feeding a severe reduction was happened in the upper side of the column and slight at the rest. Again, more reduction appeared in higher COD concentrations in each layer. The difference between the two feeds is their kind. The glucose is readily biodegredable matter. So, the main clogging in the upper section of column for starch feeding is organic particles not biofilms. The authors concluded that the SS concentration has major effect of clogging which biofilm growth helps acceleration of clogging occurrence.	

Table C1 continued Summary of literature review on clogging in various media (continued).

No.	Ref.	Clogging observation	Hydraulic conductivity	Pressure head	Mineralogical studies
44	Kirkkala	There were two sand filters with Fosfilt substrate. The F1 firstly had downward feeding without feed distribution system that reached clogging after few months in surface macadam layer. Therefore, they inversed the flow pattern and used the collection pipes at the bottom of filter as feeding pipes. The SS concentration of influents was in the low range for both filters, however the author mentioned that the F1 had received higher concentration of SS compared to F2 and that is the reason of clogging in F1. The study reported that the Fosfilt substrates are not appropriate for high concentration of suspended solids due to the fine size of Fosfilt.			